

KARADENİZ TEKNİK ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

FİZİK ANABİLİM DALI

$\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  SÜPERİLETKENİNE  
 $\text{Sm}_2\text{O}_3$  KATKISININ ETKİLERİ

127541

Mustafa YILMAZLAR

Karadeniz Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsünde

“Doktora”

Ünvanı Verilmesi İçin Kabul Edilen Tezdir.

Tezin Enstitüye Verildiği Tarih : 22/10/2002

Tezin Savunma Tarihi : 20/11/2002

127541

T.C. YÜKSEKÖĞRETİM KURULU  
DOKÜMANTASYON MERKEZİ

Tez Danışmanı : Prof. Dr. Ekrem YANMAZ

Jüri Üyesi : Prof. Dr. Mustafa ALTUNBAŞ

Jüri Üyesi : Prof. Dr. Fazlı ARSLAN

Jüri Üyesi : Prof. Dr. Selahattin ÇELEBİ

Jüri Üyesi : Prof. Dr. Yani SKARLATOS

Enstitü Müdürü : Prof. Dr. Asım KADIOĞLU

Trabzon 2002

## ÖNSÖZ

Bu çalışma, Karadeniz Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Fizik Anabilim Dalında Doktora Tezi olarak hazırlandı.

Deneysel çalışmaların büyük bir kısmı, Fizik Bölümü Katıhal Fiziği Araştırma laboratuvarında gerçekleştirildi.

Üretilen numunelerin  $\rho$ -T ölçümleri Abant İzzet Baysal Üniversitesinde, AC alınganlık ölçümleri Ankara Hacettepe Üniversitesinde ve sertlik ölçümleri Tokat Gaziosmanpaşa Üniversitesinde yapıldı.

Tez danışmanlığı kabullenerek ve doktora tez çalışmamın her anında, karşılaştığım problemlerin çözümünde yardımlarını esirgemeyen ve çalışma yapabilmem için her türlü olanakları sağlayan hocam sayın Prof. Dr. Ekrem YANMAZ'a en samimi duygularıyla teşekkür ederim.

Bana sağlamış olduğu çalışma olanakları nedeniyle Fizik Bölüm Başkanı Sayın Prof.Dr. Ali İhsan KOPYA'ya, Prof.Dr Mustafa ALTUNBAŞ'a, Prof. Dr. Selahattin ÇELEBİ'ye, Yrd.Doç.Dr. Ahmet Varilci'ye , Arş.Gör. Uğur KÖLEMEN'e, Arş.Gör. Ali ÖZTÜRK'e ve yardımcı olan herkese teşekkür ederim.

Ayrıca çalışmalarında bana üniversitelerinin imkanlarını sunan, Yrd. Doç.Dr. Saffet NEZİR'e, Yrd.Doç Dr. Cabir TERZİOĞLU ve Arş.Gör. Özgür ÖZTÜRK'e, Dr. Şadan ÖZCAN ve çalışma arkadaşlarına, Yrd.Doç.Dr. Orhan UZUN'a teşekkür ederim.

Çalışmalarım esnasında benden maddi ve manevi yardımlarını esirgemeyen eşim ve aileme de teşekkürü bir borç bilirim.

**T.C. YÜKSEKÖĞRETİM KURULU  
DOKÜMANTASYON MERKEZİ**

Trabzon, Ekim 2002

Mustafa YILMAZLAR

## İÇİNDEKİLER

	<u>Sayfa No</u>
ÖNSÖZ.....	II
İÇİNDEKİLER.....	III
ÖZET.....	V
SUMMARY.....	VI
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	VII
TABLolar DİZİNİ.....	XII
SEMBOLLER DİZİNİ.....	XIII
1. GENEL BİLGİLER.....	1
1.1. Giriş.....	1
1.2. Yüksek Sıcaklık Süperiletken Malzemelerin Özellikleri.....	3
1.3. Perovskit Yapılı Bileşikler.....	4
1.4. $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4}$ ( $n=1,2,3$ ) Bileşiklerinin Kristal Yapıları.....	5
1.4.1. $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_6$ 'nin Kristal Yapısı ( $n=1$ ).....	5
1.4.2. $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ 'nin Kristal Yapısı ( $n=2$ ).....	5
1.4.3. $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 'nin (2223) Kristal Yapısı ( $n=3$ ).....	6
1.5. BPSCCO Örneğine ait X-Işını Kırınım Desenleri.....	6
1.6. I.ve II. Tip Süperiletkenler.....	11
1.7. BPSCCO Süperiletkenlerinde AC Magnetik Alınganlık.....	13
1.8. Süperiletkenlerin Teknolojideki Kullanım Alanları.....	16
1.9. Bi-Tabanlı Süperiletken Numunelere Yapılan Bazı Katkı Çalışmalarının Sonuçları.....	18
2. YAPILAN ÇALIŞMALAR.....	28
2.1. Giriş.....	28
2.2. Örneklerin Üretimi.....	28
2.2.1. $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_{10}$ ( $x=0.0, 0.0005, 0.001, 0.005, 0.01, 0.1, 0.5, 1.0, 1.5$ ) Bileşiğinin Hazırlanması.....	28

2.2.2. Toz Karışımın Kalsinasyonu.....	29
2.2.3. Tabletlerin Sinterlenmesi.....	30
2.3. Deneysel Ölçümler.....	32
2.3.1. X-Işını Kırınım Ölçümleri.....	32
2.3.2. Diferansiyel Termal Analiz (DTA) Ölçümleri.....	33
2.3.3. Dilatometrik Ölçüm.....	33
2.3.4. Sertlik Ölçümleri.....	35
2.3.4.1. Vickers Sertlik Ölçümü.....	35
2.3.5. Elektron Mikroskobu Analizi (SEM).....	37
2.3.6. Metalografik Analiz.....	38
2.3.7. Elektriksel Özdirenç Ölçümleri.....	39
2.3.8. Kritik Akım Yoğunluğu Ölçümleri.....	39
2.3.9. A.C. Alınganlık Ölçümü.....	40
3. BULGULAR.....	45
3.1. Giriş.....	45
3.2. X-Işınları Kırınımı Desenlerinin Değerlendirilmesi.....	45
3.3. DTA Ölçümleri.....	67
3.4. Dilatometrik Ölçümlerin Değerlendirilmesi.....	68
3.5. Sertlik Ölçümlerinin Değerlendirilmesi.....	73
3.6. SEM ile Yapılan İnceleme.....	74
3.7. Metalografik Analiz.....	79
3.8. Elektriksel Özdirenç Ölçümlerinin Mukayesesi.....	82
3.9. AC Magnetik Alınganlık Ölçüm Sonuçları.....	83
3.10. Kritik Akım Yoğunluğu Ölçüm Değerlendirmesi.....	86
4. TARTIŞMA.....	91
5. SONUÇLAR.....	92
6. ÖNERİLER.....	94
7. KAYNAKLAR.....	95
ÖZGEÇMİŞ.....	102

## ÖZET

Bu çalışmada,  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  örnekleri katıhal tepkime yöntemi kullanılarak üretildi.

Hazırlanan örneklerin özellikleri, x-ışını kırınımı desenleri (XRD), DTA, elektriksel direnç ( $\rho$ -T), AC alınganlık, kritik akım yoğunlukları ( $J_c$ ), genleşme katsayıları, Vickers sertliği (Hv), Taramalı elektron mikroskobu (SEM) ve Optik filmleri çekilerek incelendi.

X-ışını kırınımı desenlerinden, katkı miktarının 0.0'dan 0.01 çıkarılması ile örneklerin yüksek sıcaklık (2223) faz oranı azalırken, düşük sıcaklık (2212) faz oranının arttığı görüldü. Daha yüksek Samaryum miktarlarında ( $x=0.1$  ile 1.5) yalnızca düşük sıcaklık fazı pikleri ortaya çıktı. Samaryum miktarının artması ile termal genleşme katsayısı azaldı. Vickers sertliği ölçümlerinde samaryum miktarının  $x=0.0$ ' dan 1.5 çıkarılması ile Vickers sertliğinin arttığı bulundu. SEM fotoğraflarından Sm miktarının artması ile porozitenin arttığı ve homojenliğin bozulduğu görüldü.

Kritik geçiş sıcaklığı ( $T_c$ ) BPSCCO içindeki  $\text{Sm}_2\text{O}_3$  miktarının artması ile düştü. Kritik akım yoğunluğu ( $J_c$ ) ölçümleri sıvı azot sıcaklığında yapıldı. Örneklerin akım yoğunluğu samaryum miktarının 0.0'dan 0.1'e artırılması ile azaldığı gözlemlendi. daha yüksek katkılı Samaryum ( $x=0.5$  ile 1.5 arasında) miktarlarında örneklerin kritik akım yoğunluğu ölçülemedi. Çünkü bu örneklerin kritik geçiş sıcaklığı sıvı azot sıcaklığından daha düşük olduğu tahmin edilmektedir.

**Anahtar Kelimeler:** Süperiletken, Sm Katkısı, Isısal Genleşme Katsayısı, Vickers Sertliği, Geçiş Sıcaklığı, Kritik Akım Yoğunluğu.

## SUMMARY

### The Effects of $\text{Sm}_2\text{O}_3$ Doping on $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$ Superconductors

In this study,  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  samples were produced by solid state reaction method.

The superconducting properties of the  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  system have been investigated by x-ray diffraction (XRD), Differential Thermal Analysis (DTA), thermal expansion coefficient, Vickers hardness (Hv), scanning electron microscope (SEM), optical microscope, electrical resistivity ( $\rho$ -T), ac Susceptibility and critical current density ( $J_c$ ).

X-ray diffraction (XRD) data showed that the volume fraction of the high- $T_c$  (2223) phase decreased and the low- $T_c$  (2212) phase increased as the amount of samarium content was increased from  $x=0.0$  to 0.01. At higher amount of samarium ( $x=0.1$  to 1.5) there only exists the low- $T_c$  phase. The thermal expansion coefficient decreased with the increase of Sm content. From the measurement of the Vickers hardness, increasing the Content of samarium in samples from  $x=0.0$  to  $x=1.5$  showed increasing value of hardness. SEM micrographs showed that the porosity in samples increased and inhomogeneity appears with increasing Sm content.

It was found that the critical transition temperature ( $T_c$ ) decreased with increasing the amount of  $\text{Sm}_2\text{O}_3$  in BSCCO system. Critical current density measurements were performed in liquid nitrogen temperature. Current densities of the samples were decreased by increasing amount of Sm concentrations from  $x=0.0$  to 0.1. The critical current densities of the samples with higher Sm concentrations from  $x=0.5$  to 1.5 can not be measured. Because, it was estimated that temperatures of samples were lower than liquid nitrogen temperature (77K).

**Key Words:** Superconductors, Doping Of  $\text{Sm}_2\text{O}_3$ , Thermal Expansion Coefficient, Vickers Hardness, Transition Temperature, Critical Current Densities.

## ŞEKİLLER DİZİNİ

	<u>Sayfa No</u>
Şekil 1. Süperiletkenliğin tarihsel gelişimi.....	2
Şekil 2. $\text{CaTiO}_3$ bileşiğinin perovskit yapısı .....	4
Şekil 3. $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_6$ 'nin kristal yapısı .....	7
Şekil 4. 2201 kristal yapısının birim hücreninin a-yönünde izdüşümü .....	7
Şekil 5. $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ 'nin kristal yapısı .....	8
Şekil 6. 2212 kristal yapısının birim hücreninin a-yönünde izdüşümü .....	9
Şekil 7. $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$ 'nin kristal yapısı.....	10
Şekil 8. 2223 kristal yapısının birim hücreninin a-yönünde izdüşümü .....	11
Şekil 9. $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_y$ ( $n=1,2,3$ ) saf örneklerin tek fazlı XRD kırınım desenleri .....	12
Şekil 10. a) I.tip süperiletkenlerin magnetik davranışı, (b) II.tip süperiletkenlerin magnetik davranışı .....	13
Şekil 11. $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ örneğine ait AC alınganlık ölçümü .....	16
Şekil 12. $850^\circ$ de 48 saat sinterlenen örneklerinin XRD analizi. b (3221) ve d (2201) safsızlık pikleri .....	18
Şekil 13. $835^\circ$ de 120 saat sinterlenen ve %2.8 katkı ve katkısız örnekler. Fırında soğutma (F), hava ortamında soğutma (R), quench (Q), Burada a ve a' $\text{Ca}_2\text{PbO}_4$ safsızlığını, b 3221 fazını ve d ise 2201 fazını göstermektedir .....	19
Şekil 14. $835^\circ$ de sinterlenen ve hava ortamında soğutulan örneklerin sıcaklık-özdirenç değişimi .....	20
Şekil 15. $840^\circ$ de sinterlenen a) fırında soğutulmuş katkı ve katkısız örneğin b) quench yapılan numunenin sıcaklık-özdirenç değişimi .....	20
Şekil 16. $\text{Bi}_{2-y}\text{Pb}_y\text{Sr}_2\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{Cu}_2\text{O}_z$ ( $y=0.2$ ve $x=0.359$ örneğine ait XRD analizi .....	21
Şekil 17. $\text{Bi}_{2-y}\text{Pb}_y\text{Sr}_2\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{Cu}_2\text{O}_z$ örneğinin özdirenç-sıcaklık değişimi. a) $y=0.5$ ve Ce miktarı değişken, b) $x=0.35$ ve Pb miktarı değişken .....	22
Şekil 18. Pb miktarı ile kritik sıcaklık değişimi .....	22

Şekil 19. $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+z}$ örneğine ait XRD analizi .....	23
Şekil 20. $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_{1.95}\text{Co}_{0.05}\text{O}_{8+z}$ sistemine ait XRD desenleri.....	23
Şekil 21. Öz direnç-sıcaklık değişimi a) $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+z}$ ve b) $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_{1.95}\text{Co}_{0.05}\text{O}_{8+z}$ .....	24
Şekil 22. $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Cu}_2\text{O}_8$ örneğine ait öz direnç-sıcaklık değişimi .....	25
Şekil 23. Pr katkısının kritik sıcaklığa göre değişimi .....	25
Şekil 24. a) $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{RCu}_2\text{O}_8$ (R=Dy, Er, Y ve $\text{Ca}_{0.5}\text{Er}_{0.5}$ ) örneğine ait öz direnç- sıcaklık değişimi. b) $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Cu}_2\text{O}_8$ örneğine ait öz direnç- sıcaklık değişimi .....	26
Şekil 25. Yüksek sıcaklık faz oranı ile Vanadium katkı miktarının değişimi .....	27
Şekil 26. <i>c</i> örgü parametresinin Vanadium katkı miktarı ile değişimi.....	27
Şekil 27. Toz karışımın kalsinasyon işlemi .....	29
Şekil 28. Programlanabilir Euroterm 808 Kontrollü Lenton Fırın .....	30
Şekil 29. Tabletlerin sinterlenme işlemi.....	31
Şekil 30. Rigaku D/Max-III C marka x-ışını difraktometresi .....	32
Şekil 31. DTA cihazının şematik gösterimi .....	33
Şekil 32. Linseis L75 dilatometrik ölçüm cihazı .....	34
Şekil 33. Dilatometrik ölçüm devresinin şematik gösterimi .....	34
Şekil 34. HDWM marka Vickers sertlik ölçüm cihazı .....	36
Şekil 35. Vickers ölçüm sisteminin şematik gösterimi .....	36
Şekil 36. JEOL JSM 5600 marka Taramalı Elektron Mikroskobu.....	37
Şekil 37. Polarize optik film makinesi .....	38
Şekil 38. Leybold marka kapalı devre helyum kriyostatu.....	40
Şekil 39. Kriyostat sisteminin şematik gösterimi .....	41
Şekil 40. Kritik akım ölçümlerinde kullanılan devrenin şeması.....	41
Şekil 41. A.C. alınganlık ölçüm sisteminde kullanılan kriyostatın şematik gösterimi .....	43
Şekil 42. A.C. Magnetik alınganlık ölçüm düzeneğinin şematik gösterimi.....	44



- Şekil 43. 860°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  başlangıç örneğinin x-ışınları kırınım desenleri ..... 47
- Şekil 44. 860°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  başlangıç örneğinin  $4^\circ \leq 2\theta \leq 6^\circ$  aralığındaki x-ışınları kırınım desenleri ..... 48
- Şekil 45. 860°C’de tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  örneğinin, tavlama süresinin fonksiyonu olarak, yüksek sıcaklık (2223) ve düşük sıcaklık (2212) fazlarının değişimi..... 48
- Şekil 46. 860°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.0005$ ) örneğinin x-ışınları kırınım desenleri 50
- Şekil 47. 860°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.0005$ ) örneğinin x-ışınları kırınım desenleri. 51
- Şekil 48. 860°C’de tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.0005$ ) örneğinin, tavlama süresinin fonksiyonu olarak, yüksek sıcaklık (2223) ve düşük sıcaklık (2212) fazlarının değişimi..... 51
- Şekil 49. 860°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.001$ ) örneğinin x-ışınları kırınım desenleri 52
- Şekil 50. 860°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.001$ ) örneğinin x-ışınları kırınım desenleri. 53
- Şekil 51. 860°C’de tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.001$ ) örneğinin, tavlama süresinin fonksiyonu olarak, yüksek sıcaklık (2223) ve düşük sıcaklık (2212) fazlarının değişimi..... 53
- Şekil 52. 860°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.005$ ) örneğinin x-ışınları kırınım desenleri.... 54
- Şekil 53. 860°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.005$ ) örneğinin x-ışınları kırınım desenleri ... 55
- Şekil 54. 860°C’de tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.005$ ) örneğinin, tavlama süresinin fonksiyonu olarak, yüksek sıcaklık (2223) ve düşük sıcaklık (2212) fazlarının değişimi ..... 55
- Şekil 55. 860°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.01$ ) örneğinin x-ışınları kırınım desenleri... 56
- Şekil 56. 860°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.01$ ) örneğinin x-ışınları kırınım desenleri .... 57

Şekil 57. 860°C’de tavlanan $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$ ( $x=0.01$ ) örneğinin, tavlama süresinin fonksiyonu olarak, yüksek sıcaklık (2223) ve düşük sıcaklık (2212) fazlarının değişimi .....	57
Şekil 58. 860°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$ ( $x=0.1$ ) örneğinin x-ışınları kırınım desenleri.....	59
Şekil 59. 860°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$ ( $x=0.1$ ) örneğinin x-ışınları kırınım desenleri .....	60
Şekil 60. 920°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$ ( $x=0.5$ ) örneğinin x-ışınları kırınım desenleri .....	61
Şekil 61. 920°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$ ( $x=0.5$ ) örneğinin x-ışınları kırınım desenleri.....	62
Şekil 62. 940°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$ ( $x=1.0$ ) örneğinin x-ışınları kırınım desenleri .....	63
Şekil 63. 940°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$ ( $x=1.0$ ) örneğinin x-ışınları kırınım desenleri .....	64
Şekil 64. 950°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$ ( $x=1.5$ ) örneğinin x-ışınları kırınım desenleri.....	65
Şekil 65. 950°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$ ( $x=1.5$ ) örneğinin x-ışınları kırınım desenleri .....	66
Şekil 66. $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$ ( $x=0.0; 0.5; 1.5$ ) örneğinin DTA analizi.....	69
Şekil 67. $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$ a) $x=0.0$ b) $x=0.0005$ c) $x=0.001$ d) $x=0.005$ e) $x=0.01$ f) $x=0.5$ g) $x=1.0$ h) $x=1.5$ katkılı örneklerin genleşme eğrilerinin toplu görünümü .....	70
Şekil 68. $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$ a) $x=0.0$ b) $x=0.0005$ c) $x=0.001$ d) $x=0.005$ e) $x=0.01$ f) $x=0.5$ g) $x=1.0$ h) $x=1.5$ katkılı örneklerin genleşme eğrileri.....	71
Şekil 69. Sm1 adlı numuneden çekilen iz .....	74
Şekil 70. Sertlik ölçümünde örneğin F-d <sup>2</sup> değişimi .....	75
Şekil 71. $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$ a) $x=0.0$ b) $x=0.0005$ c) $x=0.001$ d) $x=0.005$ e) $x=0.01$ f) $x=0.1$ g) $x=0.5$ h) $x=1.0$ i) $x=1.5$ katkılı örneğinin SEM fotoğrafları .....	76

- Şekil 72.  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  a)  $x=0.0$  b)  $x=0.0005$  c)  $x=0.1$  d)  $x=0.5$  e)  $x=1.5$  katkılı örneklerin optik mikrografları ..... 80
- Şekil 73.  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  a)  $x=0.0$  b)  $x=0.0005$  c)  $x=0.001$  d)  $x=0.005$  e)  $x=0.01$  f)  $x=0.1$  g)  $0.5$  h)  $x=1.0$  ve i)  $x=1.5$  katkılı örneğin 130K'de normalize edilmiş öz direnç-sıcaklık eğrisi..... 84
- Şekil 74.  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  a)  $x=0.0$  b)  $x=0.0005$  c)  $x=0.001$  d)  $x=0.005$  e)  $x=0.01$  f)  $x=0.1$  katkılı örneğin 75-120 K arasındaki AC alınganlık ölçümleri ..... 85
- Şekil 75.  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  a)  $x=0.0$  b)  $x=0.0005$  c)  $x=0.001$  d)  $x=0.005$  e)  $x=0.01$  katkılı örneklerin alana bağlı kritik akım yoğunlukları ..... 87
- Şekil 76. Katkı miktarı ile teorik ve dört nokta ile elde edilen kritik akım yoğunluğunun değişimi..... 90



## TABLolar DİZİNİ

	<u>Sayfa No</u>
Tablo 1. Sm katkı miktarı ile kritik sıcaklık arasındaki ilişki .....	19
Tablo 2. Tb katkılı Bi-2212 sisteminde elektriksel parametrelerin değişimi .....	24
Tablo 3. Başlangıç kompozisyonunu oluşturan bileşiklerin saflık dereceleri ve atom ağırlıkları .....	29
Tablo 4. Numunelere uygulanan ısı işlemler. ....	31
Tablo 5. Katkı miktarı ile bazı parametreler arasındaki ilişki. ....	67
Tablo 6. Katkı miktarına göre genleşme katsayısı ile c-örgü parametresi arasındaki değişim. ....	73
Tablo 7. Katkı miktarı ile sertlik ve $F_0$ arasındaki değişim tablosu .....	75
Tablo 8. $Bi_{1.6}Pb_{0.4}Sr_2Ca_{2-x}Sm_xCu_3O_y$ numunesinin kritik geçiş sıcaklığı ve $\Delta T$ geçiş aralığı. ....	84
Tablo 9. Katkı ile kritik akım yoğunluğu arasındaki ilişki .....	90

## SEMBOLLER DİZİNİ

- $a, b, c$  : Örgü Parametreleri  
 $A$  : Örneğin kesit alanı  
 $d$  : Düzlemler Arası Mesafe  
 $d$  : Örnekteki izin köşegen uzunluğu  
 $F$  : Örneğe uygulanan kuvvet  
 $H$  : Dış manyetik Alan  
 $Hv$  : Vickers sertliği  
 $h, k, l$  : Miller indisleri  
 $I$  : Örnekten geçen akım  
 $I_H$  : Yüksek sıcaklık faz piklerinin şiddeti  
 $I_L$  : Düşük sıcaklık faz piklerinin şiddeti  
 $J_c$  : Kritik Akım Yoğunluğu  
 $M$  : Yazıcıdaki ölçü aralığı  
 $M$  : Miknatıslanma  
 $\ell_{20}$  : Örneğin oda sıcaklığındaki boyu  
 $l$  : Örneğin kontaklar arası mesafesi  
 $T_c$  : Kritik Sıcaklık  
 $T_p$  : Pik sıcaklığı  
 $V$  : Örneğe uygulanan gerilim  
 $V_{(2223)}$  : Yüksek sıcaklık hacimsel faz oranı  
 $V_{(2212)}$  : Düşük sıcaklık hacimsel faz oranı  
 $\alpha$  : Genleşme katsayısı  
 $\chi$  : Manyetik alınganlık  
 $\chi'$  : Manyetik alınganlığın reel kısmı  
 $\chi''$  : Manyetik alınganlığın imajiner kısmı  
 $\Delta\ell$  : Örneğin boyundaki değişim  
 $\rho$  : Elektriksel Özdirenc

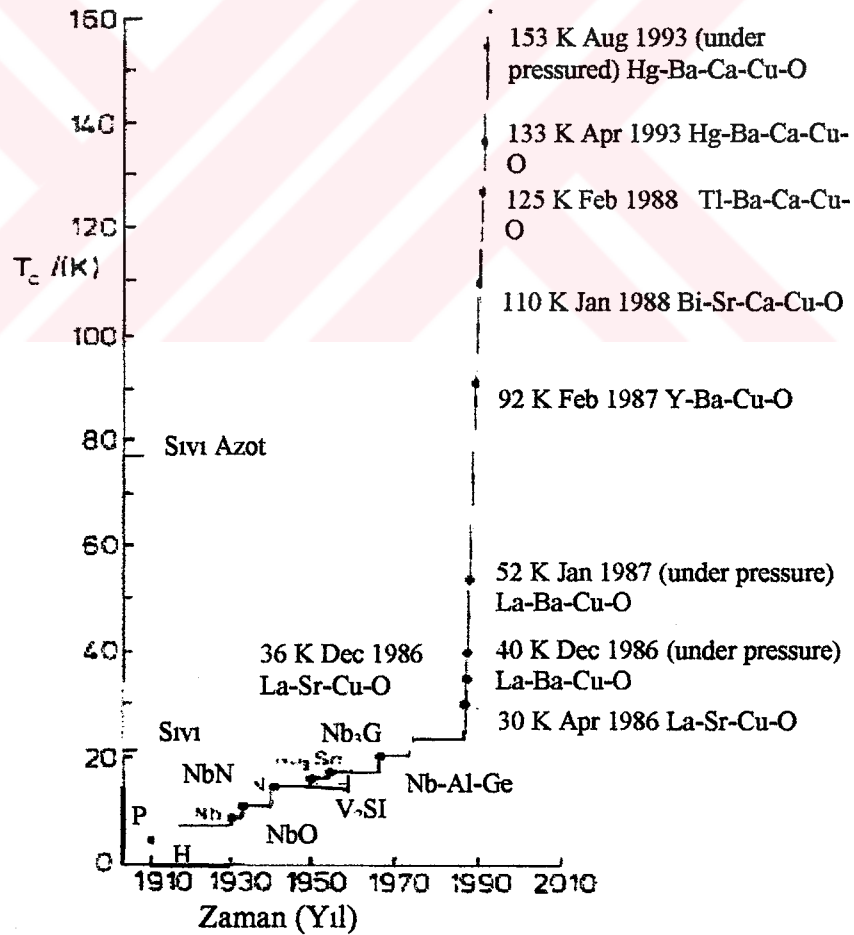
## 1. GENEL BİLGİLER

### 1.1. Giriş

Düşük sıcaklık süperiletkenler tarihi, 1908 yılında Hollandalı fizikçi Heike Kammerling Onnes'in kaynama sıcaklığı 4.2 K olan helyumu sıvılaştırması ile başlamıştır. Üç yıl sonra 1911 de Onnes ve yardımcılarında birisi metallere düşük sıcaklık dirençlerini incelerken süperiletkenlik olayını keşfettiler (Onnes, 1911). İlk olarak Platini incelediler. Platinin direnç sıcaklık eğrisinde 0 K e uzatılan (ekstrapole edilen) öz direncinin, örneğin saflığına bağlı olduğunu buldular. Daha sonra, damıtma yolu ile elde edilen çok saf sıvıyı incelemeye karar verdiler. Ancak onları bir sürpriz bekliyordu. Hg nin direncinin, 4.15 K de çok keskin bir şekilde düşerek, ölçülemeyecek kadar küçük değerlere ulaştığını gördüler. Onnes bu yeni olayı, kusursuz iletken anlamında süperiletken olarak adlandırmıştır. Helyumu sıvılaştırması ve maddelerin düşük sıcaklık özellikleri üzerine yaptığı çalışmalar Onnes'e "1913 Nobel Fizik Ödülünü" kazandırmıştır.

Yüksek sıcaklık süperiletkenler tarihi, 1986 yılında Bednorz ve Müller (Bednorz vd., 1986) tarafından, IBM Zürih Araştırma laboratuvarında, kritik geçiş sıcaklığı 30 K olarak ölçülen La-Ba-Cu-O (LBCO) sisteminin bulunmasıyla başladı. 1986 yılının sonlarına doğru Tanaka ve arkadaşları (Tanaka vd.,1987) La-tabanlı süperiletken Ba'nın yerine Sr'yi katarak kritik geçiş sıcaklığını 42.5 K olarak keşfettiler. Chu ve çalışma grubu (Chu vd., 1987) ise La-tabanlı süperiletken sisteminde 12 kbar basınç altında en yüksek kritik geçiş sıcaklığını 57 K olarak keşfettiler. 1987 yılının Şubat ayında Wu ve arkadaşları (Wu vd., 1987) Alabama Üniversitesi ve Houston Üniversitesinde yaptıkları çalışmada sıvı azot sıcaklığının üzerinde kritik geçiş sıcaklığı 90K olan Y-Ba-Cu-O (YBCO) sistemini keşfettiler. Bi-tabanlı süperiletken bileşikler Micheal ve arkadaşları (Maeda vd.,1988] tarafından  $Bi_2Sr_2Cu_1O_y$  başlangıç örneğiyle keşfedildi. Bu bileşikte kritik geçiş sıcaklığını 15-20 K olarak ölçtüler. Bi-tabanlı süperiletkenlerin  $Bi_2Sr_2Ca_{n-1}Cu_nO_y$  genel serisine uygun bir ( $n=1,2$ ) kristal yapıya sahip olduğu bulundu (Maeda vd.,1988; Torrance vd.,1988). Kritik geçiş sıcaklığını ise  $n=1$  için 15-20 K ve  $n=2$  için ise 75-80 K olarak buldular. 1988 yılının Ocak ayında Tarascon ve arkadaşları ise (Tarascon vd., 1988)  $n=3$  serisini keşfetmişlerdir. Bu sistemde de kritik geçiş sıcaklığını

110 K olarak bulundu. Böylece Tarascon ve arkadaşları Bi- tabanlı süperiletkenlerde en yüksek kritik geçiş sıcaklığına ulaşmış oldular. 1988 yılının Şubat ayında Sheng ve Hermann (Sheng vd., 1988) Tl-Ba-Ca-Cu-O sisteminde 100 K'nin üstünde kritik geçiş sıcaklığını gözlemlədiler. Yine 1988 yılında Hazen ve arkadaşları (Hazen vd.,1988) Tl-temelli süperiletkenleri  $Tl_2Ba_2Ca_{n-1}Cu_nO_{2n+4}$  şeklinde formüle etmişlerdir. Bu sistemde  $n=1$  için kritik geçiş sıcaklığı 80 K,  $n=2$  için kritik geçiş sıcaklığı 110 K ve  $n=3$  için kritik geçiş sıcaklığı 125 K olarak keşfetmişlerdir. Fakat Tl- temelli süperiletken çalışmalar Tl zehirli madde olduğu için fazla tercih edilmemektedir. 1993 yılının Nisan ayında Zürihte Hans Ott ve çalışma grubu (Ott vd.,1993) kritik geçiş sıcaklığı 133 K olan Hg-Ba-Ca-Cu-O sistemini keşfettiler. 1993 yılının Ağustos ayında ise Chu ve grubu (Chu vd., 1993) 150 kbar basınç altında Hg-Ba-Ca-Cu-O sisteminin kritik geçiş sıcaklığını 153 K olarak gözlemlədiler. Bu anlatılanlar Şekil 1'de toplu olarak gösterilmektedir.



Şekil 1. Süperiletkenliğin tarihsel gelişimi

Yüksek sıcaklık süperiletkenlerin keşfi bilim adamlarını çok heyecandırmıştır ve araştırmacıların bir çoğu bu konuya yönelmiştir. 1911-1970 yılları arasında 6579 tane süperiletkenlikle ilgili makale var iken bunların 36 tanesi de 1941-1945 yılları arasına aittir. 1989-1991 yılları arasında yani yüksek sıcaklık süperiletkenlerin keşfinden sonra bu sayı 15.000 olup ortalama günde 15 makale yayınlanıyor demektir (Ginzburg Vd., 2000).

Süperiletkenliğin bu tarihsel gelişimini Ginzburg (Ginzburg vd., 2000) 3 kısma ayırmıştır.

1. 1911-1941 arası düşük sıcaklık süperiletkenliğin keşfi ve ilgili çalışmalar
2. 1942-1986 süperiletkenlerin teorisi üzerine yapılan çalışmalar
3. 1987- günümüze kadar olan dönem yüksek sıcaklık süperiletkenliğin keşfi ve ilgili yapılan çalışmalar.

## 1.2. Yüksek Sıcaklık Süperiletken Malzemelerin Özellikleri

Bilim adamları, yıllarca yüksek sıcaklıklarda süperiletkenlik gösteren malzemeleri bulmak için araştırmalar yaptılar. Yüksek sıcaklık süperiletken cihazların sıvı azot sıcaklığında (belki yakın zamanda oda sıcaklığında ) çalışması ihtimalinin ortaya çıkması üzerine heyecanları biraz daha artıp çalışmalarını daha da yoğunlaştırmışlardır. Bu yoğunlaşmanın sebepleri şu şekilde açıklanabilir:

- I. Metal oksitlerin hazırlanması nispeten kolay olduğundan, bunlar daha küçük araştırma laboratuvarlarında incelenebilmektedir.
- II. Bu malzemeler, çok yüksek Tc değerlerine sahiptir ve bazılarının 100 T'dan daha büyük olduğu tahmin edilen kritik manyetik alanları vardır.
- III. Bunların özellikleri ve süperiletken davranıştan sorumlu mekanizmaların anlaşılması, teorikçiler için çok iddialı uğraş alanları olmaktadır.
- IV. Bu malzemeler büyük teknolojik öneme sahiptirler.

Yüksek sıcaklık süperiletkenleri Cu-O tabakalarına sahiptirler. Yüksek sıcaklık bakır-oksitlerin sıfır direnç ve kusursuz diamagnetizma özelliklerini sağladıkları bulunmuş ve bunlara ek olarak aşağıdaki özelliklere sahip oldukları bilinmektedir (Serway, cilt 3, 3. Baskı, 1996).

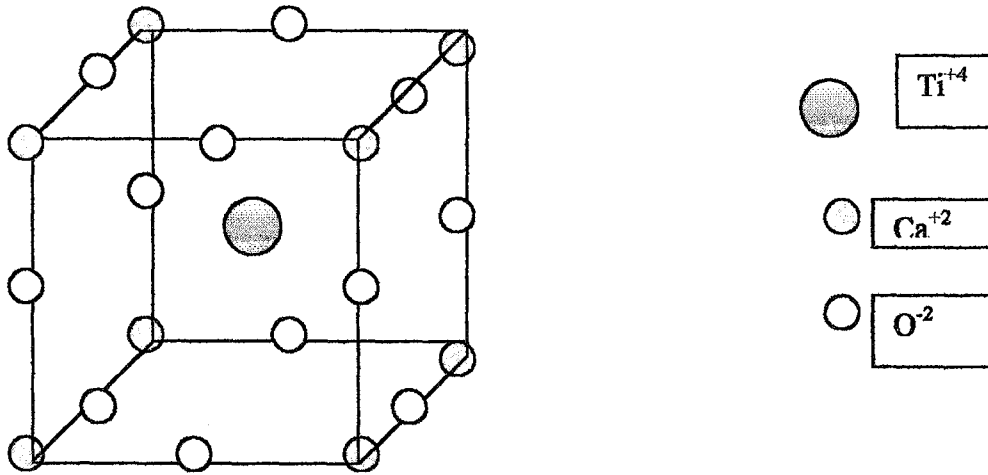
- a. Bu malzemeler, üst kritik alanları 100 T'dan daha büyük olan II. Tip süperiletkenlerdir.



- b. Aşırı derecede anizotropiktirler. Yani yöne bağımlı özelliklere sahiptirler. Bunun en belirgin delili; direncin, bakır-oksit düzlemlerine paralel doğrultuda çok küçük, bu düzleme dik doğrultuda çok büyük olmasıdır.
- c. Tanesel ve seramik yapıdadırlar. Seramik yapıda olmalarından dolayı esnek olmamak ve kırılgan olmak gibi istenmeyen mekanik özelliklere sahiptirler.
- d. Bakır-oksit tabakalarındaki atomların yerine başka atomların yerleştirilmesi süperiletkenliği bozmakta veya yok etmektedir. Başka konumlara yapılan yerleştirmelerin süperiletkenliğe etkisi küçüktür.
- e. Bulk (hacimli) yapıdaki malzemeler için kritik akım yoğunluğu düşüktür.

### 1.3. Perovskit Yapılı Bileşikler

Perovskit yapılu bileşiklerin bir çoğu  $ABO_3$  genel formülüne sahiptirler. 1987 yılında Bordet ve arkadaşları tarafından bu yapıya benzer atomik düzenlenmeyi  $CaTiO_3$  bileşiğinde gözlemlendi (Bordet vd., 1987). Bu yapı şekil 2'de görülmektedir. Burada küpün hacim merkezinde  $Ti^{+4}$ , küpün köşelerinde  $Ca^{+2}$  ve küpün kenarlarının orta noktalarında  $O^{-2}$  iyonları vardır. Perovskit yapılarında her iki metal atomuna karşılık üç oksijen atomu karşılık gelmektedir. Perovskit yapıyı oluşturan elementlerin bir araya gelmesi ile bazen de  $K_2NiF_4$  gibi  $A_2BO_4$  yapısına uygun bileşik ortaya çıkar. Yüksek  $T_c$  'li süperiletken bileşiğin perovskit yapısı da bu biçimdedir (Harris vd., 1987).



Şekil 2.  $CaTiO_3$  bileşiğinin perovskit yapısı

#### 1.4. $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4}$ ( $n=1,2,3$ ) Bileşiklerinin Kristal Yapıları

Bi-tabanlı süperiletkenler  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4}$  şeklinde formüle edilmektedir. Bunlar,  $n=1$ ,  $n=2$  ve  $n=3$  için sırasıyla;  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_6$  ( $n=1$ , 2201 fazı,  $T_c < 20$  K) (Micheal vd., 1987; Akimutsu vd., 1987),  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ( $n=2$ , 2212 fazı,  $T_c=85$  K) (Maeda vd., 1988) ve  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$  ( $n=3$ , 2223 fazı,  $T_c=110$  K) (Tarascon vd., 1988) şeklinde değişim gösterirler. Burada  $n$ , CuO düzlemlerinin sayısını göstermektedir.  $n$  arttıkça yani CuO düzlem sayısı arttıkça kritik geçiş sıcaklığı artmaktadır.  $n=1$  ve 2 serisinde tek faz elde etmek mümkün olmakla birlikte  $n=3$  serisinde tek faz elde etmek oldukça güçtür (Maeda vd., 1990).

##### 1.4.1. $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_6$ 'nin Kristal Yapısı ( $n=1$ )

Torrence ve arkadaşları (Torrence vd., 19889 tarafından yapılan çalışmalarda  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_y$  örneğinde kritik geçiş sıcaklığı 6 K olarak bulundu.  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_6$  (2201) örneğinde bir Cu-O, iki Sr-O ve iki Bi-O düzlemi vardır. Şekil 3'de görüldüğü gibi, Bi-O düzlemi tabanda, Cu-O düzlemi merkezde bulunmaktadır. Sr-O düzlemi ise Bi-O ile Cu-O düzlemi arasında yer almaktadır. Örneğin kristal yapısı, tetragonala çok yakın ortorombik yapıda olup, örgü parametreleri  $a=3.8097$  Å,  $c=24,600$  Å'dur. X-ışınları kırınımı deseninden karakteristik pikler  $2\theta=7,2^\circ$  ve  $21,9^\circ$  değerinde gözlenmiştir (Torardi vd., 1988) Şekil 4'de 2201 fazına ait kristal yapısının a yönünde iki boyutlu şematik gösterimi görülmektedir.

##### 1.4.2. $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ 'nin Kristal Yapısı ( $n=2$ )

Şekil 5'de 2212 fazının birim hücrelerinin kristal yapısı görülmektedir (Subramanian vd., 1988; Takayama vd., 1988; Tarascon vd., 1988). Bu fazın 2201 fazından farkı CuO düzlemleri arasına Ca düzleminin yerleşmesi ve iki tane CuO düzlemi olmasıdır. 2212 fazına sahip yapının kristal yapısı pseudo-tetragonal simetriye sahip olup örgü parametreleri  $a=b=5.4$  Å ve  $c=30.7$  Å'dur (Matsui vd., 1988). Kritik geçiş sıcaklığı ise 75-80 K arasındadır. X-ışınları kırınım desenlerinde karakteristik pikler  $2\theta=5.7, 23.2, 27.5$  derecelerinde gözlemlenmiştir. Horiuchi (Horiuchi, 1994) yaptığı çalışmada bu yapının birim hücrelerinde dört oluşum ve düzlemler arasında belirgin olarak  $(\text{BiO})_2/\text{SrO}/\text{CuO}_2/\text{Ca}/\text{CuO}_2/\text{SrO}/(\text{BiO})_2/$   $\text{SrO}/\text{CuO}_2/\text{Ca}/\text{CuO}_2/\text{SrO}/(\text{BiO})_2$  şeklinde bir simetrisinin olduğunu ve buna ilave olarak; bu düzlemleri iki kısma ayrılabilceğini

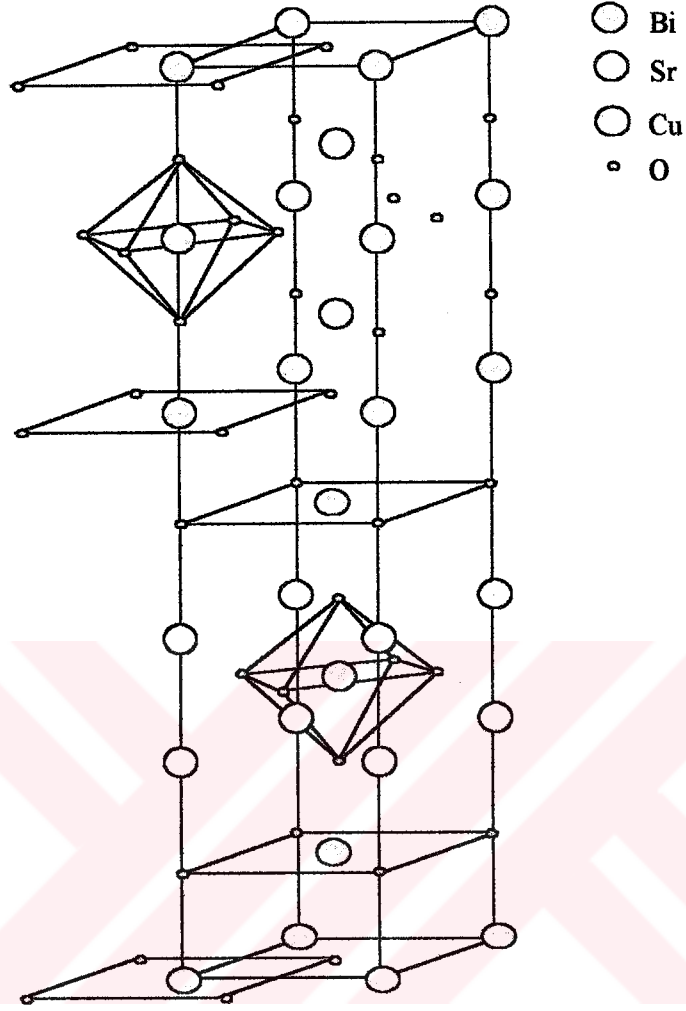
söylemiştir. Bu tabakalardan birincisi SrO/CuO<sub>2</sub>/Ca/CuO<sub>2</sub>/SrO düzlemidir ve perovskit yapıdadır. Süperiletkenliği sağlayan bu CuO<sub>2</sub> tabakalarıdır. İkinci tabaka ise SrO/(BiO)<sub>2</sub>/SrO tabakasıdır ve bu da NaCl yapısındadır. Şekil 6'da 2212 fazının kristal yapısı görülmektedir.

#### 1.4.3. Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub>' nin (2223) Kristal Yapısı ( n=3)

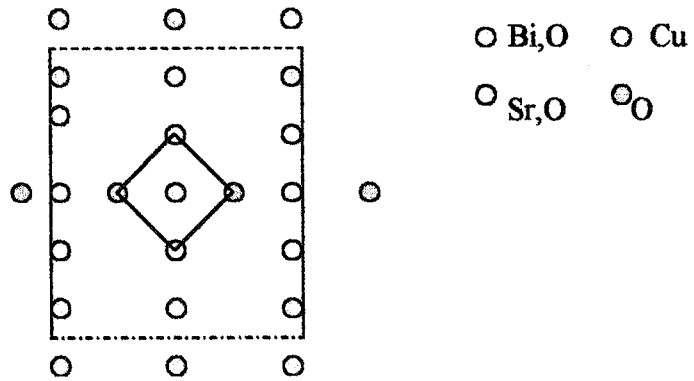
Maeda ve arkadaşları (Maeda vd., 1988) yaptıkları çalışmalarda (2223) örneğinin kritik geçiş sıcaklığını 110 K ve öz direnci de oda sıcaklığında 4 mΩ.cm olarak buldular. Koyama ve arkadaşları (Koyama vd.,1988) (2223) örneğinin kristal yapısının tetragonal yapıya sahip olduğunu buldular ve en küçük kareler metodunu kullanarak, örgü parametrelerini  $a=b=5.396 \text{ \AA}$  ve  $c=37.180 \text{ \AA}$  olarak hesapladılar. Karakteristik pikleri ise  $2\theta = 4.7^\circ$ ,  $23.9^\circ$  ve  $28.8^\circ$ ,  $33.8^\circ$  değerinde gözlenmiştir. (2223) örneğinin kristal yapısı; c-ekseni boyunca üç Cu-O, iki Ca düzlemi bulunmaktadır. (2212) kristal yapısına ilave olarak bir Ca ve birer Cu-O düzlemi gelmesi, c-eksenini 37.100 Å'a kadar yükseltmiştir (Tarascon vd., 1988). Şekil 7'de 2223 fazının kristal yapısı verilmektedir. Sr-O düzlemleri ile kenarlarında O bulunmayan Ca düzlemi arasında yer alan Cu atomları O atomlarıyla piramit yapıda bağlanmıştır. İki Ca düzlemi arasında yer alan Cu atomları ise etrafında bulunan dört O atomuyla kare şeklinde bağlanmıştır. Şekil 8'de ise 2223 fazının kristal yapısı görülmektedir.

#### 1.5. BPSCCO Örneğine ait X-ışını Kırınım Desenleri

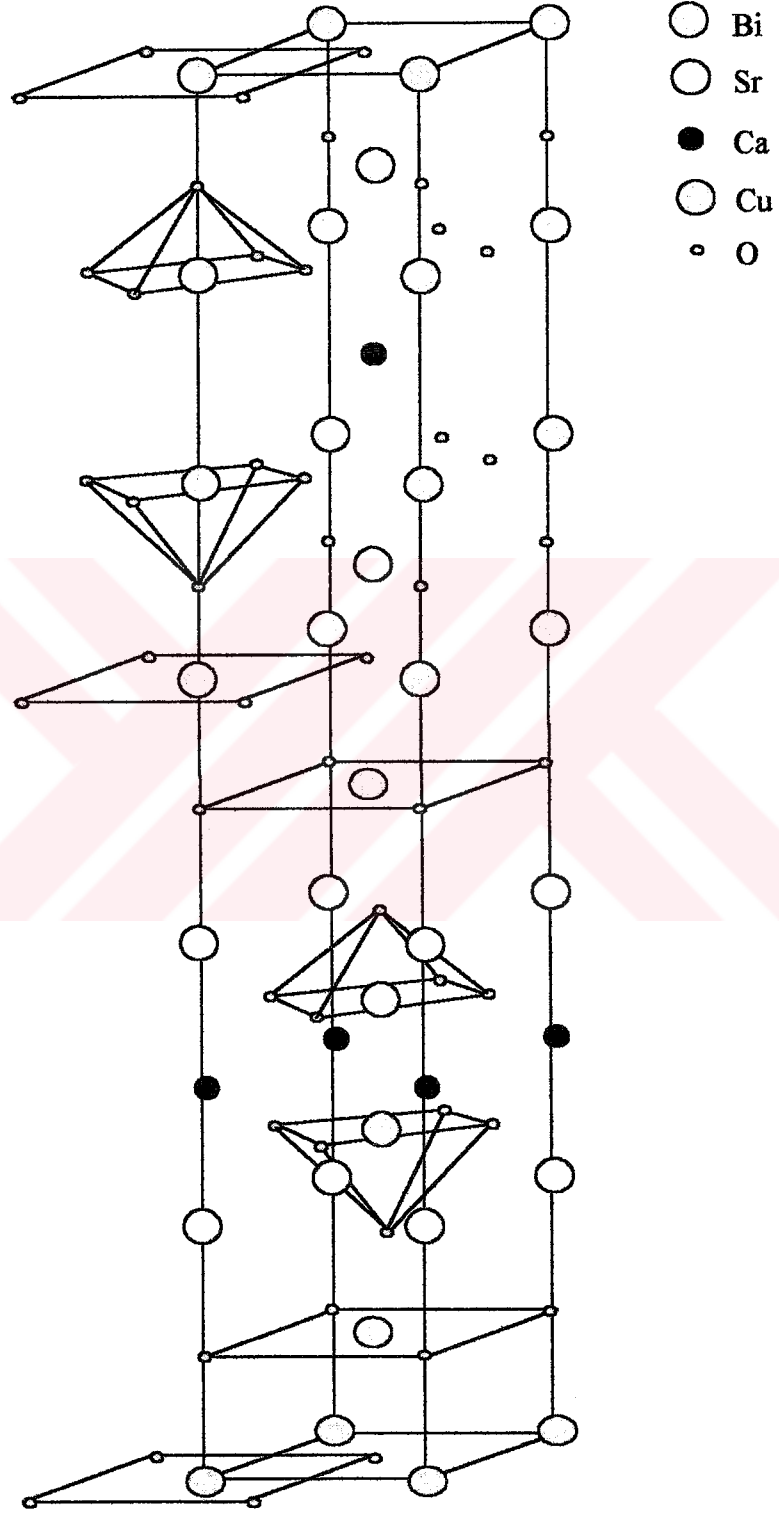
Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O ve Y-Ba-Cu-O gibi süperiletkenlerin kristal yapıları hakkında bilgi almak için X-ışını kırınım desenlerinden yararlanılır. İşte bu kırınım desenlerinden yararlanarak, süperiletkenin kristal yapılı olup olmadığı, kristal yapılı ise kristal türü, örgü parametreleri, tek fazlı mı yoksa çok fazlı mı olduğu hakkında bilgi verir.



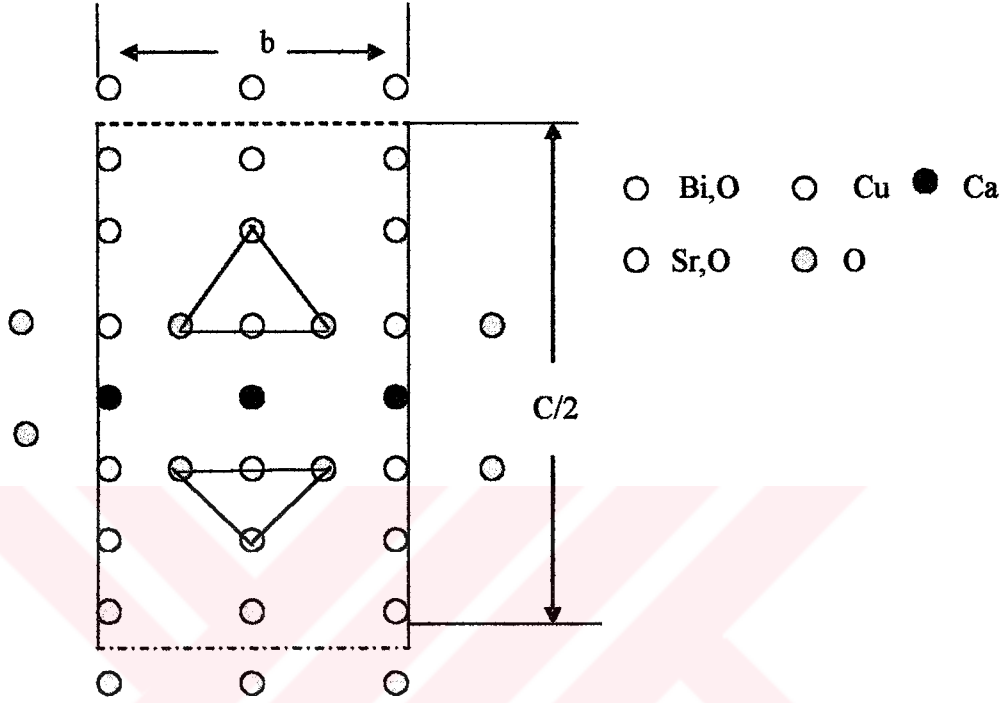
Şekil 3.  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_6$  'nin kristal yapısı



Şekil 4. 2201 kristal yapısının birim hücresinin a-yönünde izdüşümü



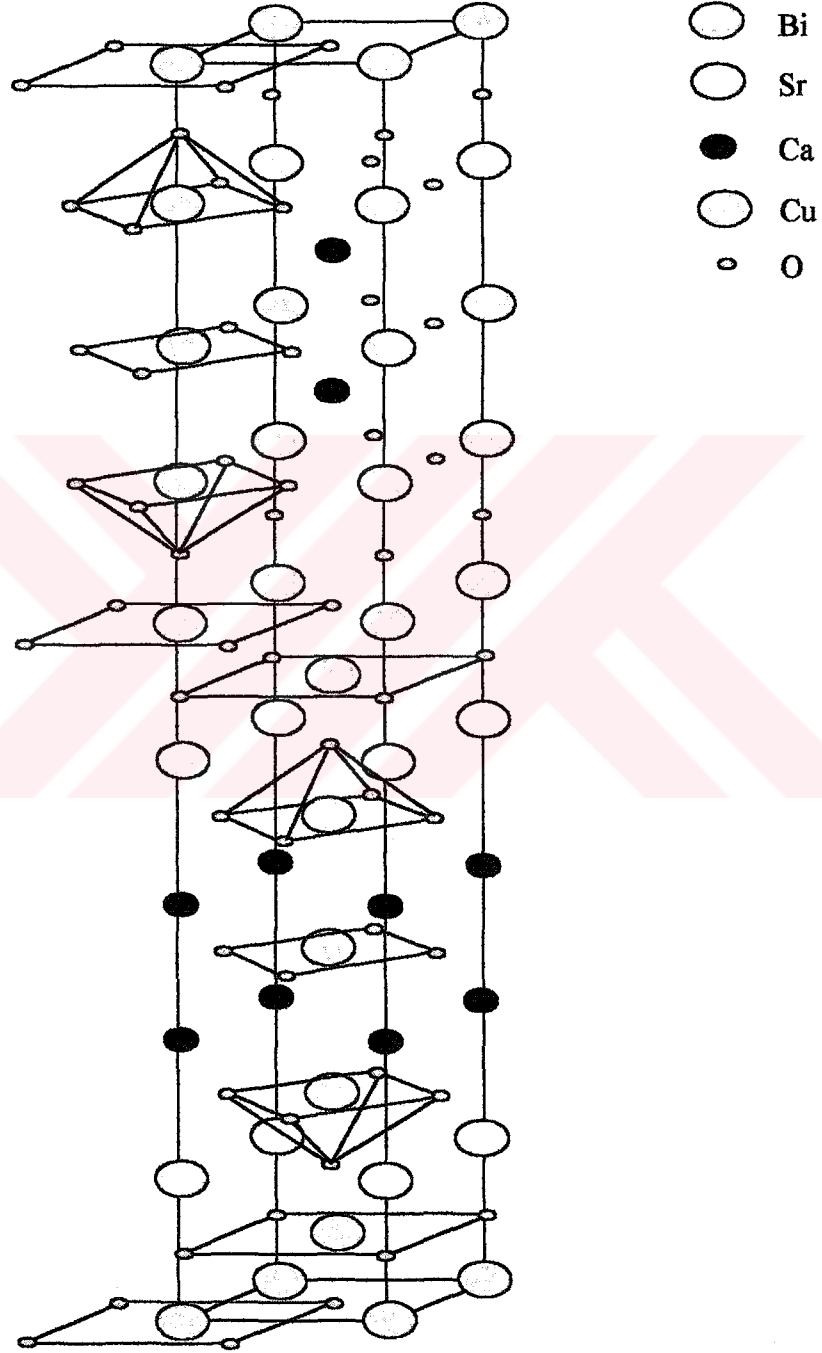
Şekil 5.  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_6$ 'nin kristal yapısı



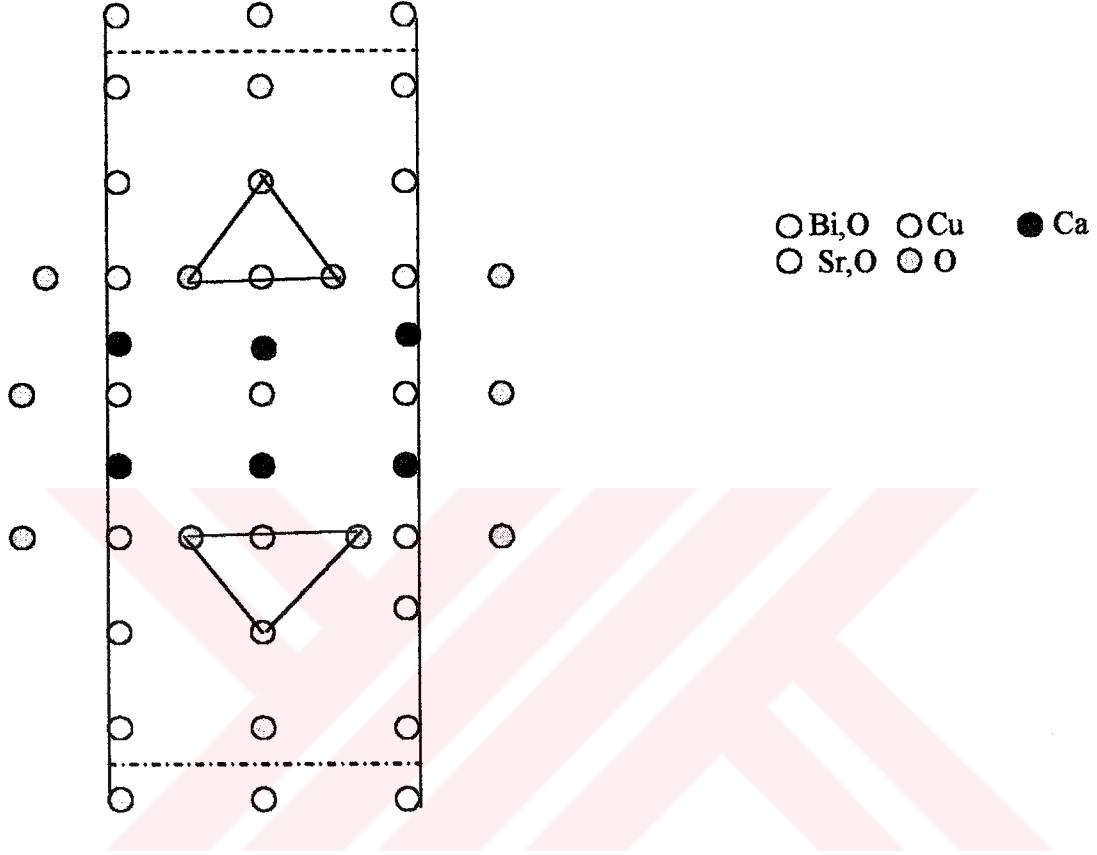
Şekil 6. 2212 kristal yapısının birim hücresinin a-yönünde izdüşümü

Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O süperiletkenlerin yapısı, Y-Ba-Cu-O süperiletkenlerin yapısına benzer (Lin vd., 1988). Bu iki tipin benzerliği, temelinde Cu-O düzlemlerinin olmasıdır. Tek faz olarak bunları hazırlamak çok zordur. Çok fazlı olarak Bi-temelli süperiletkenler iyi bilinmektedir (Huang vd., 1988; Green vd., 1988). Bi-tabanlı süperiletkenlerde üç türlü faz olduğu bilinmektedir: (a)  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{4+y}$  (2201) (Ginsley vd., 1988), (b)  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$  (2212) (Taracson vd., 1988; Zandbergen vd., 1988; Tallon vd., 1988) ve (c)  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+y}$  (2223) (Ginley vd., 1988; Taracson vd., 1988; Morosin vd., 1988). Bu fazlara ait geçiş sıcaklıkları sırasıyla 6-10, 75-80 ve 105- 110 K'dir. Bu çalışmaların yanında Bi-tabanlı süperiletkenlere Pb eklenerek tek faz elde edilmeye çalışılmış, elde edilememiş ama Pb katkısının iyileştirme yaptığı X-ışınları kırınımı desenlerinden anlaşılmıştır (Green vd., 1988; Cava vd., 1988). Japon bir grup araştırmacı (Maeda vd., 1990) tarafından yapılan çalışmalarda üretilen tek fazlı 2201,

2212 ve 2223 örneklerinin  $3^\circ \leq 2\theta \leq 70^\circ$  aralığında ölçüm yapmışlardır. Bu ölçüm sonuçları şekil 9'da görülmektedir.



Şekil 7.  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$  'nin kristal yapısı

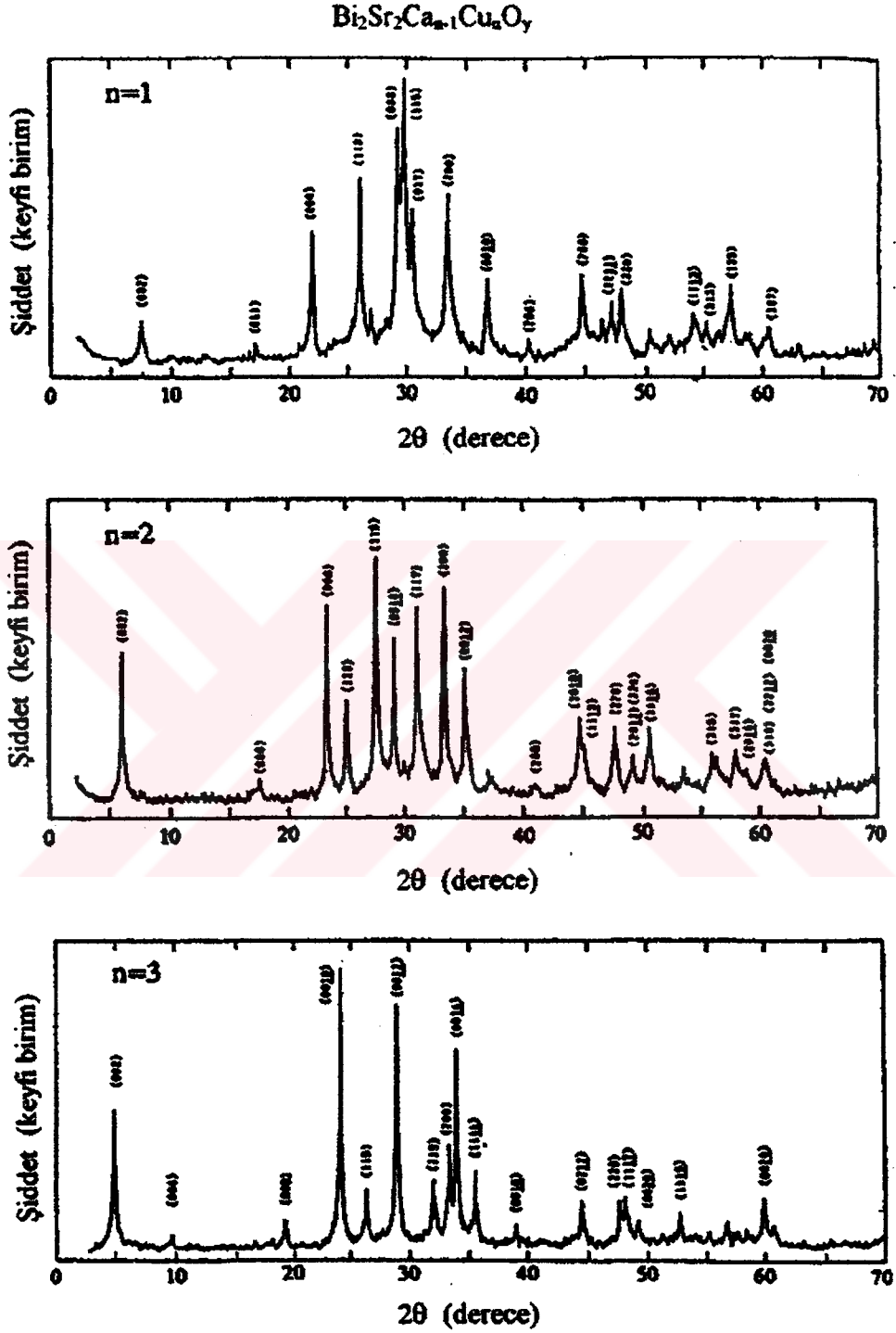


Şekil 8. 2223 kristal yapısının birim hücresinin a-yönünde izdüşümü

### 1.6 I. ve II. Tip Süperiletkenler

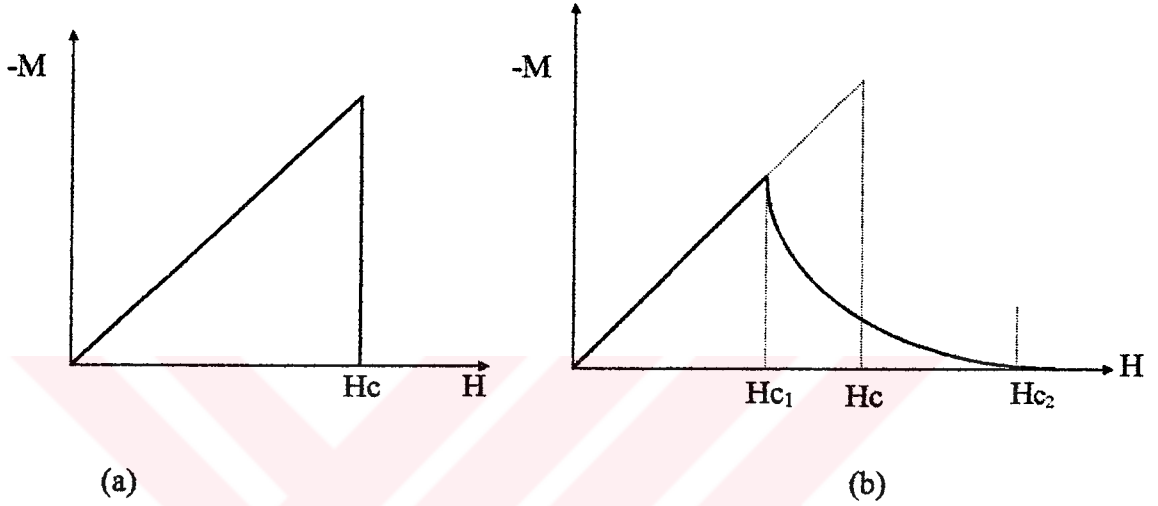
Kritik sıcaklığın altında uygulanan magnetik alan, süperiletkenlerde yüzey akımları oluşturur. Oluşan yüzey akımları magnetik alanın örnek içine girmesine engel olur. Bu olay kritik magnetik alan şiddeti olan  $H_c$ 'ye kadar devam eder. Alan  $H_c$ 'den büyük ise, yüzey akım yoğunluğu kritik değerini aşar ve magnetik alan örnek içine girer. Kritik magnetik alan şiddetine kadar örnek içindeki net magnetik alan sıfırdır. Bu davranış yalnızca I.tip süperiletkenler için geçerlidir (şekil 10a). Dolayısıyla bu tip Süperiletkenler için magnetizasyon (M) uygulanan alanla doğru orantılı fakat ters işaretlidir. Malzemenin magnetik duygunluğu ise  $\chi = -M/H$  olacaktır. II.tip süperiletkenlerde ise bu davranış daha





Şekil 9.  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_y$  ( $n=1,2,3$ ) saf örneklerin tek fazlı XRD kırınım desenleri

normal bölgelerden oluşur. Bu durum  $H_{c2}$  magnetik alan değerine kadar devam eder. Magnetik alan şiddeti  $H_{c2}$ 'ye ulaştığında magnetik alan tüm örnek içine girer ve süperiletken davranış bozulur (Şekil 10b). Yüksek sıcaklık Süperiletkenler de buna benzer magnetik davranış gösterirler.



Şekil 10. a) I.tip süperiletkenlerin magnetik davranışı, (b) II.tip süperiletkenlerin magnetik davranışı

### 1.7 BPSCCO Süperiletkenlerinde AC Magnetik Alınanlık

Magnetik alınanlık ölçümleri için şu ana kadar üç teknik geliştirilmiştir.

1. Kuvvet metodu (Blois vd.,1961; Brill vd., 1958)
2. İndirekt metotlar: NMR ve Faraday rotasyon tekniği gibi (Aygün vd., 1986)
3. İndüksiyon metodu (Goldfarb, 1991)
  - i.) DC indüksiyon metodu
  - ii.) AC indüksiyon metodu

Burada AC indüksiyon metodunu incelenecektir.

AC magnetik alınanlık ölçümleri yoluyla yüksek sıcaklık süperiletkenlerin bir çok özellikleri incelenebilir. Bu özelliklerin bazıları; sinterlenmiş taneli süperiletken örnekler, taneler arası zayıf bağlar, Josephson eklemleri, süperiletken içinde bulunması istenmeyen

bileşenler, tane sınırları ve taneler arası etkileşmeler olarak sıralanabilir (Komatsu vd., 1991).

Bi-2223 örneğine Ledbetter ve arkadaşları (Ledbetter vd., 1989)  $H=80A/m$  (10e)'lik bir alan ve 100 Hz'lik frekans altında ölçüm yapmışlardır (Şekil 3) . Ölçüm sonucunda,

$$\chi(T, H) = \chi'(T, H) - i\chi''(T, H) \quad (1)$$

şeklinde karmaşık bir ifade tanımlamışlardır. Burada; gerçel kısım olan  $\chi'(T,H)$ ; uygulanan alanla aynı fazda olan alınganlık bileşenini ve taneler ile taneler arası etkileşmelerle ilgilidir. Sanal kısım olan  $\chi''(T,H)$  ise; faz dışı bileşeni temsil etmektedir ve enerji kayıpları ile ilgilidir. AC alınganlığın sıcaklığa ve alan şiddetine kuvvetli bağlı olmasına rağmen frekansa bağımlılığı zayıftır. Örneğin Chen ve arkadaşları YBCO (123) örneğinde yaptıkları çalışmada frekansı 100Hz'den 1000Hz'e çıkarmışlardır buna karşın AC alınganlık eğrilerinin 0.2 K yüksek sıcaklığa kaydığı gözlenmiştir (Chen vd., 1989). Öz direnç ölçümlerinde  $T_c$ , normal durumdan süperiletken duruma geçiş sıcaklığıdır. Magnetik alınganlık ölçümlerinde ise perdeleme akımlarının oluştuğu sıcaklıktır.

Şekil 11'de  $Bi_{1.6}Pb_{0.4}Sr_2Ca_2Cu_3O_y$  yüksek sıcaklık süperiletken örneğine ait AC alınganlık eğrilerinde tanecik içi ve taneler arası etkileşmelerin belirlediği iki tür diamagnetik geçiş gözlenmektedir. I.diamagnetik geçiş tanecik içi, II.diamagnetik geçiş ise tanecikler arası etkileşmelerin sonucudur. Düşük sıcaklıklarda II.diamagnetik geçiş tamamlandıktan sonra Meissner etkisi tamamen oluşur ve örnek uygulanan alanı tamamen dışlar.  $T_{con}$  geçiş sıcaklığının üstündeki normal durum için çoğu yüksek sıcaklık süperiletkenleri paramagnetik davranış gösterirler ve  $\chi(T, H) \approx 10^{-3}$  gibi küçük değerler mertebesindedir. Tanecikler arası diamagnetik geçişin tamamlanması malzeme yüzeyinde dolaşan süperakımın tam bir kalkan oluşturması ile tarif edilir. Çok küçük alan değerleri ile düşük sıcaklıklarda II.diamagnetik alan tamamlanmaktadır. Genellikle  $\chi$ -T eğrisinde düşüşlerin olduğu bölgelerde  $\chi''(T,H)$ 'de pikler görülür. Bu piklerin en tepe noktaları, süperakımın süperiletken tanecik içerisine, birbirleriyle etkileşen tanecik gruplarına veya bütün örnek üzerine yayıldığını ifade eder.  $\chi''(T,H)$  pikinin altında kalan alan ve pik şiddeti geçiş sırasında soğurulan enerji ile orantılıdır.  $\chi''(T,H)$  piklerinin en tepe noktalarına karşılık gelen sıcaklık değerleri tanecikler arası süperiletken geçiş  $T_{cj}$  ve tanecik içi süperiletken geçiş  $T_{cg}$ , kritik sıcaklıklar olarak tanımlanmıştır.  $\chi''(T,H)$

eğrisinde tanecik içi geçişe ait soğurma piki, tanecik içi kritik magnetik alan değerinden yüksek alanlarda gözlenebilir (Nikolo vd., 1989). Tanecik içinde Meissner etkisi oluştuğunda, tanecik içine ait soğurma piki gözlenmez. Bu durumda I.diamagnetik geçişin başladığı sıcaklık  $T_{con}$  ve tanecik içi süperiletken geçiş sıcaklığı  $T_{cg}$  birbirine eşittir.

Örnek bar şeklindeki ölçülen AC alınganlık eğrilerinde iki diamagnetik geçiş bulunmasına karşın, toz haline getirilmiş örneklerde, yüksek sıcaklıkta gözlenen tanecik içinden kaynaklanan I.diamagnetik geçiş özelliğini korumakta, fakat II.diamagnetik geçiş ortadan kaybolmaktadır (Özdaş vd., 1992). Bu durum, söz konusu geçişin taneler arası etkileşimlerden kaynaklandığını açıkça ortaya koymaktadır.

AC. magnetik alınganlık ölçümü ile yüksek sıcaklık Süperiletkenler hakkında aşağıdaki genel bulgular elde edilebilir.

a. AC magnetik alınganlık  $\chi = \chi' - i\chi''$  gibi karmaşık bir büyüklüktür.  $\chi'$  alınganlığın gerçel kısmıdır ve diamagnetik geçişi temsil eder.  $\chi''$  ise diamagnetik geçiş sırasında soğurulan enerji ile orantılıdır.

b. Gerçel kısım örneğin içerdiği fazlar ve mikro yapıya bağımlı diamagnetik geçişler göstermektedir.

c. Diamagnetik geçiş aralıkları magnetik alan şiddeti ile orantılıdır. Azalan magnetik alan şiddeti ile geçiş aralığının keskin aralığı artar.

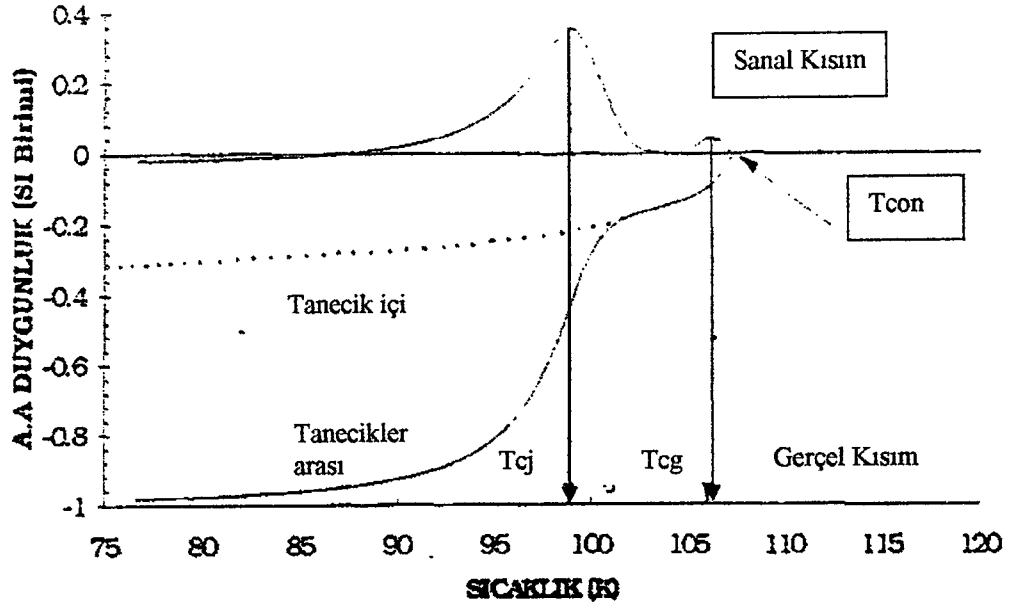
d. Malzemenin süperiletkenliğe geçiş sıcaklığı magnetik alan şiddetine bağlı değildir.

e. Malzemenin içerdiği fazların miktarları magnetik alınganlık eğrilerinden hesaplanabilir.

f.  $\chi''$  sanal kısım magnetik alan şiddetine bağlı olarak diamagnetik geçiş sırasında pozitif pik oluşturabilir.

g.  $\chi''$  pikinin maksimumuna karşılık gelen sıcaklık değeri, pikin büyüklüğü ve şekli, magnetik alan şiddetine bağlıdır.

h.  $\chi''$  pikinin maksimumuna karşılık gelen sıcaklık değeri ile kritik akım yoğunluğu belirlenebilir.



Şekil 11.  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  örneğine ait AC alınganlık ölçümü

### 1.8 Süperiletkenlerin Teknolojideki Kullanım Alanları

Süperiletkenliğin Kammerling Onnes tarafından keşfinden sonra bilim adamları teknolojideki pratik uygulamaları için araştırmalar yapmışlardır. Bilim adamlarının öncelikli amacı oda sıcaklığına yakın bir sıcaklıkta süperiletken özellik gösteren süperiletkenleri keşif etmektir. Çünkü ne kadar oda sıcaklığına yakın olursa kullanımı daha ucuz ve yaygın olabilir. Ancak teknolojide uygulanması hususunda pek çok önemli malzeme bilimi problemlerinin çözülmesi gerekmektedir. En zor olanı da kırılğan olan malzemelere şekil vermektir. Büyük ölçekli uygulamalar için tel ve şerit şeklinde malzeme elde etmek SQUID gibi küçük cihazlarda kullanılacak ince filmler üretmek, hepsi çözülmesi gereken teknik problemlerdir. Diğer önemli bir problem de seramik bileşiklerdeki düşük akım yoğunluğudur. Fakat bunlara rağmen istenilenler elde edilebilirse günlük hayatımızda önemli kolaylıklar sağlanacaktır.

Teknolojideki uygulamalarına bazı örnekler verecek olursak;

Barajlarda üretilen elektrik süperiletken teller yardımıyla nakil yapıldığında enerji kayıpları daha az olacaktır. Çünkü enerji iletimi için kullanılmakta olan bakır teller zamanla ısınır ve dolayısıyla kayıp miktarının artmasına sebep olur. Süperiletken teller

yapılabilirse enerji kayıpları minimuma indirilir. Böylece hem tasarruf yapılır hem de Milli servet korunmuş olur.

Süperiletkenlerin teknolojik olarak en büyük kullanımı elektronik sektöründe olmaktadır. Günlük hayatta kullandığımız bilgisayarlarda hız ve belleği arttırmak için kullanılmaktadır. Bilgisayar çipleri arasındaki bağlantılar, süperiletken filmlerle sağlanabilir. Bu şekilde çip büyüklükleri düşürülebilir ve sonuç olarak hızları artırılabilir.

Japonlar süperiletkenlerin özelliklerinden yararlanarak taşımacılık alanında kullanılması için araştırmalar yapmaktadırlar. Japonya'da bir vagona yerleştirilen süperiletken mıknatis kullanılarak, prototip bir tren inşa edilmiştir (soğutma olarak sıvı helyum kullanılmıştır). Bu uygulamada hareket halindeki tren, normal iletken bir ray üzerinde girdap akımı itmesi ile havada kalacaktır. Gelecekte bu sistem otoyollarda da kullanılmasına üzerine de araştırmalar yakın bir zamanda başlayacağı ümit edilmektedir.

Süperiletken mıknatislerin bir uygulaması da Manyetik Rezonans Görüntüleme (MRI) olarak adlandırılan teşhis aletidir. Bu teknik, son yıllarda tıbbi teşhiste çok önemli bir rol oynamaktadır. Bu cihazların, vücudun değişik kısımlarının görüntülenmesinde x-ışınlarına göre daha güvenli radyo frekanslı ışınım kullanılmaktadır.

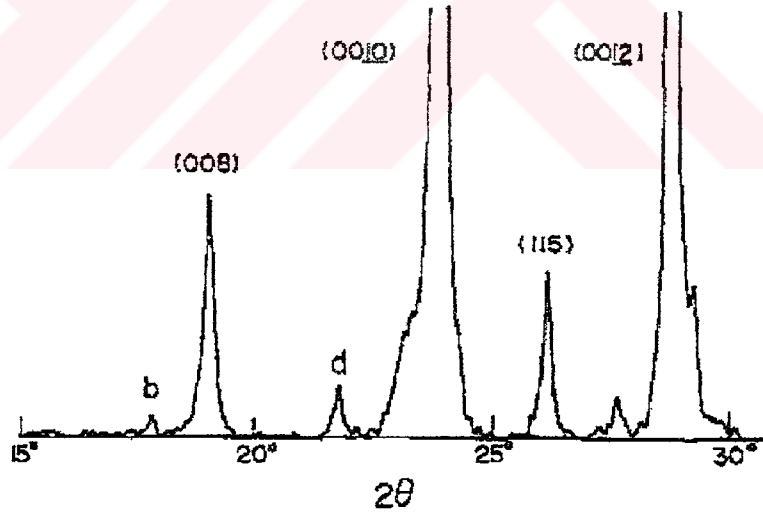
Josephson eklemlerinin en yaygın uygulamaları, SQUID (Superconducting Quantum Interference Device)'lerin kullanıldığı alanlardır. SQUID, manyetik alanların algılanması ve ölçümü için en duyarlı aygıttır. Bunun çalışma prensibi, akı kuantlaşmasına ve Josephson eklemlerinden gerçekleşen tünellemeye bağlıdır. SQUID'ler, tıbbi teşhis, jeolojik tahminler, ölçüm aletleri ve bunların yanı sıra gravite dalgalarının araştırılması gibi çeşitli uygulama alanları vardır.

Yüksek sıcaklık süperiletkenlerin teknolojik uygulamaları şu şekilde özetleyebiliriz.

1. Tıpta (Manyetik Rezonans Görüntüleme (MRI), Biyoteknik Mühendisliğinde)
2. Elektronikte (Parçacık Hızlandırma, SQUID, Transistorler, Josephson Junction Cihazlarında, Devre Bağlantı Malzemelerinde, Sensörlerde)
3. Ulaştırımda (MAGLEV Trenler)
4. Güç Üretiminde (Motorlarda, Jeneratörlerde, Enerji Depolamada, İletimde, Füzyon Olayında, Transformatörlerde ve İndüktörlerde).

### 1.9. Bi-Tabanlı Süperiletken Örneklere Yapılan Bazı Katkı Çalışmalarının Sonuçları

Yoshida ve arkadaşları (Yoshida vd., 1995) yaptıkları çalışmada  $(\text{Bi,Pb})_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$  süperiletken örneğine Ag katkısı yaptılar ve örnekleri oksitlerin birlikte çökertilmesi (Coprecipitated Oxalates) yöntemiyle ürettiler. Bu örneklere 3 farklı bir şekilde soğutma işlemi a) havada soğutma b) fırında soğutma c) sıvı azotta soğutma yapıldı. Araştırmacılar,  $835^\circ\text{C}$ 'de sinterlenen ve havada soğutulan katkı yapılmamış örneğin kritik sıcaklığını yaklaşık olarak 110 K, %2.8 wt ve %7.5 wt Ag katkılı örneklerin kritik sıcaklığını ise yaklaşık 90 K olarak buldular (Şekil 12,13,14). Bütün örneklerde kritik akım yoğunluğunu aynı değerde ölçtüler.  $840^\circ\text{C}$ 'de sinterlenen ve fırında soğutulan katkı yapılmamış örneğin kritik sıcaklığını yaklaşık 110 K ve %2.8wt Ag katkılı örneğin kritik sıcaklığını ise yaklaşık olarak 103 K ölçtüler.  $840^\circ\text{C}$ 'de sinterlenen ve sıvı azotta soğutulan katkı yapılmamış örneğin kritik sıcaklığını yaklaşık 90 K ve %2.8wt Ag katkılı örneğin kritik sıcaklığını ise yaklaşık 77 K, kritik akım yoğunluğu katkısızda  $1.5 \text{ A/cm}^2$  ve katkılı da ise  $1.5 \times 10^{-3} \text{ A/cm}^2$  olarak ölçtüler (şekil 15).



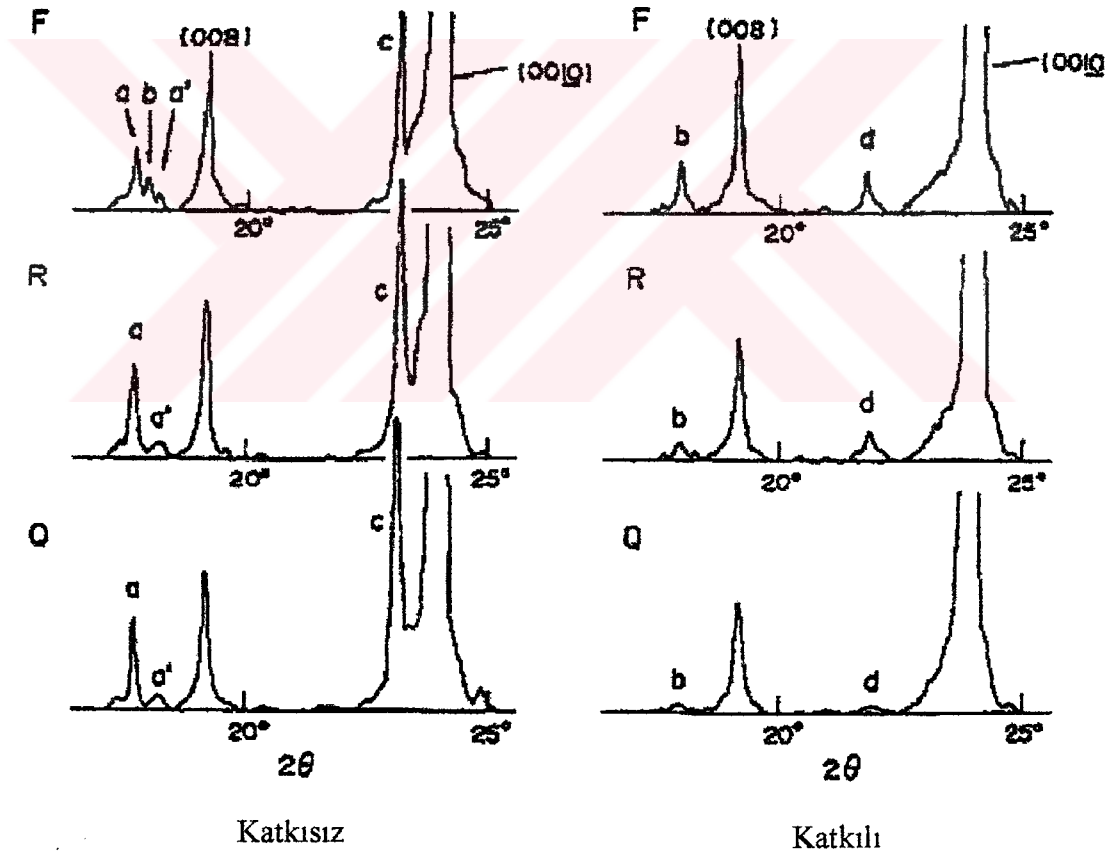
Şekil 12.  $850^\circ$ 'de 48 saat sinterlenen örneğin XRD analizi. b (3221) ve d (2201) safsızlık pikleri

Kishore ve arkadaşları (Kishore vd., 1995) katıhal tepkime metodu ile  $\text{Bi}_{1.7}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.00, 0.01, 0.02, 0.05, 0.075, 0.10, 0.20, 0.30, 0.50, 0.75,$

1.00, 1.50 ve 2.00) kompozisyonunda örnekler ürettiler. Yapmış oldukları ölçümler sonucunda, kritik sıcaklık değerleri Tablo 1'de verildi.

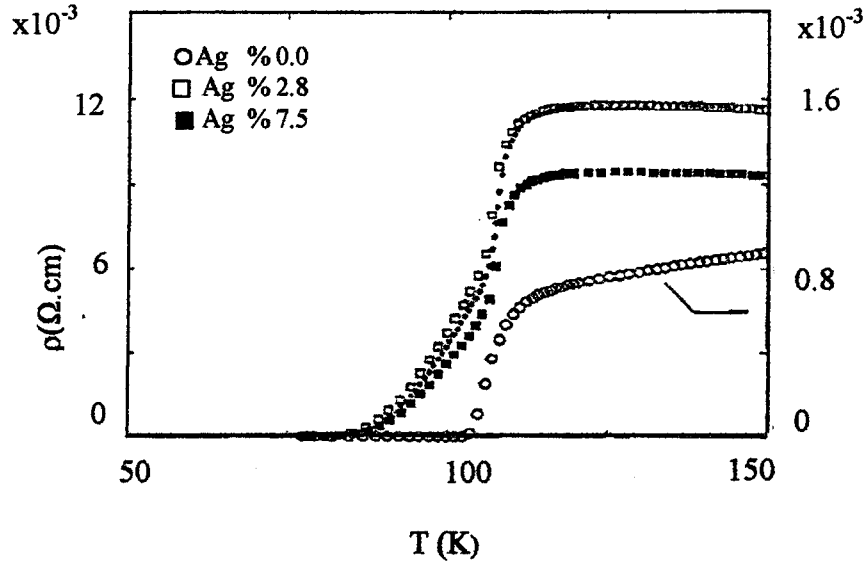
Tablo 1. Sm katkı miktarı ile kritik sıcaklık arasındaki ilişki

Sm miktarı (x)	Kritik sıcaklık (K) ( $T_c$ )
0,00	110
0,01	107
0,02	105
0,05	76
0,075	75
0,10- ve sonrası	----

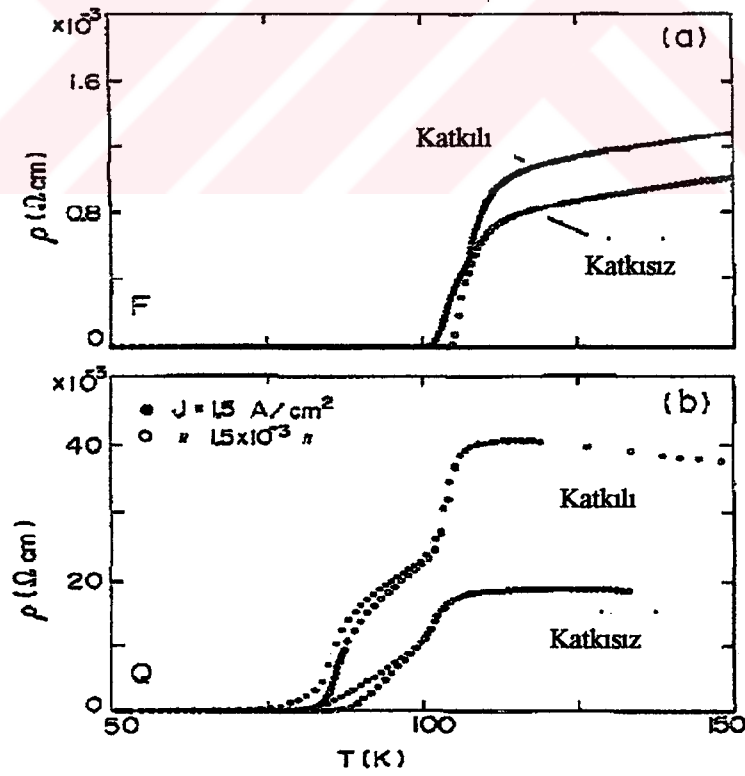


Şekil 13. 835°'de 120 saat sinterlenen ve %2.8 katkılı ve katkısız örnekler. Fırında soğutma (F), hava ortamında soğutma (R), quench (Q), Burada a ve  $a'$   $\text{Ca}_2\text{PbO}_4$  safsızlığını, b 3221 fazını ve d ise 2201 fazını göstermektedir



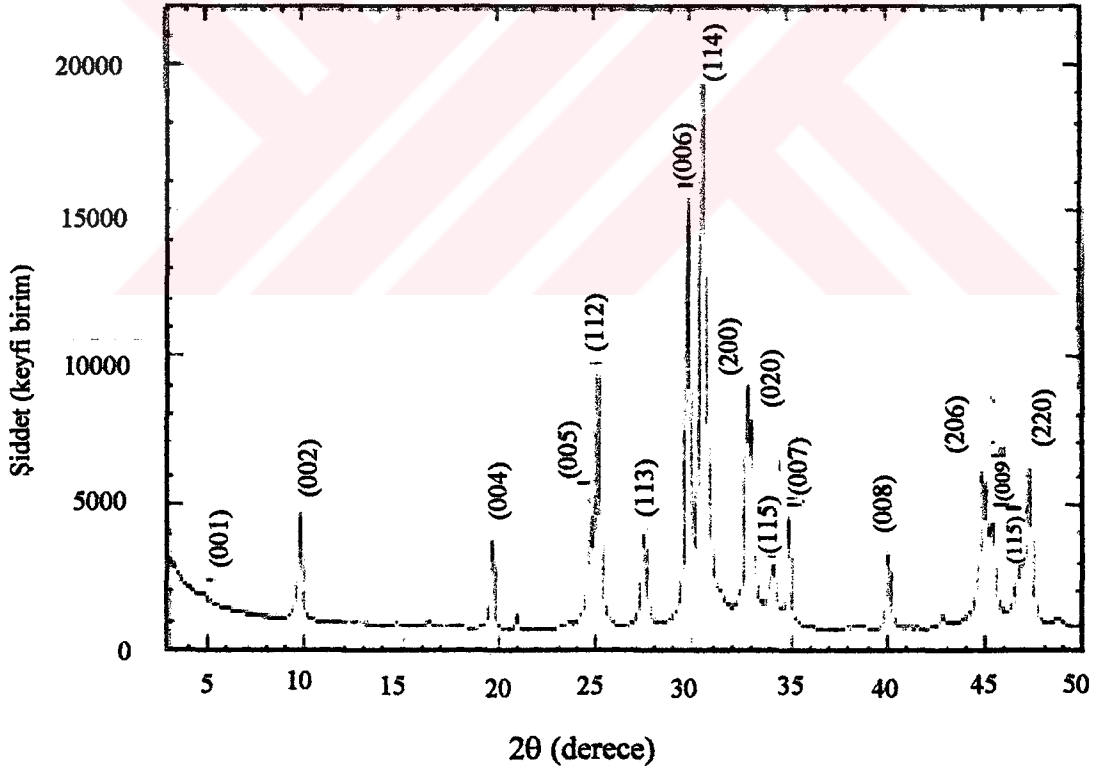


Şekil 14. 835°'de sinterlenen ve hava ortamında soğutulan örneğin sıcaklık-özdirenç değişimi



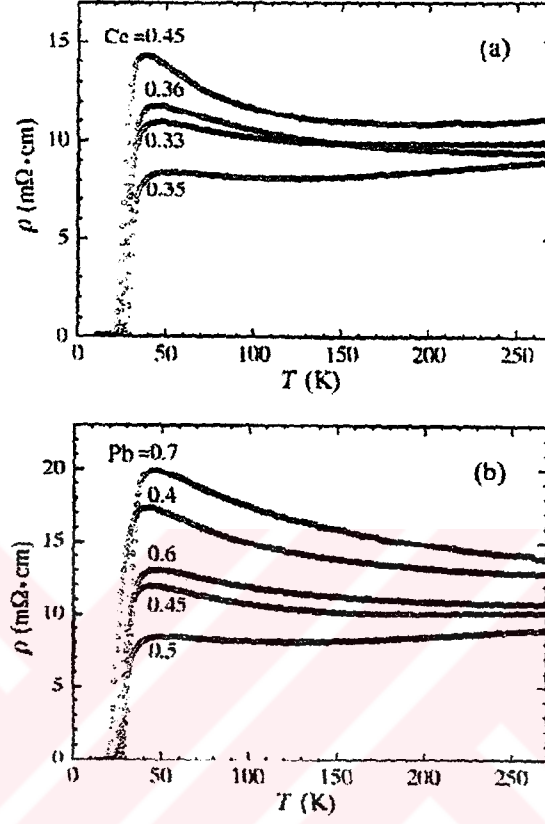
Şekil 15. 840°'de sinterlenen a) fırında soğutulmuş katlı ve katlısız örneğin b) quench yapılan örneğin sıcaklık-özdirenç değişimi

Sasakura ve arkadaşları (Sasakura vd., 1998) katıhal tepkime yöntemiyle  $\text{Bi}_{2-y}\text{Pb}_y\text{Sr}_2\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{Cu}_2\text{O}_z$  örneği ürettikler. Ürettikleri örnekte Ce' yi,  $0.2 \leq x \leq 0.4$  ve Pb' yi  $y \leq 0.8$  aralığında değiştirip ve bunlara karşılık gelen XRD analizini ve Tc ölçümlerini yaptılar. X-ışını kırınım desenleri sonucunda ortorombik yapı gözlemlendi ve örgü parametreleri  $a=5.456(5)\text{Å}$ ,  $b=5.414(8)\text{Å}$  ve  $c=17.98(0)\text{Å}$  olarak bulundu (Şekil 16). Kritik sıcaklık ölçümleri,  $\text{Bi}_{2-y}\text{Pb}_y\text{Sr}_2\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{Cu}_2\text{O}_z$  kompozisyonunda  $y=0.5$  (Pb sabit) sabit alınarak  $x=0.33, 0.35, 0.36, 0.45$  (Ce değişken), daha sonra ise  $x=0.35$  (Ce sabit) alınarak  $y=0.4, 0.45, 0.5, 0.6, 0.7$  (Pb değişken) olarak yapıldı (Şekil 17). Şekil 18'de ise  $x=0.35$  (Ce sabit) ve artırılan Pb miktarı ile kritik sıcaklık arasındaki ilişkisi verildi.

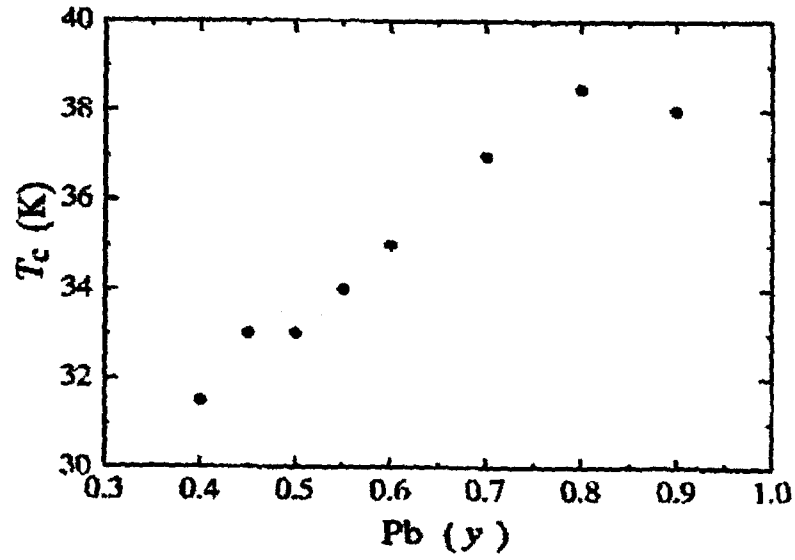


Şekil 16.  $\text{Bi}_{2-y}\text{Pb}_y\text{Sr}_2\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{Cu}_2\text{O}_z$  ( $y=0.2$  ve  $x=0.35$ ) örneğine ait XRD analizi

Singh (Singh vd., 1998) katıhal tepkime yöntemiyle ürettiği Sm ve Co katkılı  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{R}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ( $\text{R} = \text{Sm}$  ve  $\text{Co}$ ) örneği üzerinde XRD analizi ve kritik sıcaklık ölçümleri yaptı. X-ışını kırınım desenlerini Şekil 19 ve 20'deki gibi elde etti. Sm katkılı

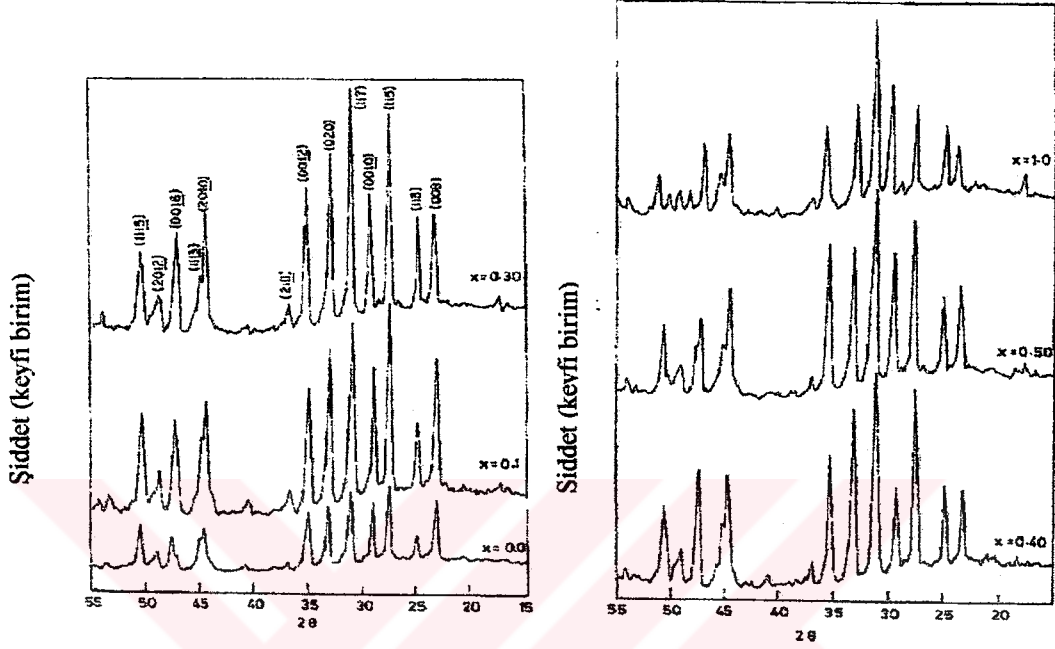


Şekil 17.  $\text{Bi}_{2-y}\text{Pb}_y\text{Sr}_2\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x\text{Cu}_2\text{O}_z$  örneğinin öz direnç-sıcaklık değişimi. a)  $y=0.5$  ve Ce miktarı değişken, b)  $x=0.35$  ve Pb miktarı değişken

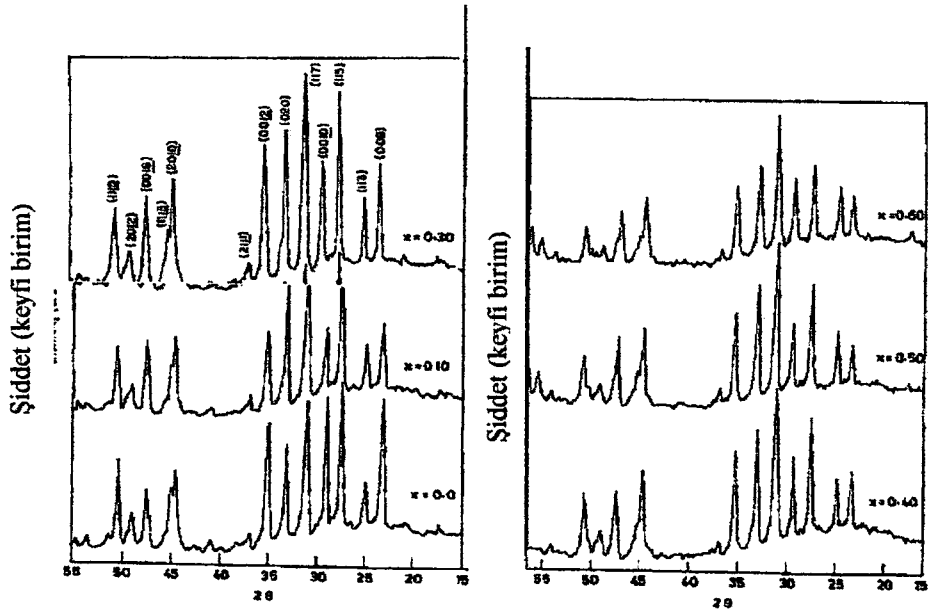


Şekil 18. Pb miktarı ile kritik sıcaklık değişimi

örneklerin, X-ışınları kırınımı desenlerinde 2212 fazına sahip olduğu, fakat Co katkılıda ise 2212 fazının yanında safsızlık fazının da olduğunu ve kritik geçiş sıcaklığının Sm ve Co katkısı ile düştüğünü gözledi (Şekil 21).

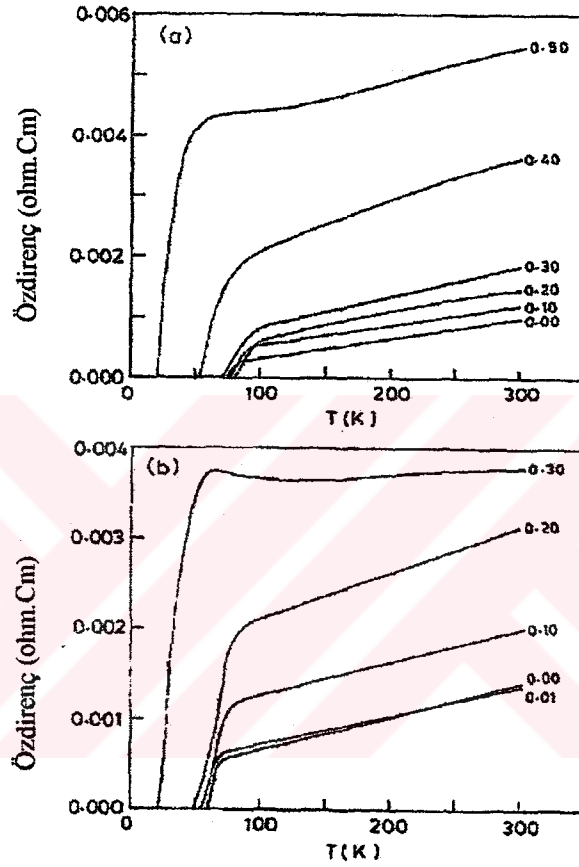


Şekil 19.  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+z}$  örneğine ait XRD analizi



Şekil 20.  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_{1.95}\text{Co}_{0.05}\text{O}_{8+z}$  sistemine ait XRD desenleri

Singh ve arkadaşı (Singh vd., 1999) katıhal tepkime yöntemi ile  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Tb}_x\text{Cu}_2\text{O}_y$  ( $x=0 - 0.6$ ) örneğini üretip, kritik geçiş sıcaklığını ölçtüler. Bu ölçüm sonucunda Tb katkısı ile kritik geçiş sıcaklığının düştüğünü ve oda sıcaklığındaki öz direncin ise arttığını gözlemlediler (Tablo 2).

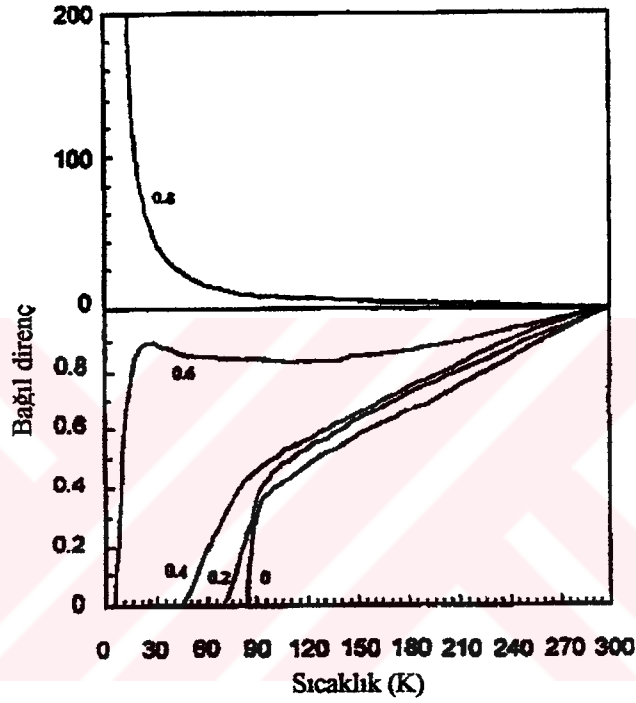


Şekil 21. Öz direnç-sıcaklık değişimi a)  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+z}$  ve b)  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_{1.95}\text{Co}_{0.05}\text{O}_{8+z}$

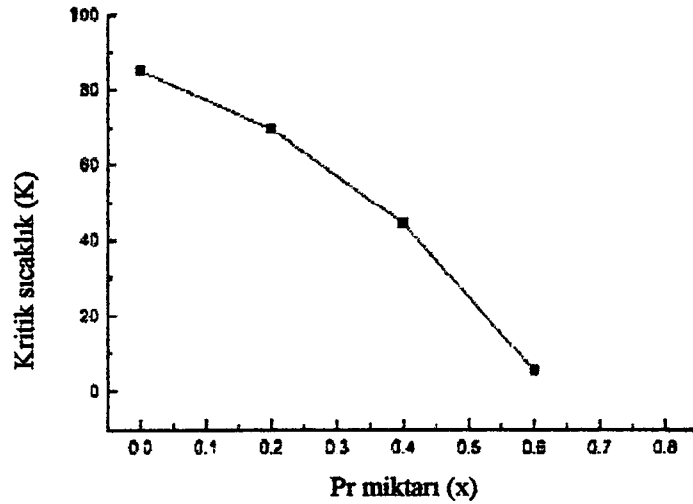
Tablo 2. Tb katkılı Bi-2212 sisteminde elektriksel parametrelerin değişimi

Örnek (x)	$\rho_{300}$ (m $\Omega$ .cm)	$\rho_0$ (m $\Omega$ .cm)	$T_c$ (K)
0	1,56	0,14	82
0,1	3,22	0,96	92
0,2	9,27	6,13	83
0,4	11,25	5,37	33

Li ve arkadaşları (Li vd., 2000) katıhal tepkime yöntemiyle Pr katkılı  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ( $x=0.0, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8$  ve  $1.0$ ) örneği ürettikler. Ürettikleri örneklerde kritik geçiş sıcaklığını ve Pr miktarının  $T_c$ 'ye bağlılığını ölçtüler. (Şekil 22,23) Ölçüm sonucunda Pr katkısının artması ile kritik sıcaklıkta düşme olduğunu ve katkı miktarı  $0.8$ 'den itibaren ise yarıiletken özellik gözlemlenildi.

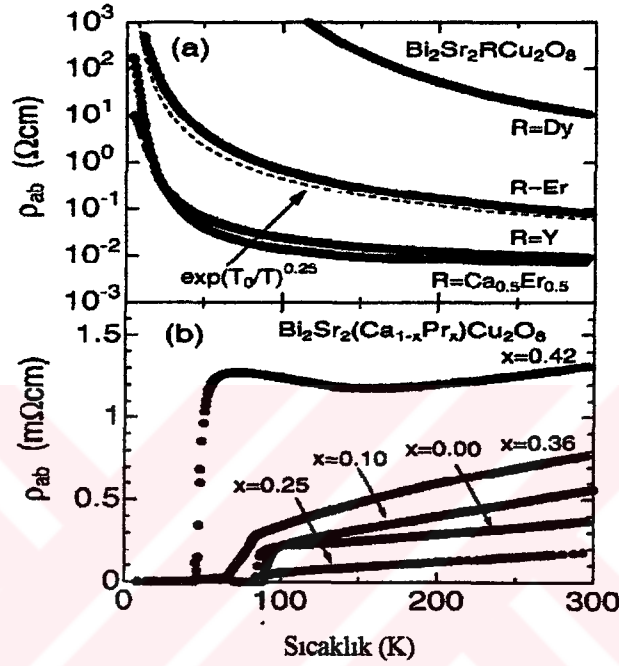


Şekil 22.  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Cu}_2\text{O}_8$  örneğine ait öz direnç-sıcaklık değişimi



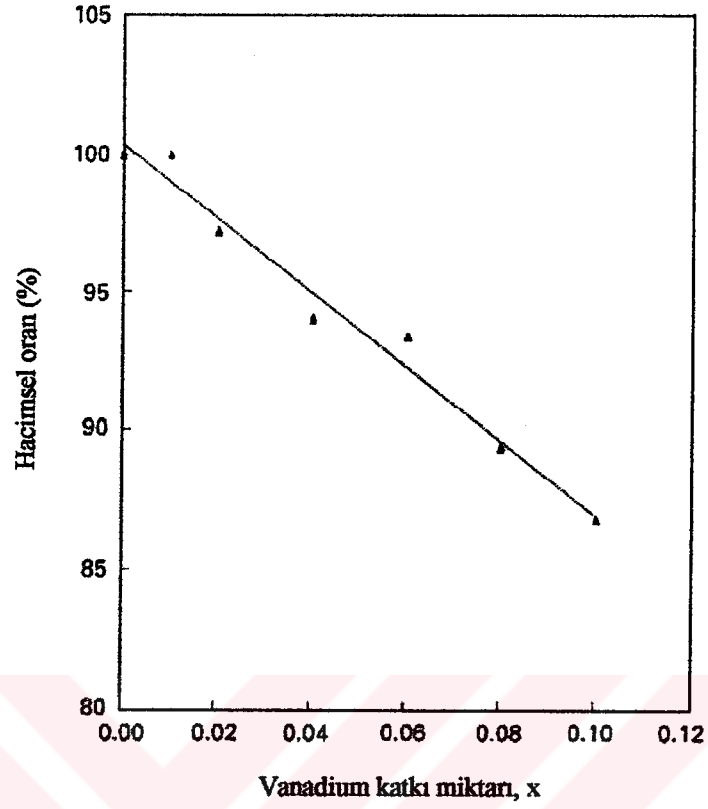
Şekil 23. Pr katkısının kritik sıcaklığa göre değişimi

Takemura ve arkadaşları (Takemura vd., 2000) iki türlü Bi-2212 tek kristalini biri  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{RCu}_2\text{O}_8$  ( $R = \text{Dy}, \text{Er}, \text{Y}$  ve  $\text{Ca}_{0.5}\text{Er}_{0.5}$ ) diğeri ise  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Cu}_2\text{O}_8$  ( $x=0, 0.10, 0.25, 0.36, \text{ve } 0.42$ ) olmak üzere, Self-Flux metodunu kullanarak hazırladılar. Bu üretilen örneklerde kritik geçiş sıcaklığını ölçtüler (Şekil 24).

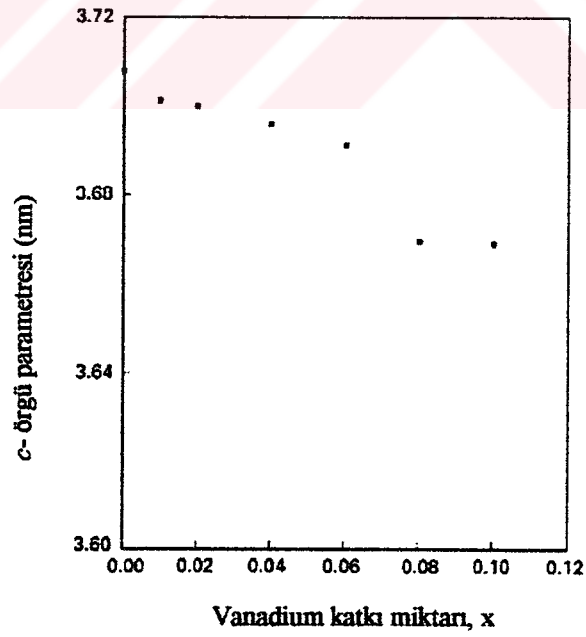


Şekil 24. a)  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{RCu}_2\text{O}_8$  ( $R = \text{Dy}, \text{Er}, \text{Y}$  ve  $\text{Ca}_{0.5}\text{Er}_{0.5}$ ) örneğine ait öz direnç-sıcaklık değişimi. b)  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Cu}_2\text{O}_8$  örneğine ait öz direnç-sıcaklık değişimi

Nkum (Nkum vd., 1998) yaptığı çalışmada  $(\text{Bi},\text{Pb})_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_{3-x}\text{V}_x\text{O}_y$  örneğini katıhal tepkime metodu ile ürettiler. Üretmiş oldukları örnekte yaptıkları ölçüm sonucunda katkı ile birlikte yüksek sıcaklık fazında (2223) azalma olduğunu ve c örgü parametresinde de azalma olduğunu buna karşın a ve b örgü parametrelerinde dikkate değer bir değişme olmadığını gözlemlemişlerdir (Şekil 25,26).



Şekil 25. Yüksek sıcaklık faz oranı ile Vanadium katkı miktarının değişimi



Şekil 26. c örgü parametresinin Vanadium katkı miktarı ile değişimi



## 2. YAPILAN ÇALIŞMALAR

### 2.1. Giriş

Seramik süperiletkenlerin hazırlanmasında en yaygın yöntemlerden biri katıhal tepkime yöntemidir (İlonca vd., 2000; Bolat vd., 2000). Seramik süperiletken gruplar Y-Ba-Cu-O, Bi-Sr-Ca-Cu-O, Tl-Ba-Cu-O, HgBaCaCuO'dir. Bu çalışmada, yüksek kritik sıcaklığa sahip olan BSCCO sisteminde Ca miktarını azaltarak Sm dopingi yapılan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_{10}$  ( $x=0.0, 0.0005, 0.001, 0.005, 0.01, 0.1, 0.5, 1.0, 1.5$ ) seramik süperiletkenler katıhal tepkime yöntemiyle üretildi. Katıhal tepkime yönteminin en önemli özelliği oksitleri karıştırma ve karışımları yüksek sıcaklıklarda uzun süre tutmaktır. Katıhal tepkime yönteminde ara öğütme (Singh, 1998), optimum tavlama süresi ve sıcaklığı (Asada vd., 1988) ve yavaş soğutma oranları çok önemlidir (Kase vd., (1990)). Bu bölümde, bu çalışmada kullanılan standart deneysel işlemlerin ve cihazların tanıtımı ve tartışılması yapılacaktır. Bu işlemler, örneklerin üretimi ve deneysel ölçümler aşaması olarak iki kısımda toplanabilir.

### 2.2. Örneklerin Üretimi

#### 2.2.1. $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_{10}$ ( $x=0.0; 0.0005; 0.001; 0.005; 0.01; 0.1; 0.5; 1.0; 1.5$ ) Bileşiğinin Hazırlanması:

$0.8\text{Bi}_2\text{O}_3 + 0.4\text{PbO} + 2\text{SrCO}_3 + (2-x)\text{CaO} + (x)\text{Sm}_2\text{O}_3 + 3\text{CuO} \longrightarrow \text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_{10}$   
denklemine göre başlangıç karışımı belirlendi.

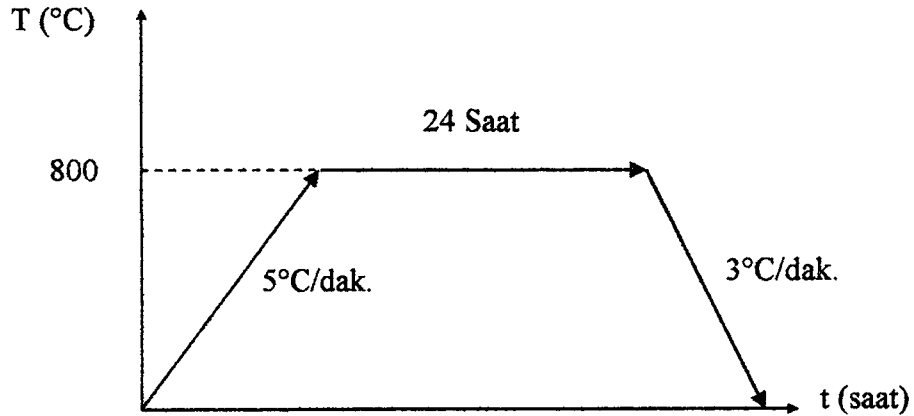
$\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_{10}$  başlangıç karışımını hazırlamak için kullanılan kimyasal maddeler ; "Aldrich Chemical Co." dan temin edildi (Tablo 3). Her bir katkı için 10 gr'lık örnek hazırlandı.

### 2.2.2. Toz Karışımın Kalsinasyonu

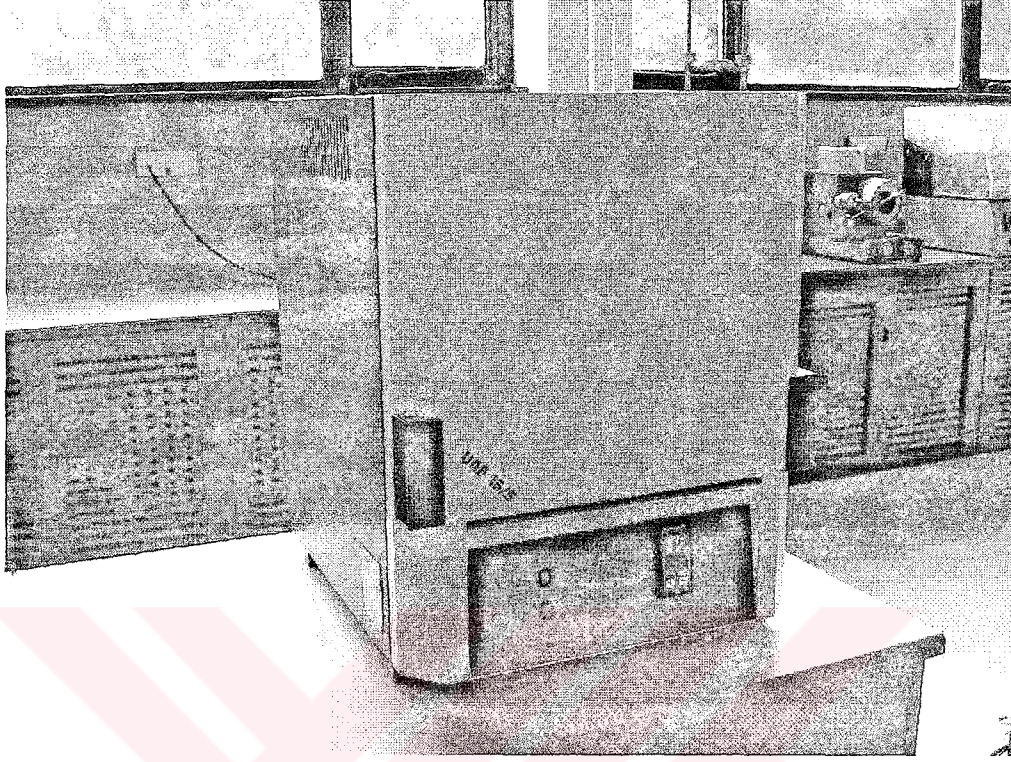
Uygun miktarlarda tartılan tozlar, homojen bir karışım elde etmek için, yaklaşık olarak beş saat kadar agat havanda elle karıştırıldı. Daha sonra bu karışım, alimüna ( $Al_2O_3$ ) potaya konularak, programlanabilir Euroterm 808 Kontrollü Lenton fırına yerleştirildi. Örnek konulan fırın, oda sıcaklığından  $5^\circ C/dak.$  hızla  $800^\circ C$  'ye kadar ısıtıldı ve bu sıcaklıkta 24 saat bekletildi. Daha sonra  $3^\circ C/dak.$  hızla oda sıcaklığına kadar soğutuldu (Şekil. 27, 28). Elde edilen bileşiğin siyah bir renkte ve külçeleşmiş olduğu görüldü. Katkılı örneklerle de aynı ısıl işlemler uygulandı. Fakat yüksek katkı örneklerin kalsinasyon sıcaklıkları farklı tutuldu. Kalsinasyon olayı, toz karışımın ilk ısıl-kimyasal işlemini oluşturmaktadır. Kalsinasyon işlemi yardımıyla oksit toz karışımının içerisindeki karbondioksitlerin sıcaklıkla ayrışması sağlanır.

Tablo 3. Başlangıç kompozisyonunu oluşturan bileşiklerin saflık dereceleri ve atom ağırlıkları

Bileşik	Saflık (%)	Atom Ağırlığı
$Bi_2O_3$	99,9	465,96
$PbO$	99,9	223,19
$SrCO_3$	98	147,63
$CaO$	99,9	56,08
$Sm_2O_3$	99,9	348,72
$CuO$	99,9	79,54



Şekil 27. Toz karışımı için uygulanan kalsinasyon işlemi



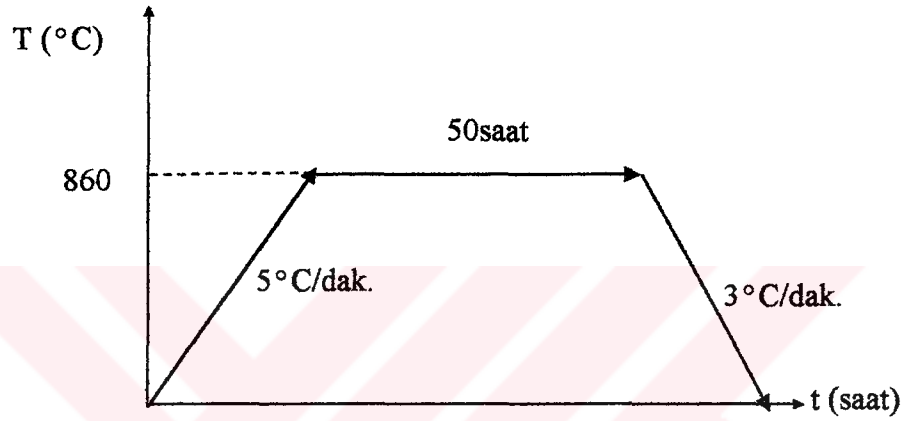
Şekil 28. Programlanabilir Euroterm 808 Kontrollü Lenton Fırın

### 2.2.3. Tabletlerin Sinterlenmesi

Kalsinasyon işleminden sonra başlangıç malzemesi ve katkı yapılmış olan malzemeler sinterleme işlemi için yaklaşık olarak 6-7 saat havanda elle karıştırılarak iyice öğütüldü. Öğütme işleminden sonra bu tozların her biri, 340 MPa basınç altında 13 mm çapında ve yaklaşık 1-1.5 mm kalınlığında tabletler haline getirildi. Süperiletken fazı elde etmek, karışımı oluşturan atomlar arasındaki bağları kuvvetlendirmek, polikristalleri meydana getirmek ve kristal kusurlarını azaltmak için tabletlerin sinterlenmesi gerekir.

Hazırlanan tabletler, oda sıcaklığında fırına konuldu ve 5°C/dak. hızla 860°C'ye kadar ısıtıldı. Bu sıcaklıkta 50 saat sinterlendikten sonra 3°C/dak. hızla oda sıcaklığına soğutuldu (Şekil.29). Oda sıcaklığına kadar soğutulmuş olan bu örnek fırından çıkartıldı. Ara öğütme işlemine tabi tutulan bu örnek elle havanda yaklaşık 6-7 saat karıştırıldı. Malzemenin bazı yapısal özelliklerini iyileştirmek için, örneğin kısmen homojenliği

sağlanmamışsa veya içinde gözenekler oluşmuş ise bunları kaldırılmak için ara öğütme işlemi uygulandı. Ara öğütme işlemi yapılmış bu örnek tekrar yukarıdaki formatta fırına konuldu ve ara öğütme işlemi 3 kez tekrarlandı. Bu örnekler toplam 200 saat ısıtma işlemine ve 3 kez ara öğütme işlemine tabi tutulmuş oldu. Bu şekilde ısıtma işlemine tabi tutulan örneklerin katkı oranları  $x = 0.0$  ve  $0.1$  arasında olanlardır. Sinterleme işleminden sonra tabletlerin siyah renkli oldukları gözlemlendi. Diğer katkı oranları için de ısıtma işlemleri yine yukarıda açıklandığı gibidir. Fakat sinterleme sıcaklıkları farklıdır (Tablo 4).



Şekil 29. Tabletlerin sinterlenme işlemi için uygulanan sıcaklık-zaman değişimi

Tablo 4. Örneklerle uygulanan ısıtma işlemleri

Katkı Miktarı (x)	Kalsinasyon sıcaklığı (°C)	Kalsinasyon süresi (saat)	Sinterleme sıcaklığı (°C)	Ara Öğütme sayısı	Toplam sinterleme süresi (Saat)
0.0	800	24	860	3	200
0.0005	800	24	860	3	200
0.001	800	24	860	3	200
0.005	800	24	860	3	200
0.01	800	24	860	3	200
0.1	800	24	860	3	200
0.5	850	24	920	3	200
1.0	880	24	940	3	200
1.5	900	24	950	3	200

### 2.3. Deneysel Ölçümler

#### 2.3.1. X-ışını Kırınım Ölçümleri

$\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_x$  başlangıç formülüne göre hazırlanmış tabletlerinin X-ışını kırınımı desenleri,  $\text{CuK}_\alpha$  ışını kullanılarak Rigaku D/Max-III C difraktometresinde  $3^\circ \leq 2\theta \leq 70^\circ$  aralığında elde edildi (Şekil 30). Ölçümler sırasında difraktometrenin çalışma şartları aşağıdaki gibi belirlendi:

Kaynak	:	Cu hedef
Gerilim	:	35 kV
Akım	:	25 mA
Tarama hızı	:	3°/ dak.
Örnekleme aralığı	:	0,02°

Bunlara ek olarak,  $\text{BiPbSrCaCuO}$ 'un karakteristik pik bölgelerinde ( $2\theta=4-6^\circ$ ) daha yavaş tarama hızı ile X-ışını kırınımı ( $0,2^\circ/\text{dak.}$  ve  $0.004^\circ$ ) ölçümleri yapıldı.

Tetragonal kristal örgüsüne sahip  $\text{BiPbSrCaSmCuO}$  örneklerinin örgü parametrelerini bulmak için aşağıdaki formül kullanıldı:

$$\frac{1}{d^2} = \frac{h^2}{a^2} + \frac{k^2}{b^2} + \frac{l^2}{c^2} \quad (1)$$

Burada, d düzlemler arası uzaklık; (hkl) Miller indisleri; a,b ve c örgü parametreleridir.

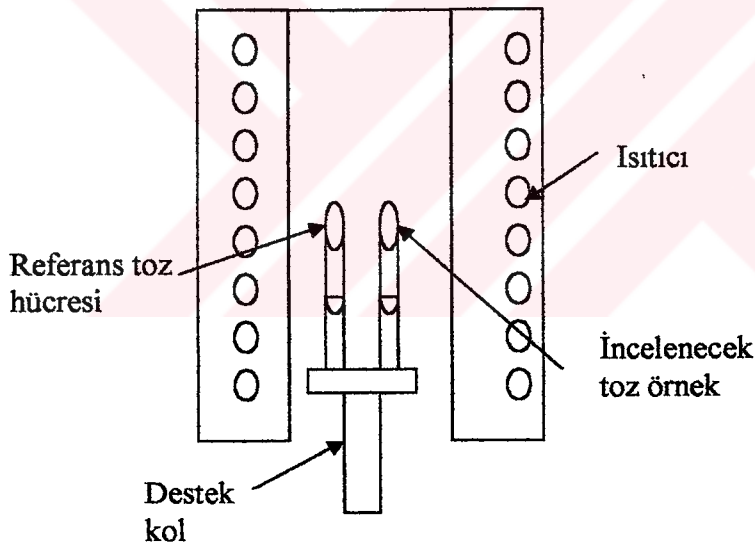


Şekil 30. Rigaku D/Max-III C marka X-ışını difraktometresi

### 2.3.2. DTA Ölçümleri

DTA ölçümleri, örneklerin katıhal faz geçişleri hakkında bilgilenmemizi sağlar. Bu ölçüm için Linseis marka DTA ölçüm cihazı kullanıldı. Sistem 0.1°C/dak.'dan 50°C/dak.'ya kadar ısıtma hızına sahip olup, fırın sıcaklık kontrolü  $20^{\circ}\text{C} \leq T \leq 1600^{\circ}\text{C}$  aralığında yapılabilmektedir. DTA ölçümü için hazırlanan tozlar oda sıcaklığından yaklaşık  $1000^{\circ}\text{C}$ 'ye kadar ısıtıldı. Bunun sonucunda örneklerin erime noktaları tayin edildi. Biz de bu sonuçları gözönünde tutarak örneklerin tavlama sıcaklıklarını belirledik. Ölçümler esnasında termoçift olarak Pt-Pt/Rh %13 kullanıldı. Referans tozu olarak  $\text{Al}_2\text{O}_3$  kullanıldı (Şekil 31).

DTA ölçümleri, Karadeniz Teknik Üniversitesi Jeoloji Mühendisliği bölümünde yapıldı.

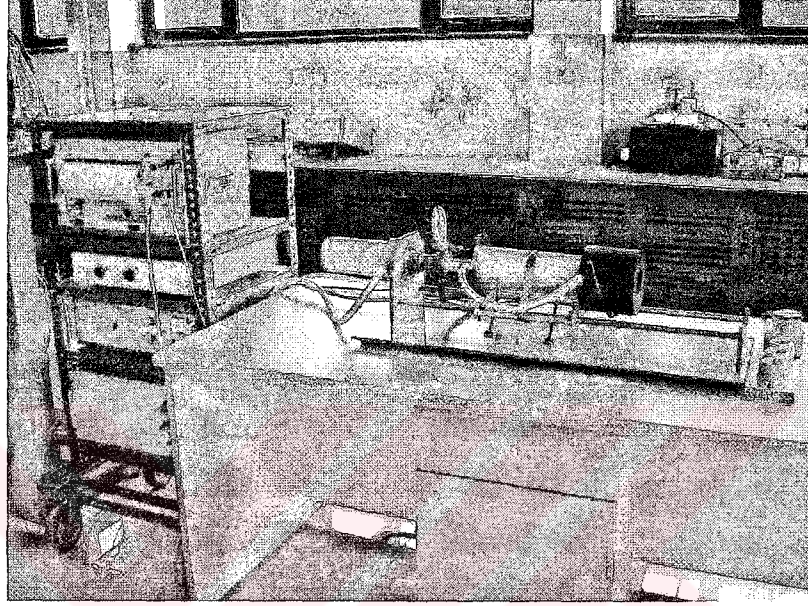


Şekil 31. DTA cihazının şematik gösterimi

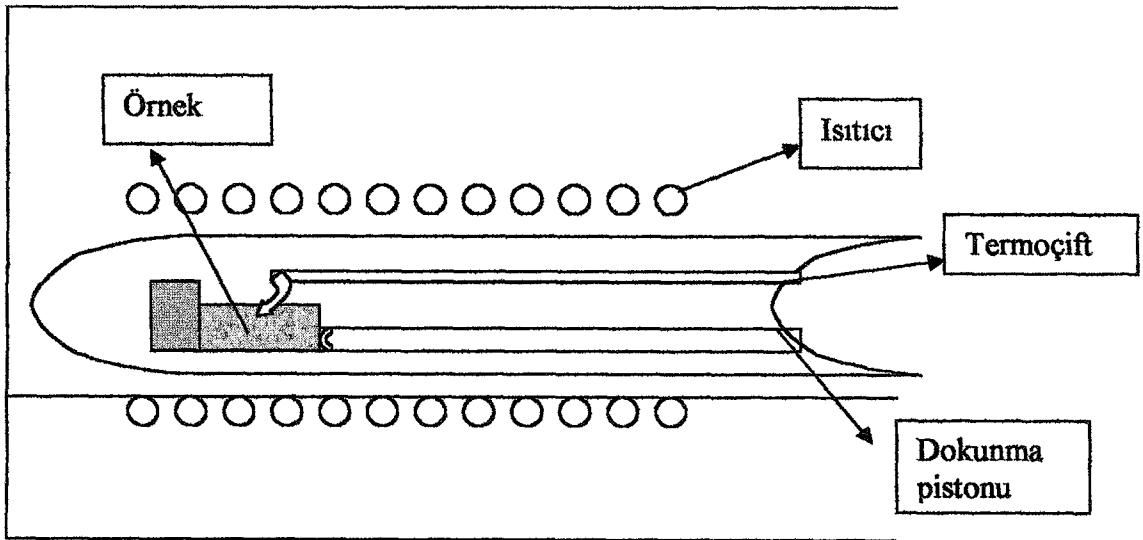
### 2.3.3. Dilatometrik Ölçüm

Örneklerin genleşme katsayı ölçümleri Şekil 32'de görülen ve duyarlılığı  $\Delta l / l_{20} = 10^{-5}$  olan Linseis L75 marka indüktif dilatometre kullanılarak gerçekleştirildi. Ölçümler esnasında alüminadan yapılmış örnek tutucu ve dokunma pistonu ile Pt-Pt/Rh %10

termoçift kullanıldı. Sistem  $0.1^{\circ}\text{C}/\text{dak.}$  ile  $50^{\circ}\text{C}/\text{dak.}$  arasında deęişen sıcaklık artış hızıyla ölçme yapabilme ve  $1200^{\circ}\text{C}$ 'ye kadar çıkabilme özelliğine sahiptir. Biz ölçümlerimizde  $5^{\circ}\text{C}/\text{dak.}$  çıkış ve iniş hızıyla, oda sıcaklığı ve  $800^{\circ}\text{C}$  ölçüm aralığını seçtik. Sistemin şematik gösterimi Şekil 33'de görülmektedir.



Şekil 32. Linseis L75 dilatometrik ölçüm cihazı



Şekil 33. Dilatometrik ölçüm devresinin şematik gösterimi

### 2.3.4. Sertlik Ölçümleri

Bir malzemenin çizilmeye, kesilmeye, aşınmaya ve delinmeye karşı gösterdiği dirence sertlik denir. Bilimsel anlamda ise, bir malzemenin dislokasyon hareketine veya plastik deformasyonuna karşı gösterdiği direnç sertlik olarak ifade edilir. Sertlik deneyinde, bir malzemenin yüzeyine batırılan bir uca veya kesici takıma karşı gösterdiği direnç ölçülür. Batıcı uçlar bilye, piramit veya koni biçiminde olup, genellikle sertleştirilmiş çelik, sinterlenmiş tungsten karbür veya elmas gibi, sertliği deney malzemesinin sertliğinden çok daha yüksek malzemelerden yapılır. Standart deneylerin çoğunda yük, batıcı ucu malzeme yüzeyine dik doğrultuda ve yavaş yavaş bastırarak şekilde uygulanır. Sertlik ölçümünde dikkat edilmesi gereken bazı hususlar vardır. Örneğin; sertlik örneklerinin, ölçme ve oturma yüzeylerinin düzgün birbirine paralel olmaları gerekir. Sertlik örneğinin kalınlığı, iz derinliğinin en az 10 katı olmalıdır. Batıcı uç, örnek kenarlarına yakın bölgelere uygulanmamalı ve izler arasında iz çapının veya ortalama köşegen uzunluğunun en az üç katı kadar bir uzaklık bulunmalıdır. Malzemenin sertliği, uygulanan yüke bağlı olarak, ya örnek yüzeyinde oluşan izin yüzey alanına, yada batıcı ucun batma derinliğine göre belirlenir. Brinell ve Vickers sertlikleri uygulanan yükün örnek yüzeyinde oluşturduğu kalıcı izin yüzey alanına bölünmesiyle bulunur. Günümüzde en çok Brinell, Vickers ve Rockwell sertlik ölçme yöntemleri kullanılmaktadır. Düşük yükler uygulanarak ( 1 kg kuvvetin altında), mikroskop yardımıyla yapılan sertlik ölçümleri "mikrosertlik ölçüm yöntemi" olarak adlandırılır. Mikrosertlik ölçümlerinde Vickers yöntemi ile Knoop yöntemi de kullanılmaktadır.

Bu çalışmada Vickers sertlik ölçme yöntemi aşağıda açıklanmıştır.

#### 2.3.4.1. Vickers Sertlik Ölçümü

Bu yöntemde, piramit biçiminde ve tabanı kare olan batıcı uç kullanılır. Elmastan yapılan piramidin tepe açısı ( $\alpha$ ) $136^\circ$ 'dir (Şekil 34). Vickers sertlik deneyi; söz konusu batıcı ucun malzemenin yüzeyine, malzeme cinsine göre seçilen bir yük altında, belirli bir süre batırılması ile oluşan izin köşegen uzunluklarının ölçülmesinden ibarettir.

Vickers sertlik deneyinin prensip şeması Şekil 35'de görülmektedir. Vickers sertlik değeri (VSD); uygulanan yükün (F) oluşan izin alanına bölünmesi anlamına gelen ,

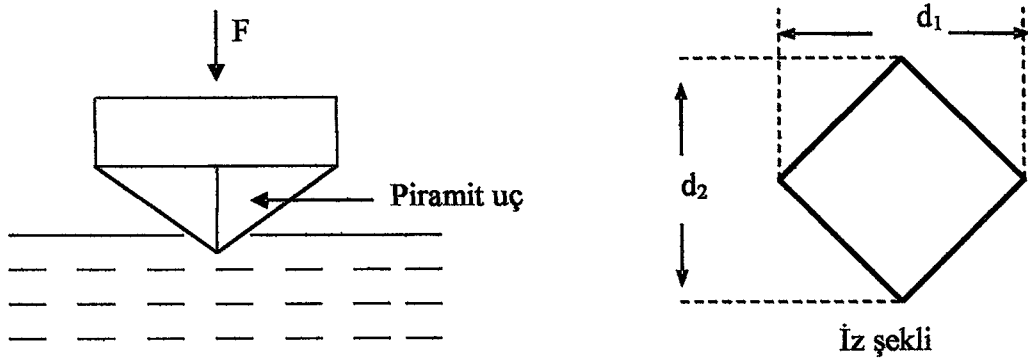


$$VSD = \frac{2F \sin\left(\frac{\alpha}{2}\right)}{d^2} = 1.8544 \frac{F}{d^2} \quad (2)$$

bağıntısı ile bulunur. Eşitlik (2)'de  $d$  izin ortalama köşegen uzunluğu olup,  $d=(d_1+d_2)/2$  formülü ile hesaplanır (Savaşkan , 1999).



Şekil 34. HWDM marka Vickers sertlik ölçüm cihazı



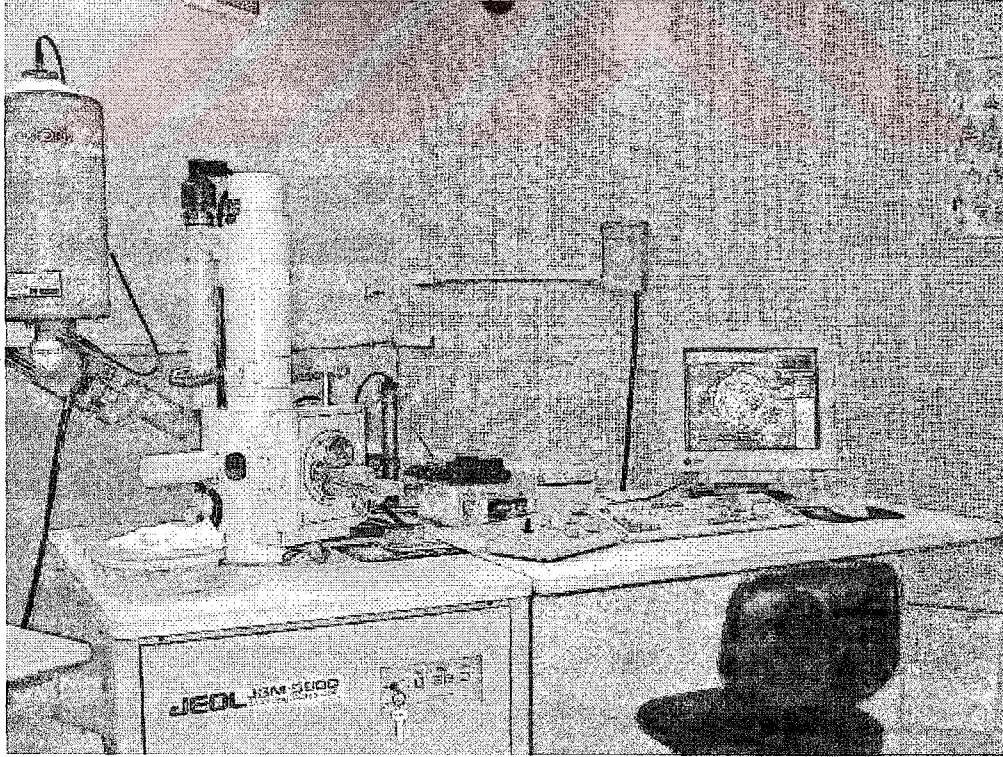
Şekil 35. Vickers ölçüm sisteminin şematik gösterimi

Üretilen örneklere sırasıyla 20, 50, 100, 200 ve 300 gr'lık kuvvetler uygulandı. Hazırlanan örneklerin sertlik ölçümleri Tokat Gaziosmanpaşa Üniversitesinde yapıldı.

### 2.3.5. Elektron Mikroskobu Analizi (SEM)

Bu kısımda, üretilen örneklerin yüzey mikroyapıları hakkında bilgi edinebilmek için JEOL JSM 5600 model Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) ile örneklerin mikrografları çekildi (Şekil 36). Önce örneklerin yüzeyleri parlatıldı. Parlatma işleminde önce örneklerin yüzeyleri sırasıyla 800 ve 1000 no'lu zımparalarla zımparalanarak düz yüzeyler elde edildi. Daha sonra yine kalından inceye doğru elmas pasta kullanılarak parlatma işlemi yapıldı. Parlatılan örnekler önce altın film ile kaplandı ve elektron mikroskobuna yerleştirildi. Yüzey görüntüleri 1000 büyütme değerinde fotoğraflandı. Bu yolla, örneklerin yüzey yapısı, tane boyutları hakkında ve tavlamanın taneler üzerine etkisi hakkında bilgi edinilmesi amaçlandı.

SEM fotoğrafları Kırıkkale Üniversitesi Fizik Bölümünde çekildi.

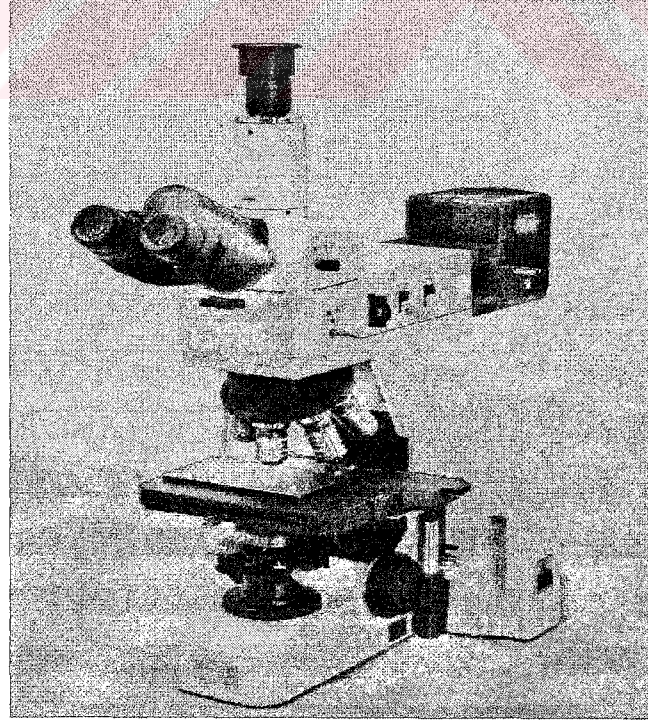


Şekil 36. JEOL JSM 5600 marka Taramalı Elektron Mikroskobu

### 2.3.6. Metalografik İnceleme

Hazırlanan örneklerden 3mm genişliğinde barlar kesilerek daha önce kalıp için hazırlanmış olan kaplara konuldu ve her kaba örnek adına göre isimler verildi. Kaplara Amine Adduet blend Diethylenetriamine 2-Hydroxyethyldiethylenetriamine, Benzyle alcohol içerikli sertleştirici ile neopentyl glycol diglycidyl ether içerikli reçine konuldu. Bu bileşimi hazırlarken ağırlıkça 100 birim reçineye 36 birim oranında sertleştirici kullanıldı. Hazırlanan bu karışım kalıp içerisinde oda sıcaklığında 18 saat bekletilerek sertleştirildi. Daha sonra örnekler reçine içinde olduğu halde kalıp kutusundan çıkarıldı.

Kalıplardan çıkarılan örnekler sırasıyla 500, 800, 1000 ve 1200 $\mu$ m'lik zımpara kağıdı kullanılarak kaba temizlik diye adlandırılan düz bir yüzey elde edildi. Zımparalama işleminden sonra yine sırası ile; 1, 1/2, 1/4 ve 1/10  $\mu$ m'lik elmas pastası kullanılarak tam pürüzsüz ve parlak yüzeyler elde edildi. Bu işlemden sonra örneklerin yüzeyleri alkol ile silindi. Parlatma sırasında zımpara kağıdının altına, pürüzsüz bir yüzey elde edebilmek için, cam gibi yüzeyi düzgün bir altlık kullanıldı. Şekil 37'de görülen Nikon ECLİPSE ME600 marka mikroskopla polarize ışık altında çekimler yapıldı.



Şekil 37. Polarize optik film makinesi

### 2.3.7. Elektriksel Özdirenç Ölçümleri

Üretilen örneklerin elektriksel özdirençleri, standart dört nokta yöntemi kullanılarak, Edwards model CS2/9 marka kriyostatta (Şekil 38) 20-300 K sıcaklık aralığında yapıldı.

Dikdörtgenler prizması şeklinde kesilen örneklere, gümüş pasta kullanılarak, bakır tellerle kontak yapıldı. Ölçüm hatalarını en aza indirebilmek için, kontakların aynı hat üzerinde yer almalarına ve kontaklar arası mesafenin de eşit olmasına dikkat edildi. Örneğin özdirenç aşağıdaki formülle hesaplandı.

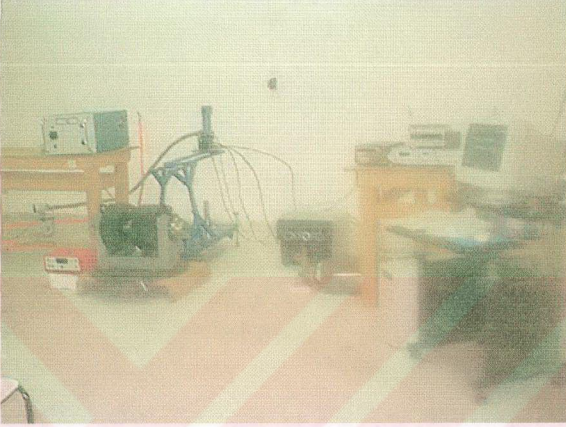
$$\rho = \frac{V}{I} \frac{A}{\ell} \quad (3)$$

Burada  $I$ ; örnekten geçen akım,  $V$ ; iç kontaklar arasındaki gerilim,  $A$ ; örneğin kesit alanıdır ve  $\ell$ ; akım kontakları arası uzaklıktır. Örnek üzerindeki dış uçlardan 2 mA'lik akım gönderilerek, iç uçlardaki gerilim değişmesi gözlemlendi. Bu şekilde örneklerin süperiletkenlik geçiş sıcaklıkları ( $T_c^{\text{offset}}$ ) tespit edildi (Şekil 39). Sıcaklık ölçümleri için bakır-konstantan termoçift kullanıldı. Özdirenç ölçümleri, ısıtma işlemi sırasında kaydedildi.

Özdirenç deneyleri Abant İzzet Baysal Üniversitesi Fizik bölümünde yapıldı.

### 2.3.8. Kritik Akım Yoğunluğu Ölçümleri

Süperiletken örneklerin önemli parametrelerinden birisi de kritik akım yoğunluğudur ( $J_c$ ). Teknolojik uygulama açısından  $J_c$ 'nin belirlenmesi önemlidir. Kritik akım yoğunluğu ölçümleri sıvı azot sıcaklığında (77 K) dört nokta yöntemi kullanılarak yapıldı (Şekil 40). Örnek süperiletken halde iken, iç uçlardan gözlenen gerilim sıfırdır. Akım, örneği normal hale döndürmeye yetecek kadar artırıldığında, iç uçlar arasında bir gerilim gözlenir ve bu gerilime karşılık gelen akım, kritik akım ( $I_c$ ) olarak adlandırılır. Kritik akım yoğunluğu ( $J_c$ ), yaklaşık  $5 \mu\text{V}/\text{cm}$ 'lik bir ilk voltajın görüldüğü akım-voltaj eğrilerinden elde edilen  $I_c$  kritik akım değeri ve örneğin kesit alanından faydalanarak belirlendi.



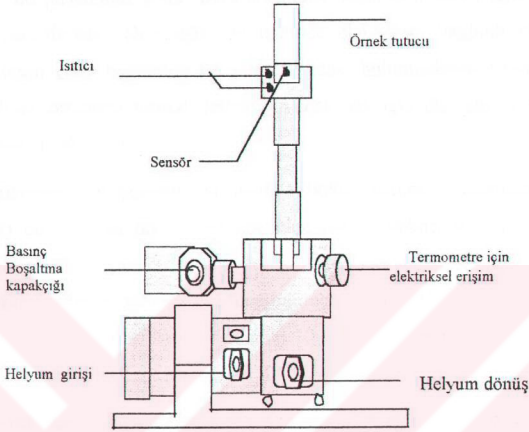
Şekil 38. Leybold marka kapalı devre helyum kriyostati

Magnetik alan altında yapılan kritik akım yoğunluğu ölçümlerinde alan, Helmholtz bobinleri aracılığı ile maksimum 6mT olarak, örnekden geçen akıma dik bir şekilde uygulandı. Kritik akım yoğunluğu ölçümlerinde ilk 6 örneğin alansız olarak kritik akım yoğunluğu ölçüldü. Magnetik alan altında ise ilk 5 tanesi ölçüldü.

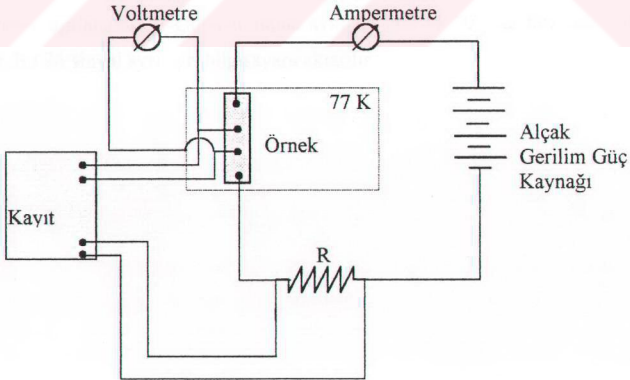
### 2.3.9. A.C. Alınganlık Ölçümü

A.C. alınganlık ölçümü için kullanılan sistem bilgisayar kontrollü olup, kriyostat, örnek tutucu çubuk, sıvı helyum içinde bulunan bobin sistemi ve karşılıklı (mutual) indüktans köprüsünden oluşmaktadır.

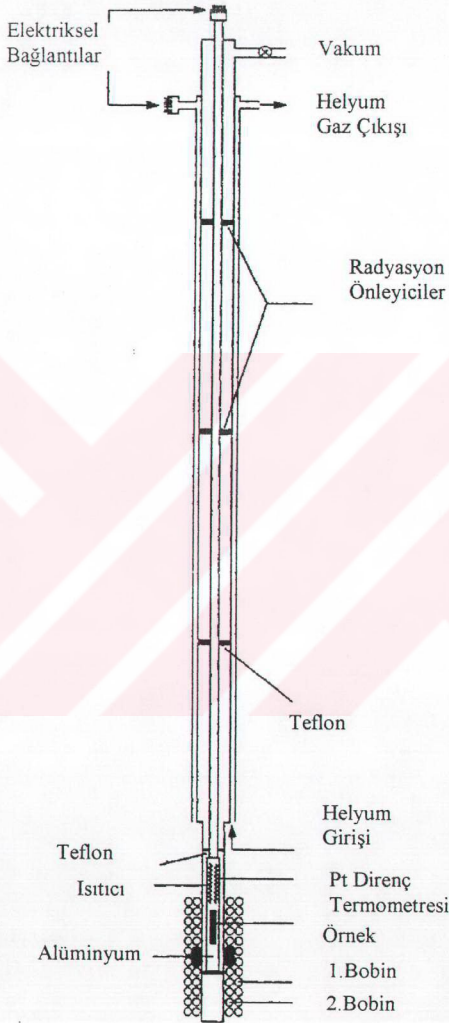
Deney sistemi şunlardan oluşur;



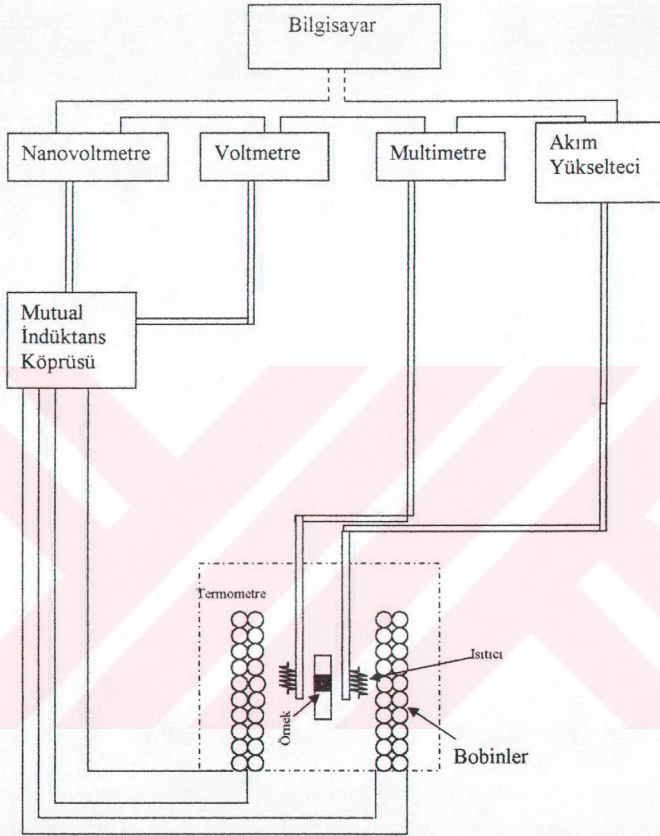
Şekil 39. Kriyostat sisteminin şematik gösterimi



Şekil 40. Kritik akım ölçümlerinde kullanılan devrenin şeması



Şekil 41. A.C. alınganlık ölçüm sisteminde kullanılan kriyostatın şematik gösterimi



Şekil 42. A.C. Magnetik alınganlık ölçüm düzeneğinin şematik gösterimi



### 3. BULGULAR

#### 3.1. Giriş

Bu bölümde Sm katkılı  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  süperiletkenlerin yapısal özellikleri XRD, optik, SEM, dilatometre, DTA ve sertlik analizlerinin verileri doğrultusunda ve fiziksel özellikleri ise elektriksel özdirenç, kritik akım yoğunluğu ve AC alınganlık ölçüm sonuçları yardımı ile değerlendirilecektir.

#### 3.2. X-ışını Kırınımı Desenlerinin Değerlendirilmesi

Şekil 43, klasik katıhal tepkime yöntemi ile hazırlanan ve  $860^\circ\text{C}$ 'de (a) 50, (b) 100, (c) 150 ve (d) 200 saat sürelerde tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  başlangıç örneğinin  $3^\circ \leq 2\theta \leq 60^\circ$  aralığındaki X-ışını kırınım (XRD) desenlerini göstermektedir. Şekil 44'de ise aynı örneklerin  $4^\circ \leq 2\theta \leq 6^\circ$  aralığındaki X-ışını desenlerinin ayrıntılı bir görünüşü verilmektedir. X-ışını kırınım desenlerindeki piklerin karakterizasyonu Maeda ve arkadaşlarının (Maeda vd., 1990) verdikleri X-ışını kırınımı desenlerinden yararlanılarak yapıldı. Şekil 43 ve 44'deki kırınım desenlerinin incelenmesinden, 50 saatlik tavlama ile elde edilen örneğin ana fazının 2212 olduğu ve içerisinde çok az da olsa 2223 fazının da bulunduğu görüldü. Tavlama süresinin arttırılması ve her tavlama aralığında ara öğütme yapılması ile 2212 ana fazının azaldığı, buna karşın 2223 fazının ise arttığı gözlemlendi. Bu durum açık bir biçimde Şekil 45'te görülmektedir. Bu da Garnier ve arkadaşlarının (Garnier Vd., 2001) yaptığı çalışma ile uyusmaktadır. Buradaki düşük sıcaklık (2212) ve yüksek sıcaklık (2223) fazlarının hacimsel oranları, Chiu ve arkadaşları (Chiu, vd., 1994; Halim vd., 1999) tarafından verilen aşağıdaki bağıntılar yardımıyla hesaplandı. Buradaki  $I_H$ , yüksek sıcaklık fazındaki piklerin şiddetlerini,  $I_L$  ise düşük sıcaklık fazındaki piklerin şiddetlerini göstermektedir.

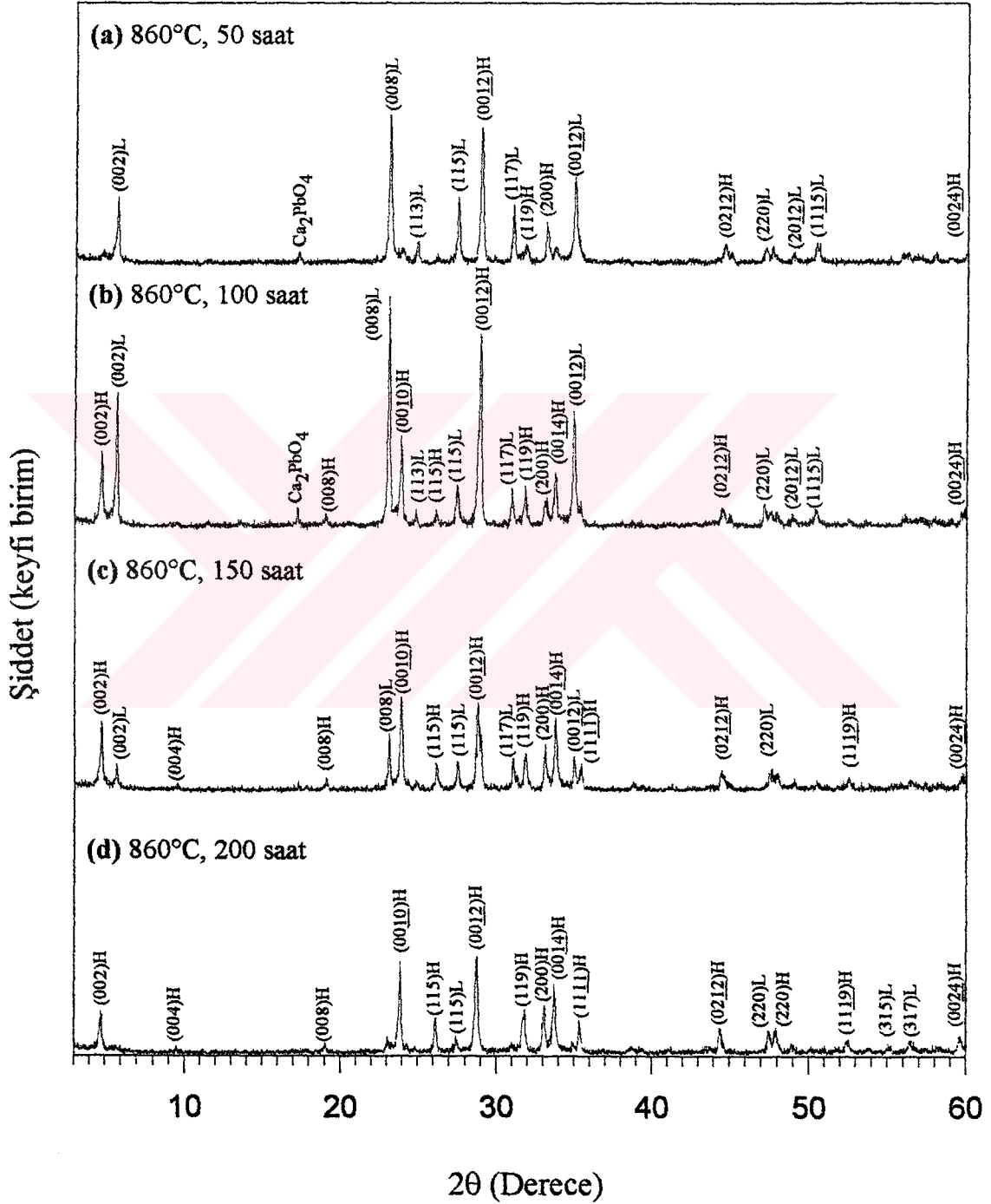
$$V_{(2223)} = \frac{\sum I_H}{\sum I_H + \sum I_L} \quad (4)$$

$$V_{(2212)} = \frac{\sum I_L}{\sum I_H + \sum I_L} \quad (5)$$

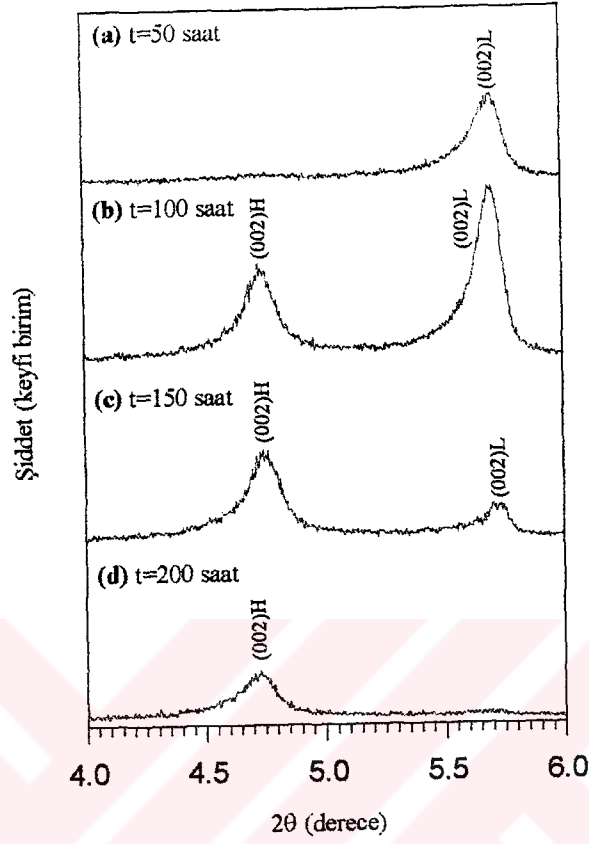
50 ve 100 saatlik tavlama sonucunda elde edilen örneklerin X-ışını kırınımı desenlerinde ( Şekil 43),  $2\theta=17.6^\circ$ 'de ortaya çıkan ve istenmeyen faz olarak adlandırılan  $\text{Ca}_2\text{PbO}_4$  fazına ait pike rastlandı. Ancak 100 saatin üzerindeki tavlamalarda bu pikin ortadan kalktığı gözlemlendi. 200 saatlik tavlama sonucunda yüksek sıcaklık (2223) fazının en yüksek değere ulaştığı görüldü. Böylece  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  kompozisyonu için optimum tavlama sürecinin  $860^\circ\text{C}$ 'de 200 saat olduğu söylenebilir. Bu kırınım deseninde  $\ell$  çift sayı olmak üzere (00 $\ell$ ) ve  $\ell$  tek sayı olmak üzere (11 $\ell$ ) karakteristik piklerinin görünmesi, örneğin tetragonal birim hücreye sahip olduğunu vurgular (Saffet Nezir, 1996). Katkısız örnekte 200 saatlik tavlama sonucu elde edilen yüksek sıcaklık faz oranının (%94), benzer çalışma yapan bazı grupların elde ettikleri yüksek sıcaklık faz oranından (%85) daha yüksek olduğu görüldü (Kishore vd., 1993). Bu sonuca bakarak ara öğütmenin yüksek sıcaklık faz oranını arttırdığı sonucuna varıldı.  $860^\circ\text{C}$ 'de 200 saat tavlanaarak elde edilen ve ana fazı 2223 olan katkısız örneğin örgü parametreleri en küçük kareler metodu kullanılarak ve bilgisayar programı yardımı ile  $a=5.413\text{Å}$  ve  $c=37.236\text{Å}$  olarak hesaplandı. Bu sonuç, literatürle iyi bir uyum içerisindedir ( Park vd.,1998; Takano vd., 1988; Hatano vd., 1988 ).

Şekil 46, Katıhal tepkime yöntemi ile hazırlanan ve  $860^\circ\text{C}$ 'de (a) 50, (b) 100, (c) 150 ve (d) 200 saat sürelerde tavlanan ve her tavlama sonucunda ara öğütmeye tabi tutulan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.0005$ ) örneğinin  $3^\circ \leq 2\theta \leq 60^\circ$  aralığındaki X-ışını kırınım (XRD) desenlerini göstermektedir. Şekil 47'de ise aynı örneklerin  $4^\circ \leq 2\theta \leq 6^\circ$  aralığındaki ayrıntılı bir görünüşü verilmektedir. Şekil 46'daki XRD sonuçlarından, 50 saat tavlanan örnekte, baskın olan fazın düşük sıcaklık (2212) fazı (%87), buna karşın 150 saatin üzerindeki tavlama sürelerinde ise örnekte yüksek sıcaklık (2223) fazının yaklaşık %75 oranında baskın olduğu ve 200 saatlik tavlama sonucunda ise ana fazın yüksek sıcaklık (2223) fazının %92 olduğu görüldü. Düşük katkılarda 200 saatlik tavlama sonucunda yüksek sıcaklık faz oranında fazla bir değişme olmamıştır. Bu sonuç, Kambe ve arkadaşlarının (Kambe vd., 1998) yaptıkları çalışmalarla tam bir uyum göstermektedir. Bu durum, açık bir şekilde, Şekil 48 ile verilen hacimsel oranların değişimi eğrisinde görülmektedir. Şekil 47'de gösterilen, yüksek sıcaklık (002)H ve düşük sıcaklık fazlarını

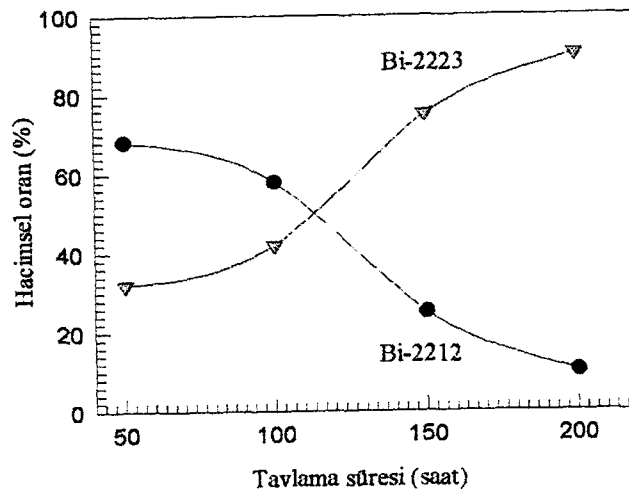
karakterize eden (002)L piklerinin deęişiminden, tavlama süresi arttıkça (002)L pikinin azaldığı, buna karşın (002)H pikinin arttığı ve 200 saatlik tavlama sonucunda ise sadece (002)H pikinin kaldığı gözlemlendi.



Şekil 43. 860°C'de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan Bi<sub>1.6</sub>Pb<sub>0.4</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> başlangıç örneğinin X-ışını kırınım desenleri



Şekil 44. 860°C'de (a) 50, (b) 100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  başlangıç örneğinin  $4^\circ \leq 2\theta \leq 6^\circ$  aralığındaki X-ışını kırınım desenleri



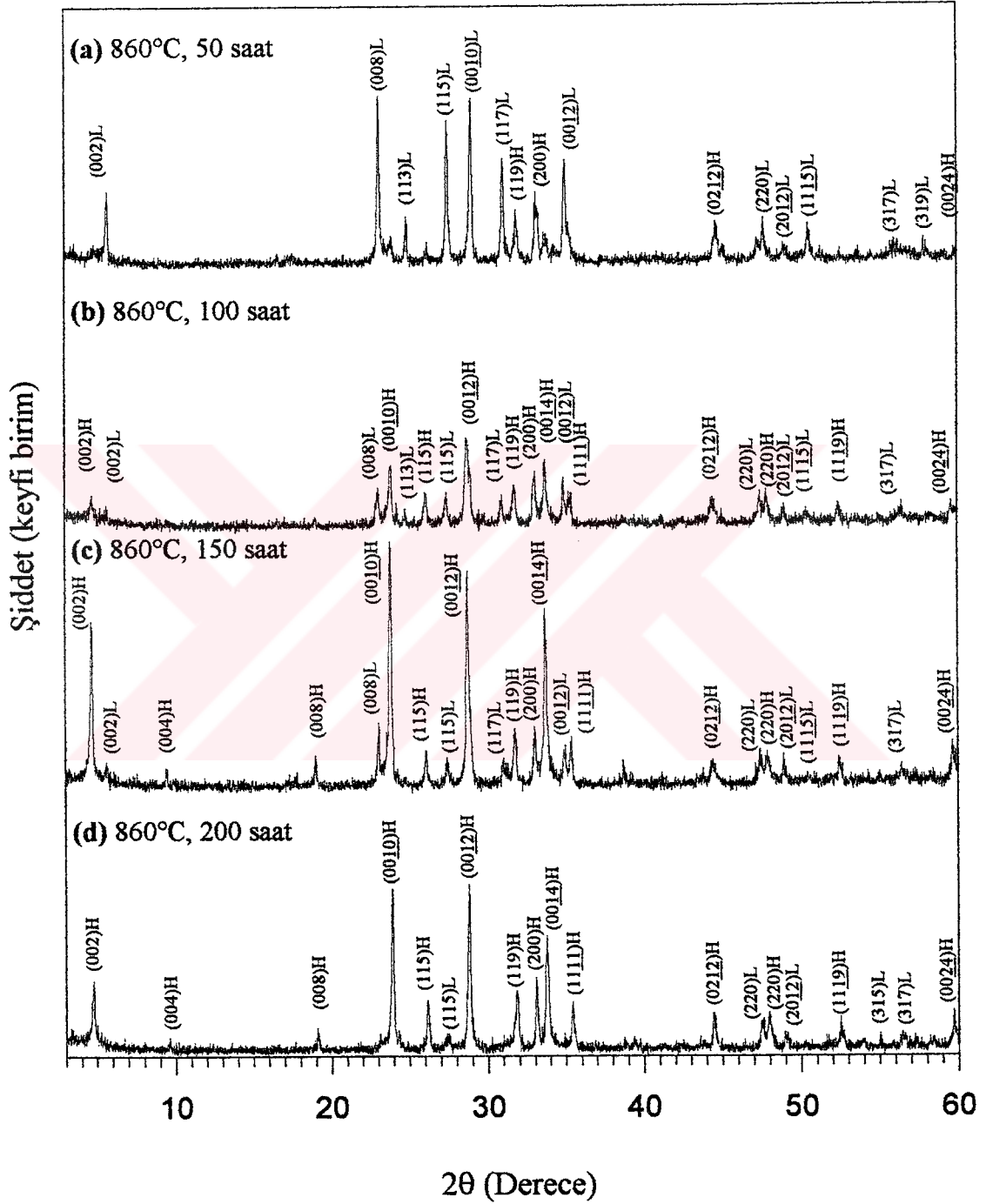
Şekil 45. 860°C'de tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  örneğinin, tavlama süresinin fonksiyonu olarak, yüksek sıcaklık (2223) ve düşük sıcaklık (2212) fazlarının değişimi

Örneğin örgü parametreleri “En Küçük Kareler Metodu” kullanılarak;  $a=5.416 \text{ \AA}$  ve  $c=37.206 \text{ \AA}$  olarak hesaplandı.

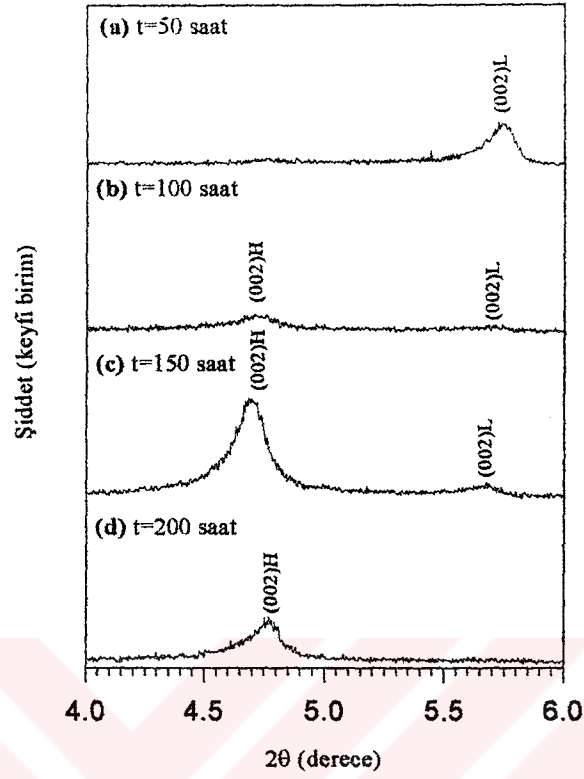
Katıhal tepkime yöntemiyle  $860^\circ\text{C}$ 'de (a) 50, (b) 100, (c) 150 ve (d) 200 saatlik ısıtma işlemi ve bu arada üç kez ara öğütme işlemine tabi tutularak  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.001$ ) örneği hazırlandı. Hazırlanan bu örneğin XRD kırınım desenleri  $3^\circ \leq 2\theta \leq 60^\circ$  ve  $4^\circ \leq 2\theta \leq 6^\circ$  aralıklarında çekildi (Şekil 49,50). XRD kırınım deseni incelenmesi sonucunda eşitlik (4) ve (5) yardımı ile bu örneğe ait hacimsel faz oranları belirlendi (Şekil 51). Bu inceleme sonucunda 50 saatlik tavlama süresinde ana fazın düşük sıcaklık (2212) fazı %94, buna karşın 100 saatlik tavlama süresinde ana fazın düşük sıcaklık fazı olmasına rağmen, 150 saatlik tavlama süresinde ise ana fazın yüksek sıcaklık fazı olduğu görülmektedir. 200 saatlik tavlama sürelerinde ise yüksek sıcaklık (2223) fazının %83 oranında baskın olduğu görülmektedir.  $x=0.001$  katkılı örneğe ait örgü parametresi  $a=5.418 \text{ \AA}$  ve  $c=37.197 \text{ \AA}$  olarak hesaplandı.

Şekil 52'de katıhal tepkime yöntemi ile hazırlanan ve  $860^\circ\text{C}$ 'de (a) 50, (b) 100, (c) 150 ve (d) 200 saat sürelerde tavlanan ve her tavlama sonucunda ara öğütmeye tabi tutulan  $x=0.005$  olmak üzere  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  örneğinin  $3^\circ \leq 2\theta \leq 60^\circ$  aralığındaki X-ışını kırınımı (XRD) desenleri görülmektedir. XRD sonuçlarından, 50 saatlik tavlama süresinde ana fazın düşük sıcaklık (2212) fazı %95 buna karşın 100 saatlik tavlama süresinde ise hala ana fazın düşük sıcaklık fazı olmasına rağmen, 150 saatlik tavlama süresinde ise ana fazın yüksek sıcaklık fazı olduğu görülmektedir. 200 saatlik tavlama sonucunda ise yüksek sıcaklık (2223) fazının %79 oranında baskın olduğu görülmektedir. Şekil 53'de aynı örneklerin  $4^\circ \leq 2\theta \leq 6^\circ$  aralığındaki ayrıntılı bir görünüşü verilmektedir. Şekil 54'de ise tavlama süresi ile hacimsel faz oranı değişimi verilmektedir. Bu örneğe ait örgü parametreleri;  $a=5.421 \text{ \AA}$  ve  $c=37.190 \text{ \AA}$  olarak hesaplandı.

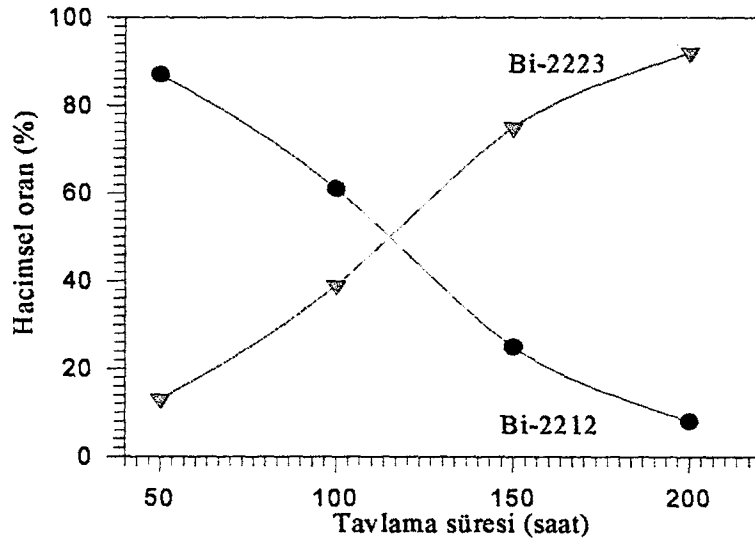
Şekil 55 ve 56'da oda sıcaklığında fırına konulan ve  $5^\circ\text{C}/\text{dak.}$  hızla  $860^\circ\text{C}$ 'ye çıkartılan ve orada sırasıyla 50, 100, 150 ve 200 saat tavlanan ve üç kez ara öğütme işlemine tabi tutulan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.01$ ) örneğine ait XRD kırınım desenleri görülmektedir. Kırınım desenlerine bakıldığında 50 saatlik tavlama sonucunda ana fazın düşük sıcaklık (2212) fazı olduğu görülürken tavlama süresi arttıkça ana fazın yüksek sıcaklık (2223) fazına (%74) doğru kaydığı görülmektedir (Şekil 57). Bu sonuç Kishore ve arkadaşlarının (Kishore vd., 1993) aynı şartlarda elde ettikleri örneklerdeki yüksek sıcaklık fazından (%41) daha iyi değerdedir.



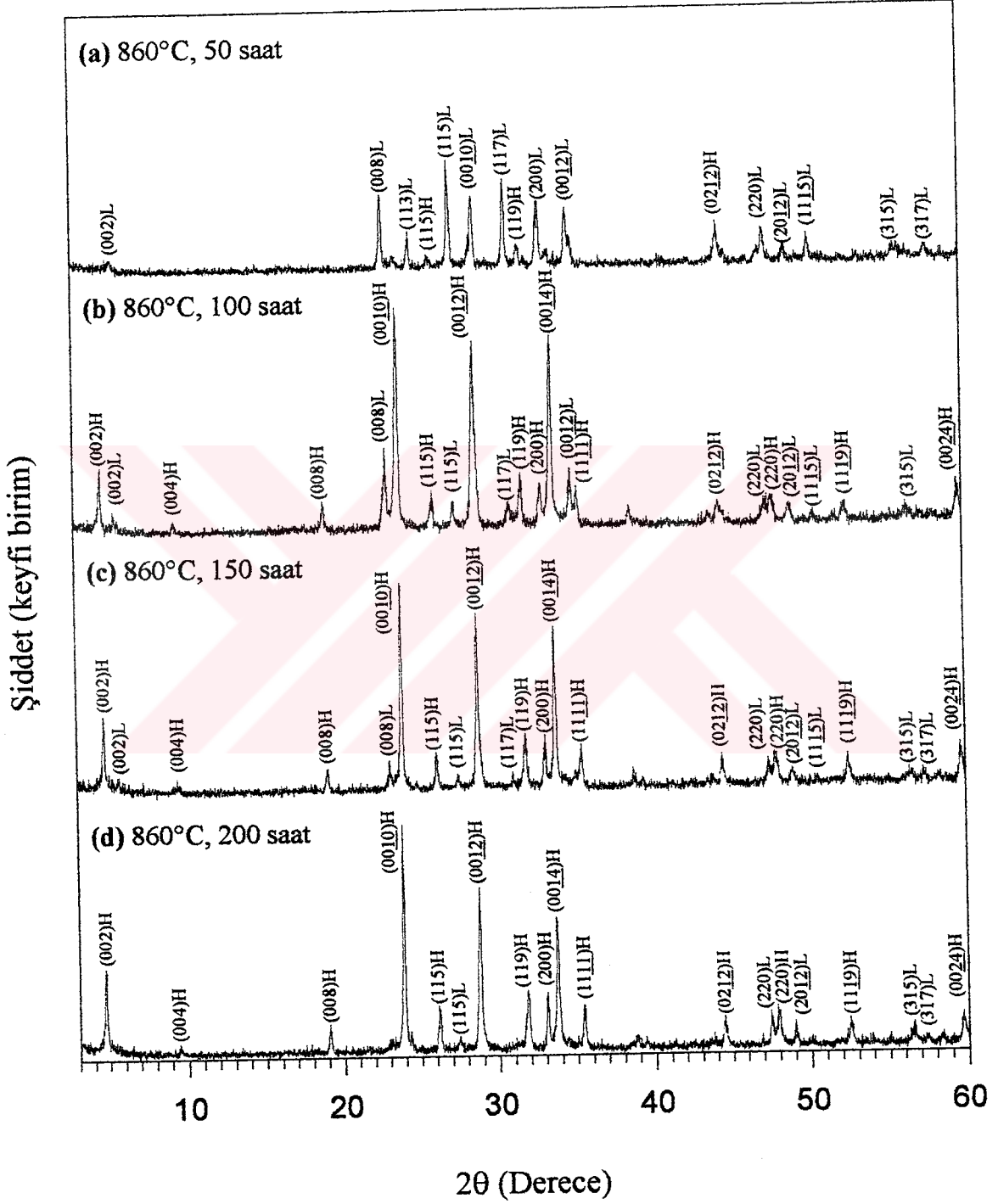
Şekil 46. 860°C'de (a) 50, (b) 100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.0005$ ) örneğinin X-ışını kırınım desenleri



Şekil 47.  $860^\circ\text{C}$ 'de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.0005$ ) örneğinin X-ışını kırınım desenleri

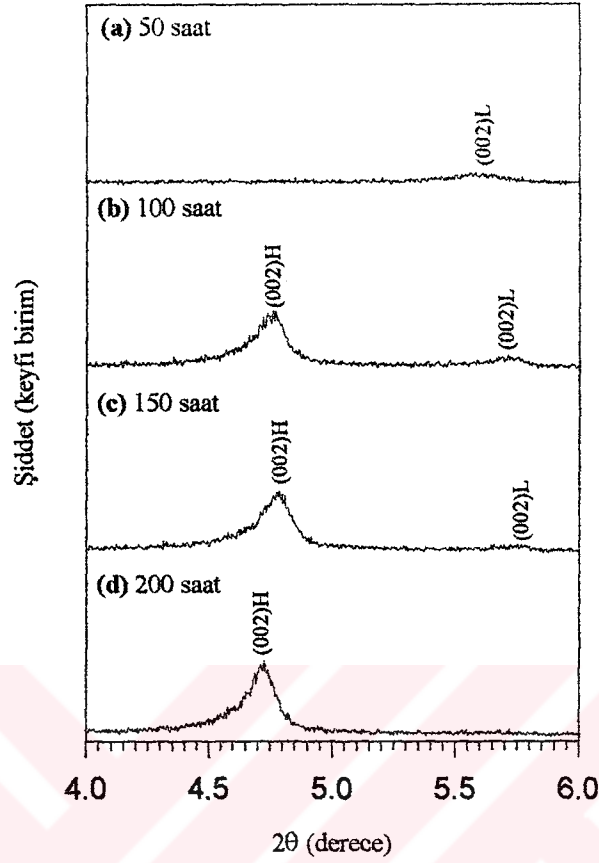


Şekil 48.  $860^\circ\text{C}$ 'de tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.0005$ ) örneğinin, tavlama süresinin fonksiyonu olarak, yüksek sıcaklık (2223) ve düşük sıcaklık (2212) fazlarının değişimi

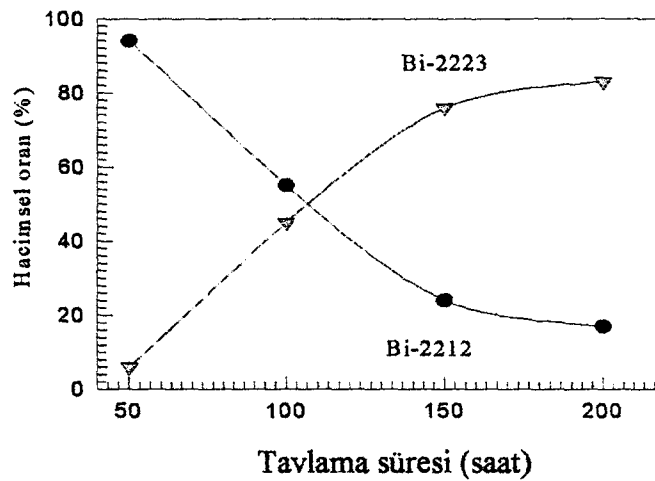


Şekil 49. 860°C'de (a) 50, (b) 100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.001$ ) örneğinin X-ışını kırınım desenleri

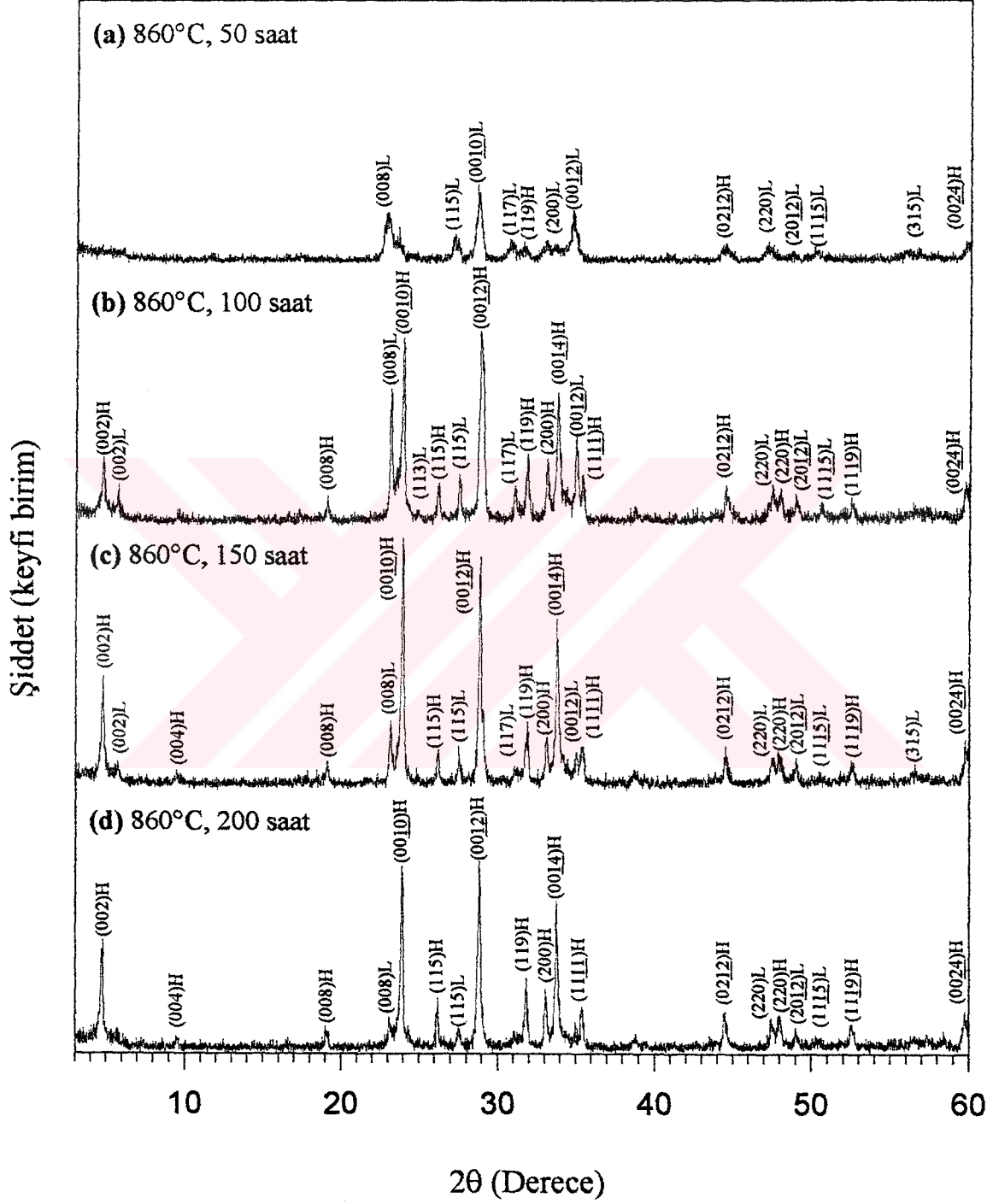




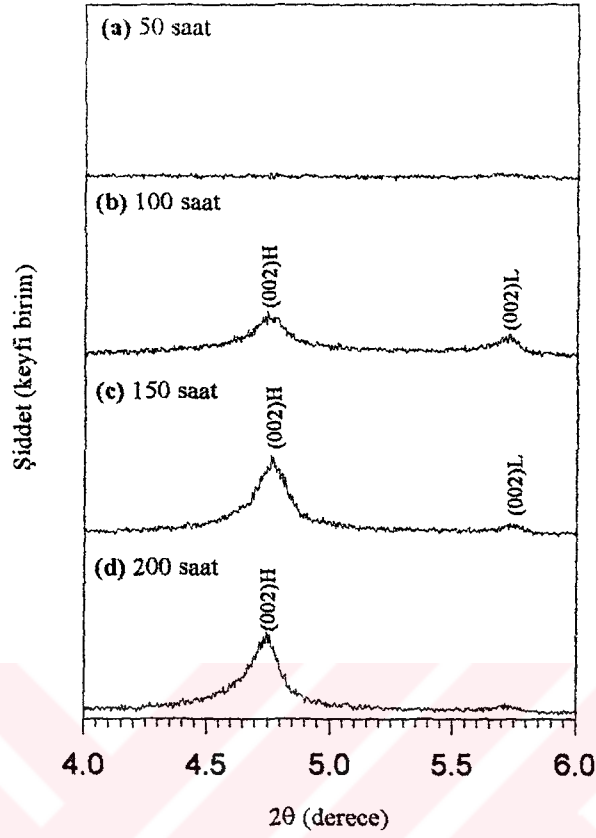
Şekil 50. 860°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.001$ ) örneğinin X-ışını kırınım desenleri



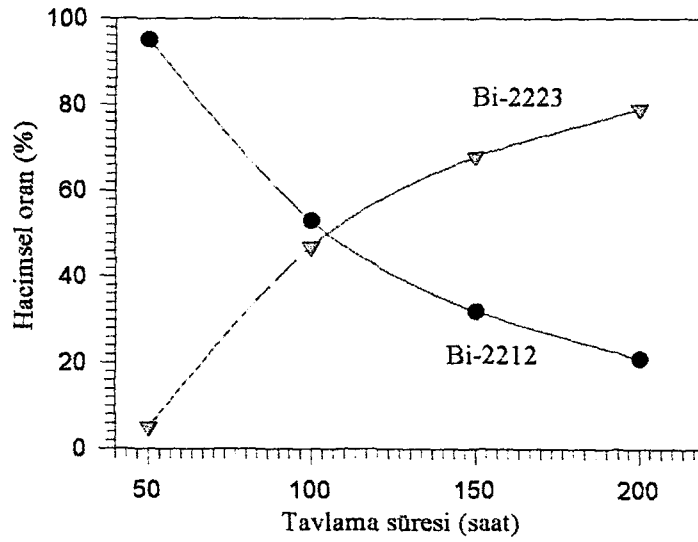
Şekil 51. 860°C’de tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.001$ ) örneğinin, tavlama süresinin fonksiyonu olarak, yüksek sıcaklık (2223) ve düşük sıcaklık (2212) fazlarının değişimi



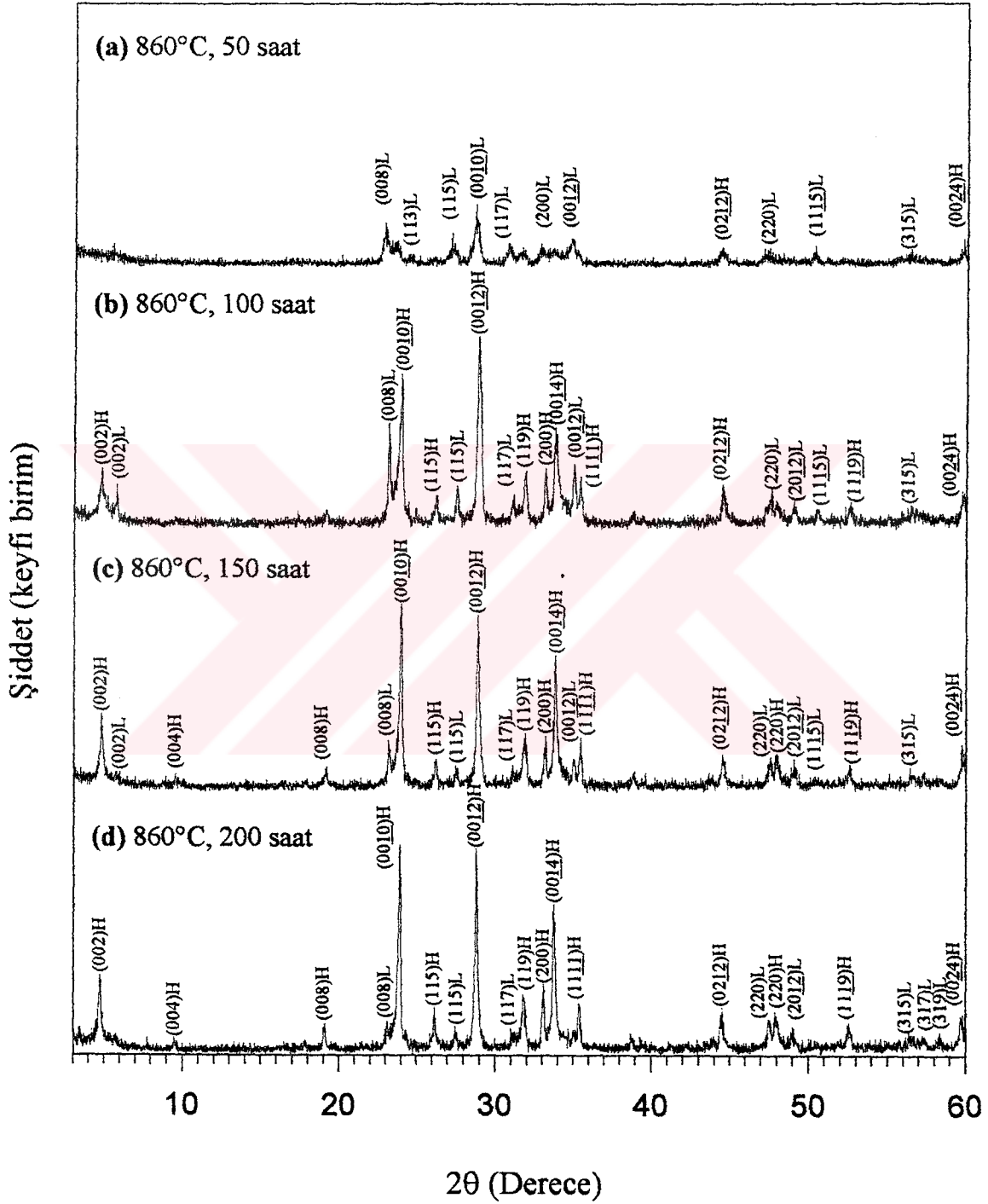
Şekil 52. 860°C'de (a) 50, (b) 100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.005$ ) örneğinin X-ışını kırınım desenleri



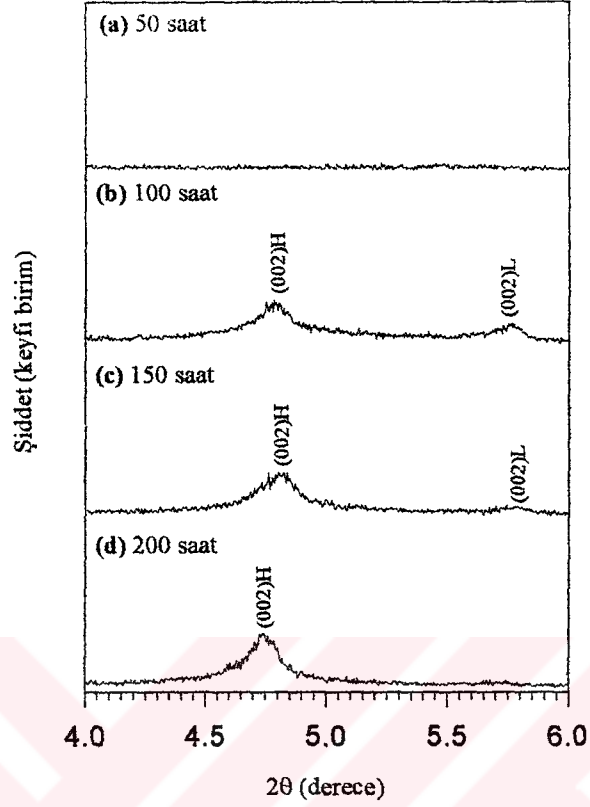
Şekil 53. 860°C'de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.005$ ) örneğinin X-ışını kırınım desenleri



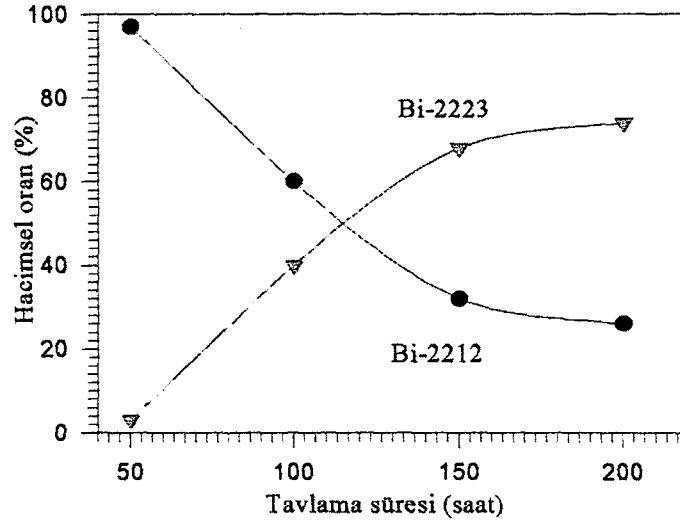
Şekil 54. 860°C'de tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.005$ ) örneğinin, tavlama süresinin fonksiyonu olarak, yüksek sıcaklık (2223) ve düşük sıcaklık (2212) fazlarının değişimi



Şekil 55. 860°C'de (a) 50, (b) 100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.01$ ) örneğinin X-ışını kırınım desenleri



Şekil 56. 860°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.01$ ) örneğinin X-ışını kırınım desenleri



Şekil 57. 860°C’de tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.01$ ) örneğinin, tavlama süresinin fonksiyonu olarak, yüksek sıcaklık (2223) ve düşük sıcaklık (2212) fazlarının değişimi

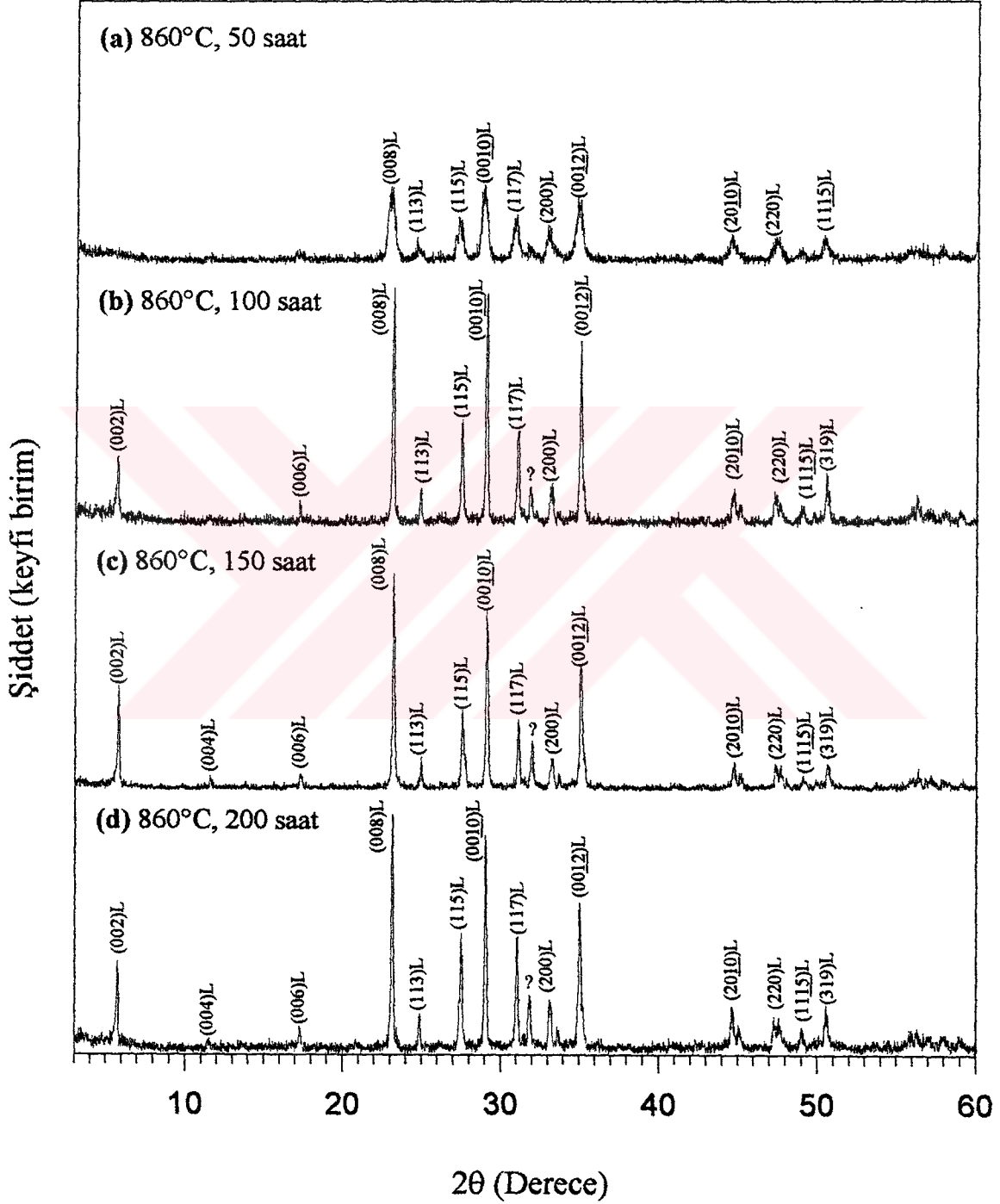
860°C'de 50, 100, 150 ve 200 saat ısıl işleme tabi tutulan  $x=0.1$  katkılı  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  örneğinin XRD kırınım desenleri Şekil 58'de verilmektedir. Burada yalnızca düşük sıcaklık (2212) fazının varlığı tespit edildi; herhangi bir yüksek sıcaklık (2223) fazı görülmedi. Kishore ve arkadaşları (Kishore vd.,1993) yaptıkları çalışmada bu durumu şu şekilde açıklamışlardır; katkısız örnekte taşıyıcı olan delik konsantrasyonu optimum değerdedir ve katkı ile birlikte bu değer düşmekte, böylece düşük sıcaklık fazına doğru kaymaktadır. Şekil 59 ise bu örneğe ait  $2\theta=4^\circ-6^\circ$  aralığında çekilen X-ışını kırınımı desenindeki (002) karakteristik piki görülmektedir. Bu şekilde görüldüğü gibi 50 saatlik tavlamanın üzerindeki tavlama sürelerinde,  $2\theta=5.7^\circ$  karakteristik düşük sıcaklık fazına ait (002) piki ortaya çıktı. Şekil 58'de 50 saatin üzerindeki tavlamalarda  $2\theta=31.8^\circ$ 'de indislenemeyen bir pik görülmüştür. Bu pik Kishore ve arkadaşlarının (Kishore vd., 1993) yaptığı çalışmada da görüldü. Bu sonuç da bizim sonuçlarla iyi bir uyum göstermektedir.

Şekil 60 ve 61,  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.5$ ) katkılı örneğe ait XRD kırınım desenlerini göstermektedir. Bu katkıdaki örnek de  $x=0.1$  katkılı örnekte olduğu gibi aynı tavlama sürelerinde hazırlanmasına rağmen tavlama sıcaklığı 920°C'ye çıkartılmıştır. Çünkü DTA sonuçlarına göre, katkı miktarı arttıkça örneğin erime sıcaklığı da artmaktadır. Bazı çalışma grupları da (Nguyen vd., 1997; Singh., 1998) yaptıkları incelemede katkı ile birlikte erime sıcaklığının arttığını söylemektedirler. Şekil 61'e bakıldığında  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.5$ ) katkılı örnekte yalnızca düşük sıcaklık (2212) fazının olduğu görülebilir.

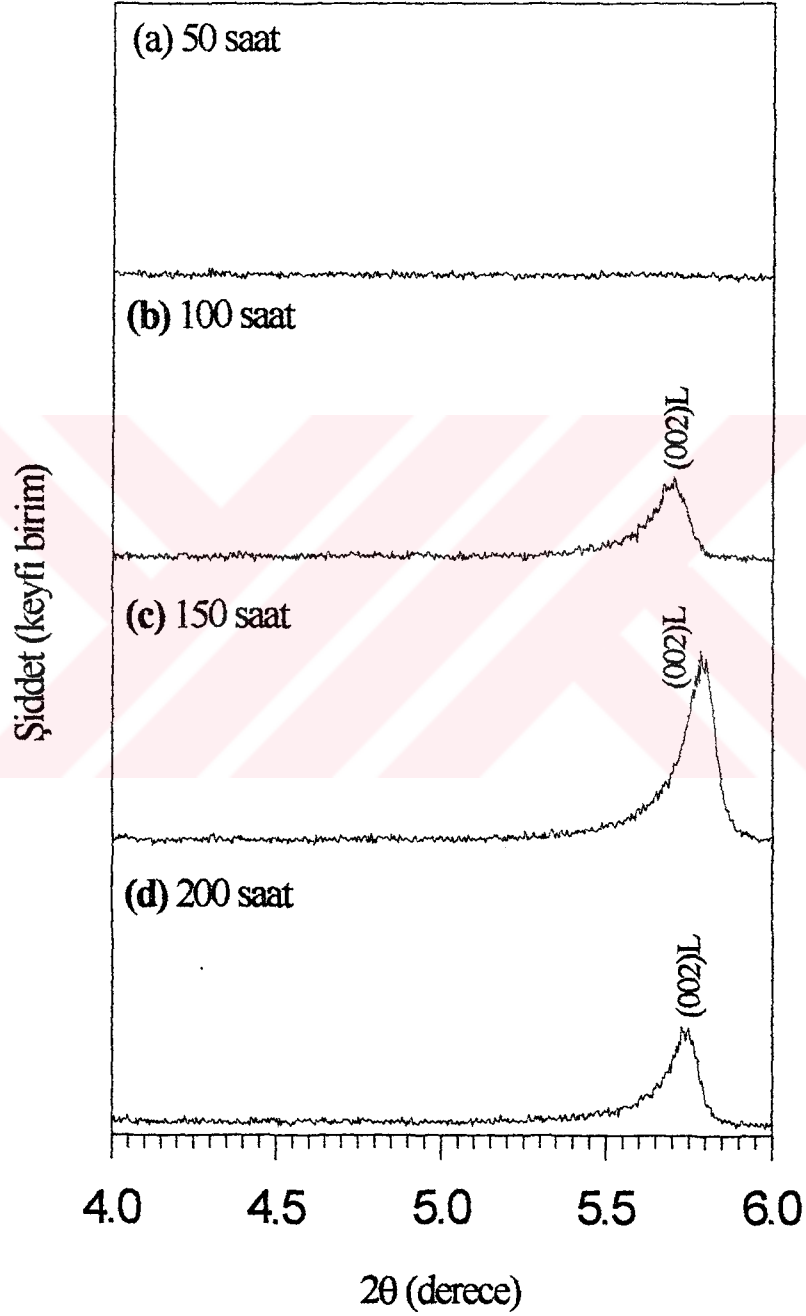
Şekil 62 ve 63,  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=1.0$ ) katkılı örneğe ait XRD kırınım desenlerini göstermektedir. Bu katkıdaki örnekte de tavlama sürelerinde değişiklik yapılmazken, tavlama sıcaklığı 940°C'ye çıkartılmıştır. Şekil 62'ye bakıldığında  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=1.0$ ) katkılı örnekte düşük sıcaklık (2212) fazının baskın olmasına rağmen aynı zamanda çok düşük sıcaklık fazlarına ve indislenemeyen piklere rastlanıldı.

Şekil 64 ve 65  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=1.5$ ) katkılı örneğe ait X-ışını kırınımı desenlerini göstermektedir. Bu katkıdaki örnekte tavlama sürelerinde değişiklik yapılmazken, tavlama sıcaklığı 950°C'ye çıkartılmıştır. Şekil 64'de ise Şekil 63'deki gibi  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=1.5$ ) katkılı örnekte de düşük sıcaklık (2212) fazının baskın olmasına rağmen, yarıiletken faza ve indislenemeyen pike rastlanılmıştır. Şekil

65°'e bakıldığında 50 saatlik tavlama süresinin üzerine çıktığında düşük sıcaklık fazına ait karakteristik (002) piki görülmektedir.

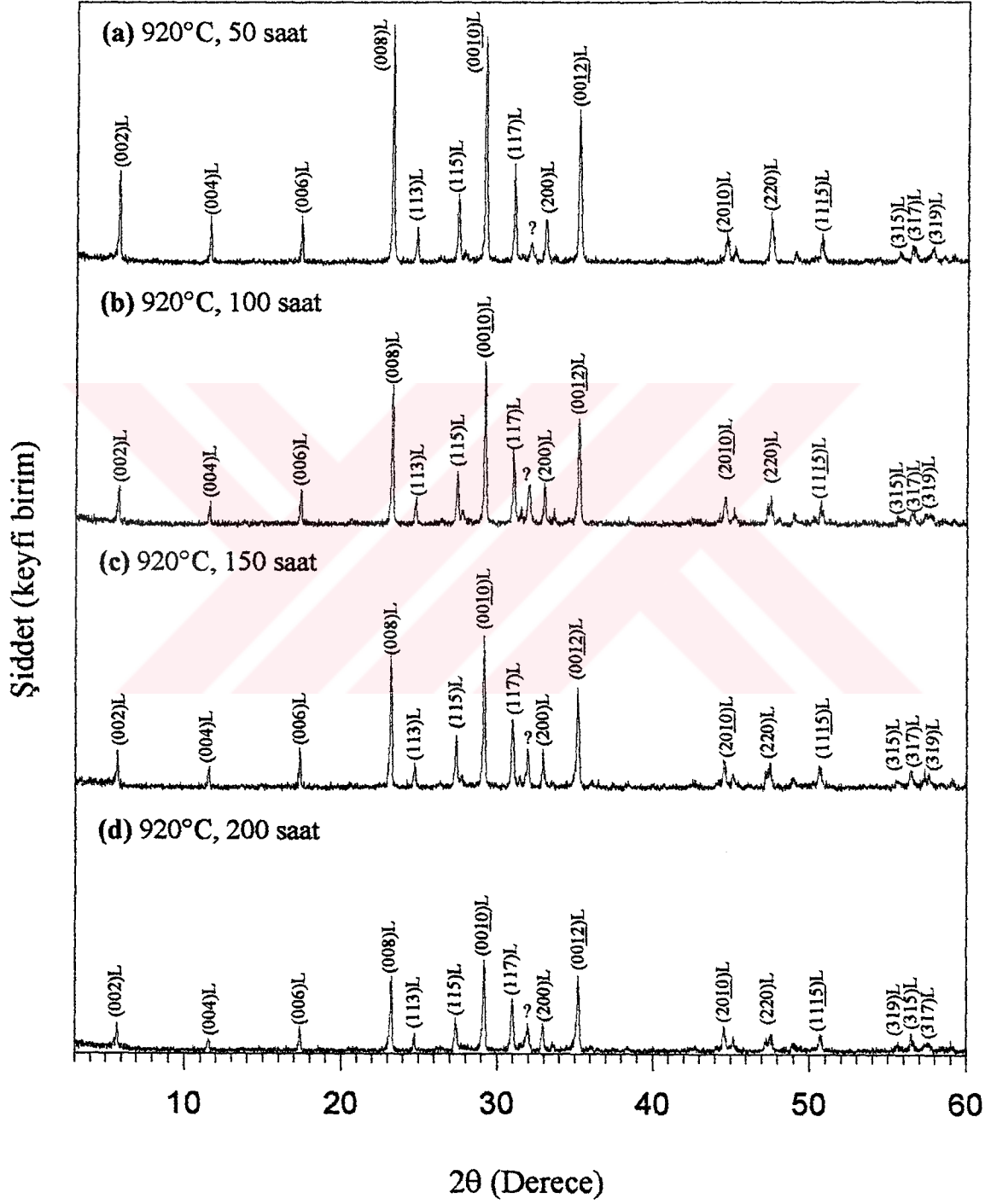


Şekil 58.  $860^\circ\text{C}$ 'de (a) 50, (b) 100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.1$ ) örneğinin X-ışını kırınım desenleri

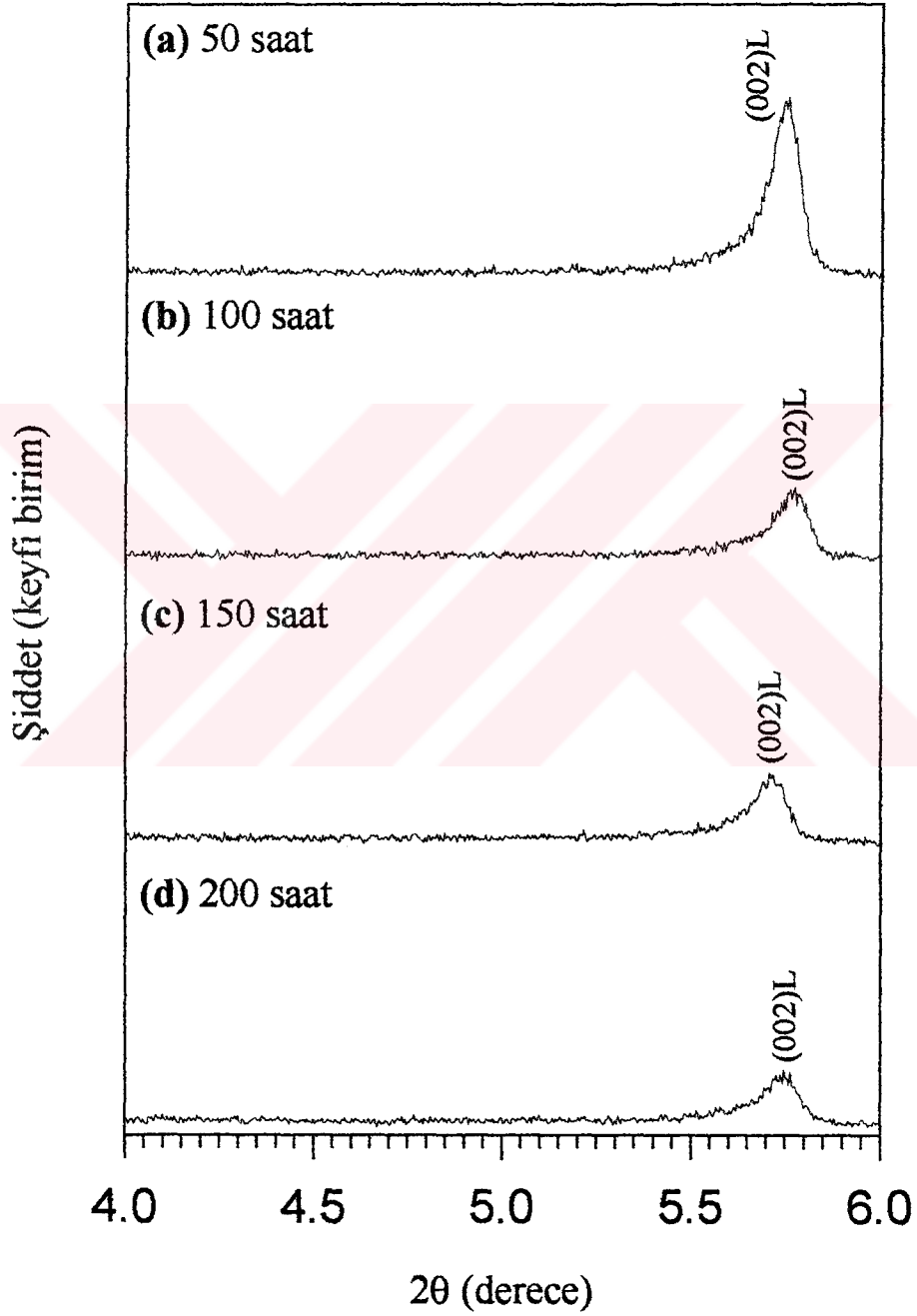


Şekil 59. 860°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.1$ ) örneğinin X-ışını kırınım desenleri

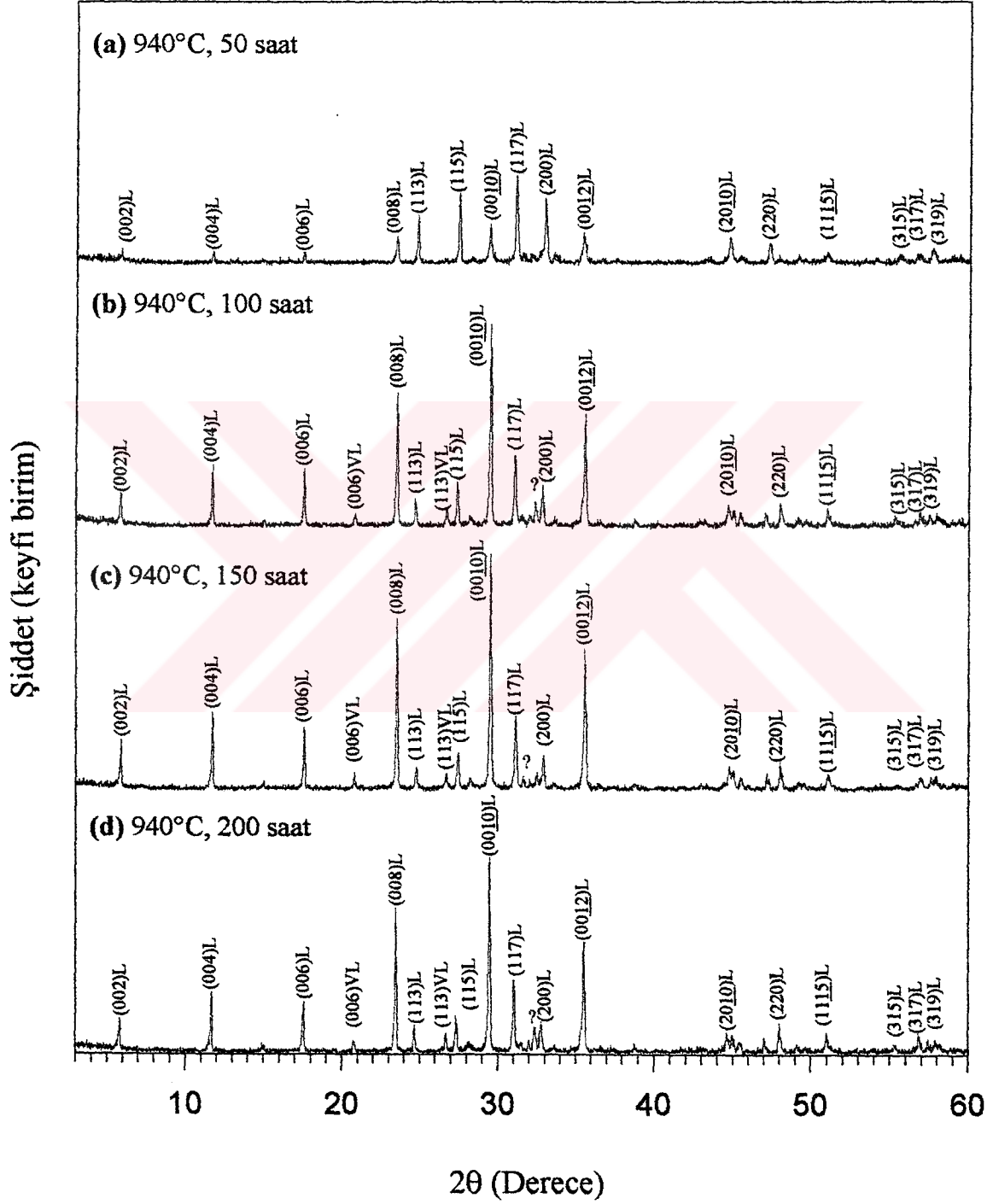




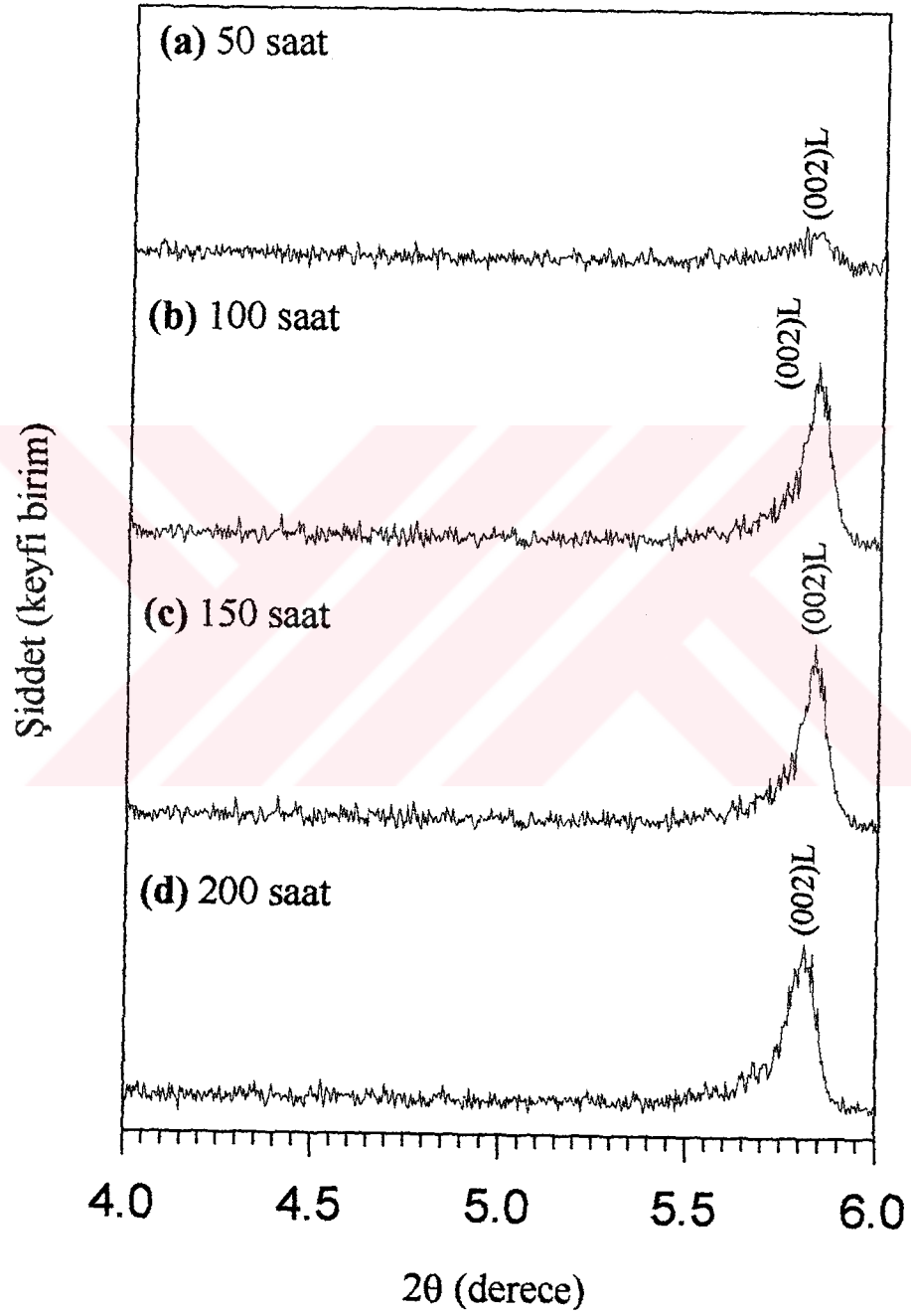
Şekil 60. 920°C'de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.5$ ) örneğinin X-ışını kırınım desenleri



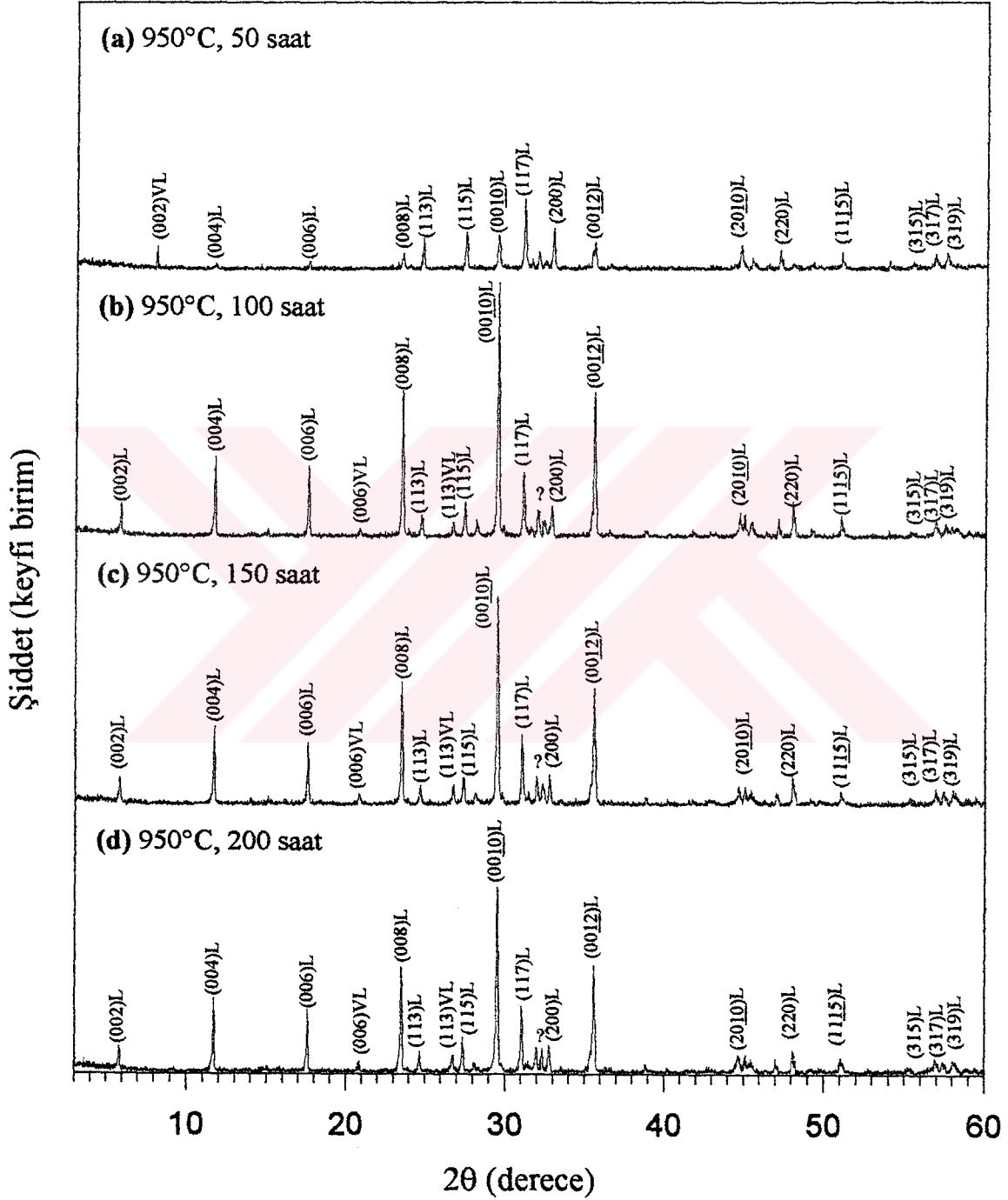
Şekil 61. 920°C'de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.5$ ) örneğinin X-ışını kırınım desenleri



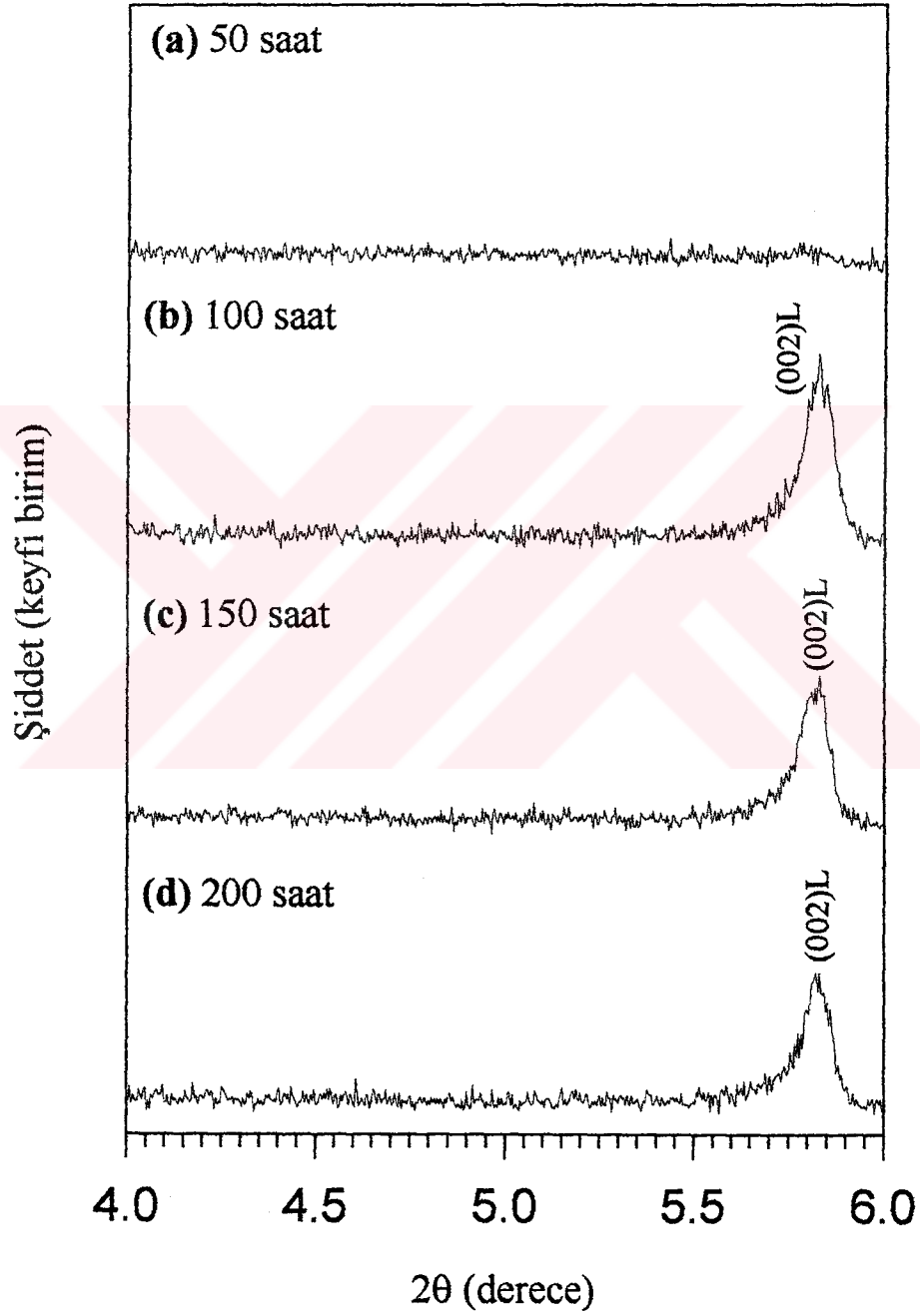
Şekil 62. 940°C'de (a) 50, (b) 100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=1.0$ ) örneğinin X-ışını kırınım desenleri



Şekil 63. 940°C'de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=1.0$ ) örneğinin X-ışını kırınım desenleri



Şekil 64. 950°C'de (a) 50, (b) 100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=1.5$ ) örneğinin X-ışını kırınım desenleri



Şekil 65. 950°C’de (a) 50, (b)100, (c) 150 ve (d) 200 saat süreyle tavlanan  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=1.5$ ) örneğinin X-ışını kırınım desenleri

Tablo 5'te X-ışını kırınımı desenlerinden faydalanılarak, örneklerin yüksek ve düşük faz oranları,  $a, c$  örgü parametreleri ve birim hücre hacmi verilmiştir.

Tablo 5. Katkı miktarı ile bazı parametreler arasındaki ilişki

Katkı miktarı (x)	Örgü parametresi (Å)		Birim Hücrenin Hacmi (Å <sup>3</sup> )	Faz oranları (%)	
	$a$	$c$		2223	2212
0	5.413	37.236	1091.036	94	06
0.0005	5.416	37.206	1091.366	92	08
0.001	5.418	37.197	1091.908	83	17
0.005	5.421	37.190	1092.291	79	21
0.01	5.424	37.181	1093.857	74	26
0.1	5.431	30.741	906.729	-----	100
0.5	5.443	30.651	908.074	-----	100
1.0	5.464	30.323	905.302	-----	100
1.5	5.468	30.278	905.283	-----	100

Tablodan görüldüğü gibi katkı ile birlikte  $a$  örgü parametresi artarken  $c$  örgü parametresi ise azalmaktadır. Birim hücre hacmi ise katkı ile birlikte arttığı gözlemlendi. Bu sonuçlar literatürle uyum göstermektedir (Satyavathi vd., 1995; Yanmaz, 1992) Zandbergen ve arkadaşları (Zandbergen vd., 1990) yaptıkları benzer çalışma sonucunda,  $Ca^{+2}$  yerine  $Sm^{+3}$  konulduğunda Bi-O tabakasındaki oksijenin artacağını ve bunun da  $a$ -örgü parametresinin artmasına bunun tam tersi olarak da  $c$ -örgü parametresinin azalmasına sebep olacağını açıklamışlardır.

### 3.3. DTA Ölçümleri

Katıhal tepkime yöntemi ile hazırlanan  $Bi_{1.6}Pb_{0.4}Sr_2Ca_{2-x}Sm_xCu_3O_y$  ( $x= 0.0; 0.5$  ve  $1.5$ ) katkılı örneklerin DTA ölçümleri, hazırlanan başlangıç tozlarından, kalsinasyon işleminden önce, yani hiçbir ısıtma tabii tutulmadan önce yapıldı. DTA ölçümündeki amaç; hazırlanacak örneklerin sinterlenmesi ve tavlama için gerekli optimum sıcaklığı tespit etmektir (Şekil 66). Şekil 66'da görüleceği gibi katkı yapılmamış tozda yaklaşık

450°C ve 860°C civarında endotermik iki reaksiyon pikleri görülmektedir. 450°C civarındaki endotermik piki Bokhimi ve arkadaşları da (Bokhimi vd., 1989) yaptıkları çalışmada gözlemişlerdir. Bokhimi ve grubu 450°C'deki endotermik piki, 400-450°C civarında tozların oksijen kaybının gerçekleştiği bir an olarak düşünmektedirler ve bu durumu yaptıkları TGA analiziyle, bu sıcaklık civarında hızlı bir oksijen kaybı olduğunu vurgulamışlardır. Samaryum katkı miktarı arttıkça 450°C civarındaki pik şiddetinin küçüldüğü ve Sm(1.5) katkı miktarında bu pikin tamamen ortadan kalktığı görüldü. Çünkü Sm<sup>+3</sup>, Bi-O tabaklarındaki oksijen miktarını arttırmaktadır. Burada Sm miktarıyla kütle kaybının önlenildiği söylenebilir. Sm miktarının artması ile erime sıcaklığı da artmaktadır. DTA sonuçlarından; temiz Bi-temelli süperiletken üretimi için sinterleme ve tavlama sıcaklığının 840-860°C aralığında olabileceği düşünülmektedir. Oota ve arkadaşları da (Oota vd., 1988) yaptıkları çalışmada başlangıçta Pb'yi 0.4 olarak kattıkları zaman sinterleme sıcaklığını bu çalışmada tayin edildiği gibi yaklaşık 860°C olarak tespit etmişlerdir. Sm katkı durumunda sinterleme ve tavlama sıcaklığının katkı miktarına göre 890-960°C aralığında olabileceği sonucuna varıldı.

### 3.4. Dilatometrik Ölçümlerin Değerlendirilmesi

Katıhal tepkime yöntemi ile üretilen örneklerin boyca genleşmeleri dilatometre yardımı ile ölçüldü ve genleşme katsayıları hesaplandı. Ölçümler oda sıcaklığı ile 800°C arasında, hava ortamında yapıldı. Örneklere her seferinde aynı işlem uygulandı ve her örneğin genleşme katsayısı,

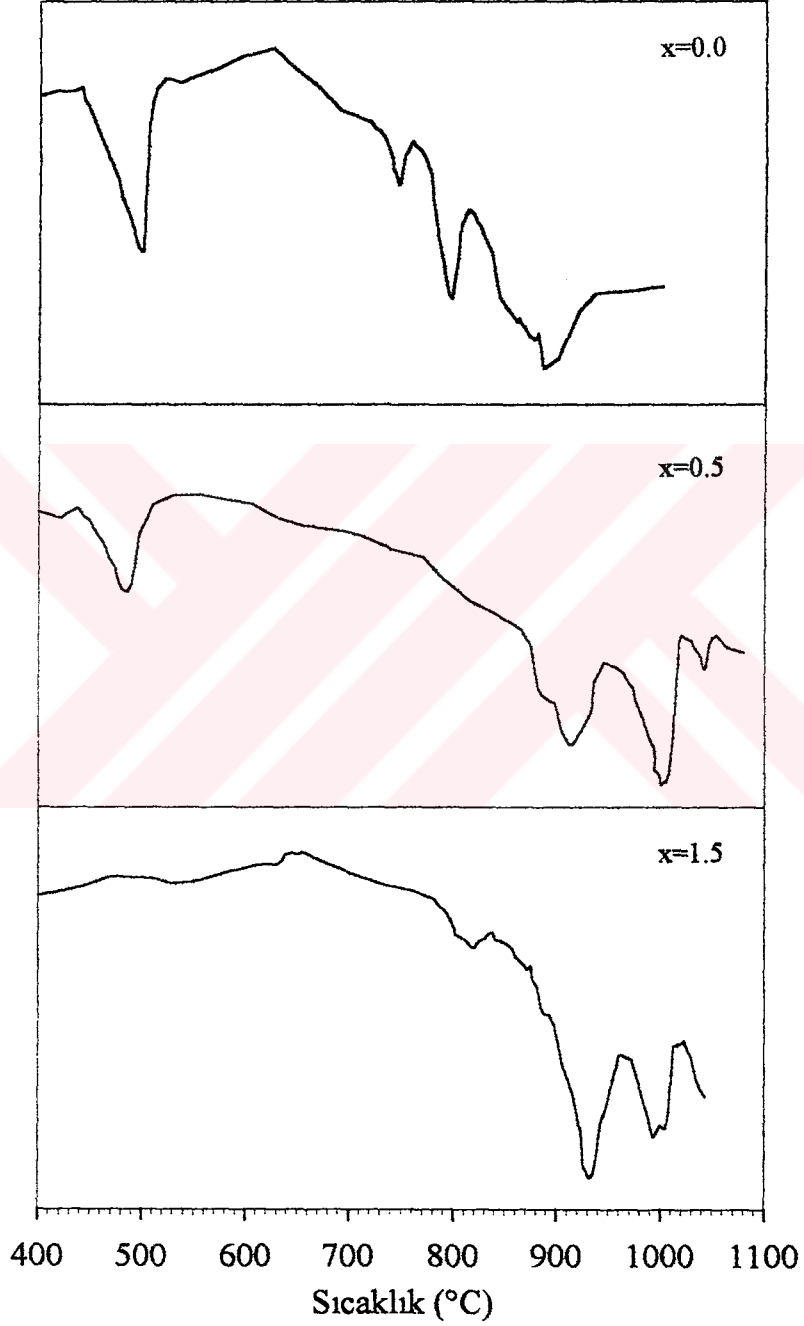
$$\alpha = \frac{\Delta l \cdot M \cdot 25}{l_{20} \cdot \Delta T \cdot V \cdot S} \quad (6)$$

formülü ile hesaplandı. Burada;  $\Delta l$ , genleşmenin sıfır noktasından itibaren ölçülen boydaki değişimi; M,  $\Delta l$  için yazıcıdaki ölçü aralığı ve değeri 10mV;  $l_{20}$ , örneğin oda sıcaklığındaki boyu;  $\Delta T$ , sıcaklık farkı; V, kazanç ve değeri 4.000 mV/mm; S kullanılan yazıcının yazma genişliği olup aynı zamanda alet sabitidir ve değeri 25'dir.

Üretilen örneklerin  $\Delta L/L_{20}$  ile sıcaklık arasındaki ilişki her bir örnek ve bütün örnekler için Şekil 67 ve 68'de görülmektedir. Yapılan hesaplamalarda katkısız örneğin

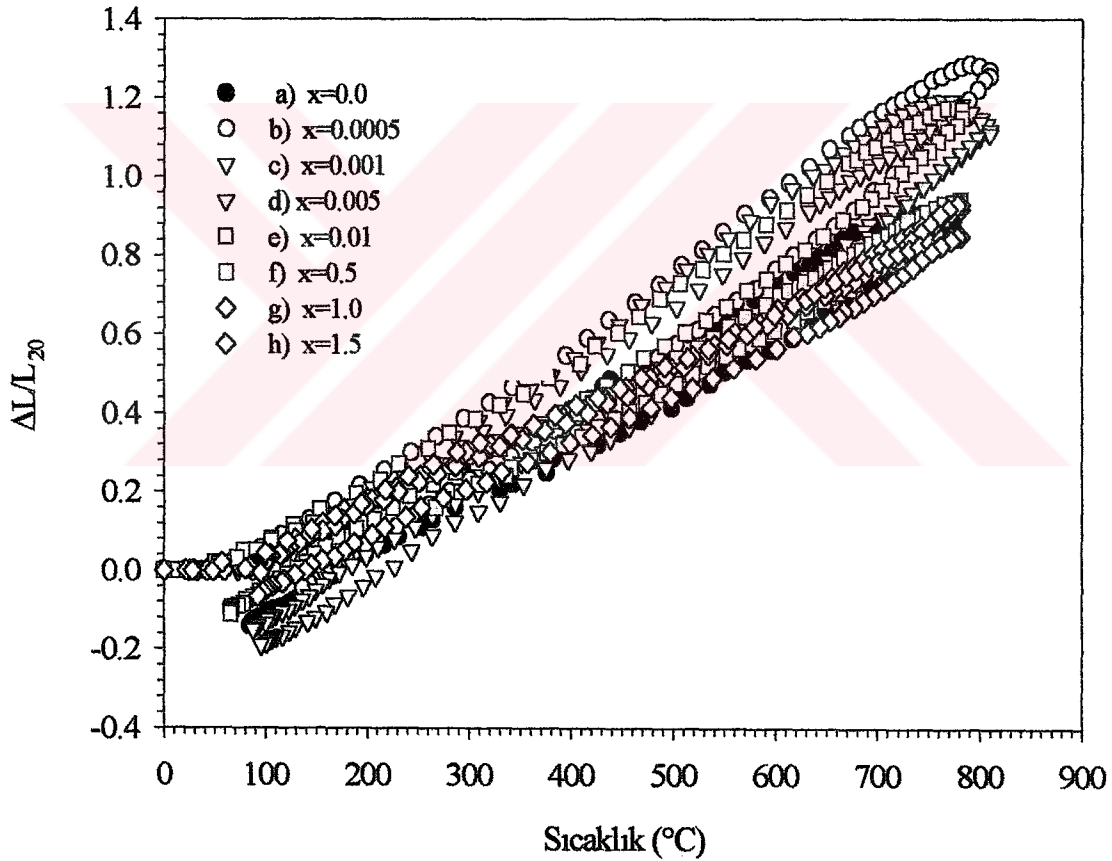


genleşme katsayısı  $7.9 \times 10^{-7}$  ( $1/^\circ\text{C}$ ) olarak hesaplandı. Daha sonra katkı ile birlikte genleşme katsayısının azaldığı görüldü.

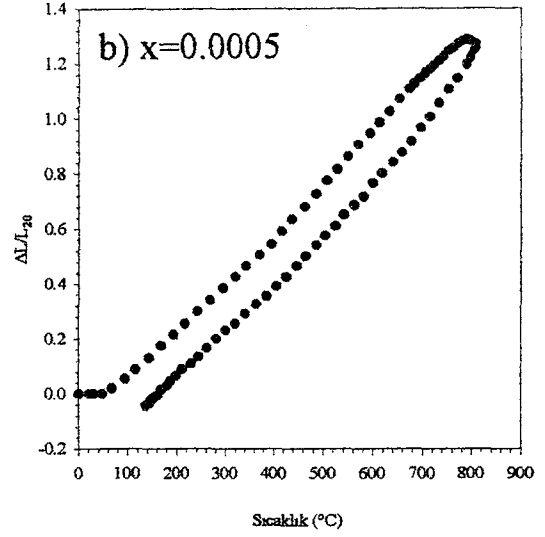
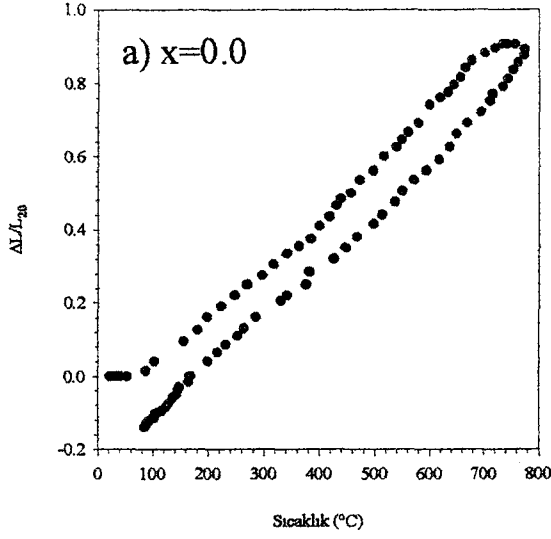
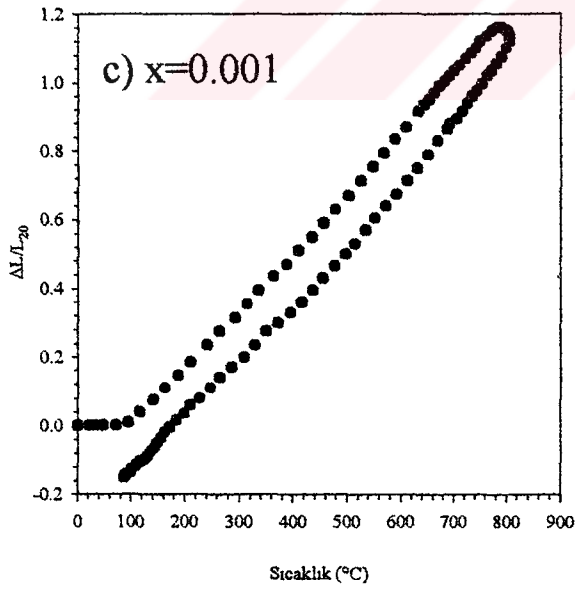
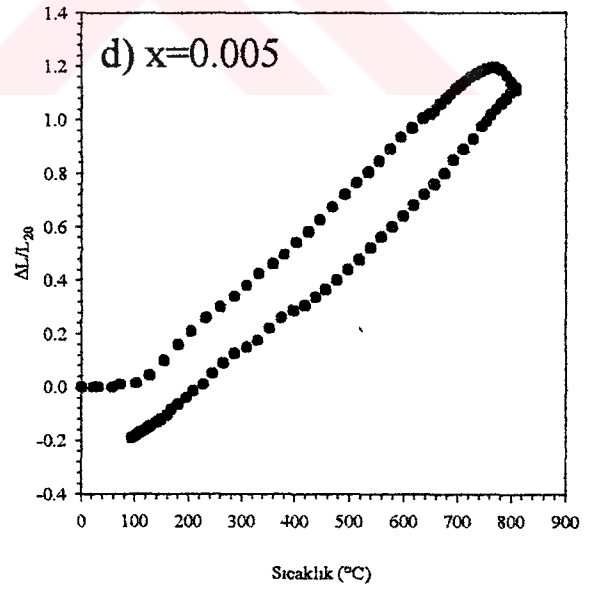


Şekil 66.  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0.0; 0.5; 1.5$ ) örneklerinin DTA analizi

Katkı ile birlikte genleşme katsayısının azaldığını Tyagi ve arkadaşları da (Tyagi vd., 1999) LaBaCuO üzerine yaptıkları çalışmada da gözlemlemişlerdir. Bu bulgu bu çalışmayla uyum göstermektedir. Bi-2223 örneğine katkı yapılan çalışmalarda genleşme katsayısının katkı ile birlikte azaldığı görülmektedir (Altunbaş vd., 1995). Bi-2212 örneği üzerinde nötron kırınım metodu ile yapılan çalışmada genleşme katsayısı ile c-örgü parametresi arasında ilişki olduğu görüldü (Arendt vd., 1991). Bu sonuç bizimki ile uyum göstermektedir. Çünkü bu çalışmada, katkı ile birlikte hem genleşme katsayısı hem de c örgü parametresi azalmaktadır (Tablo 6).

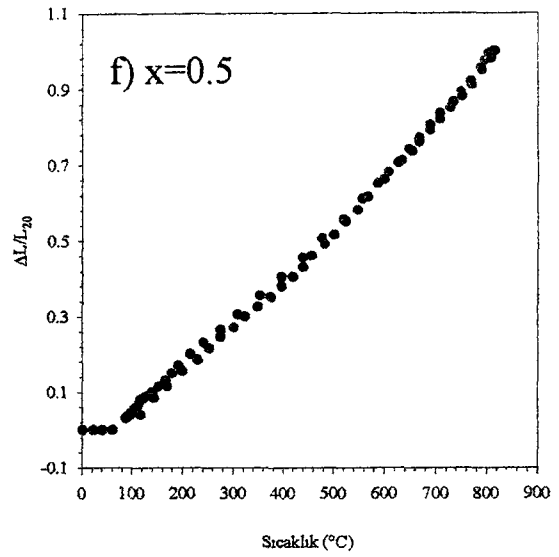
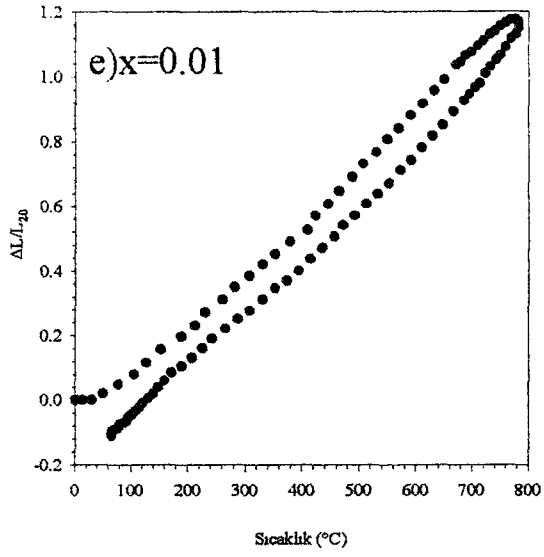
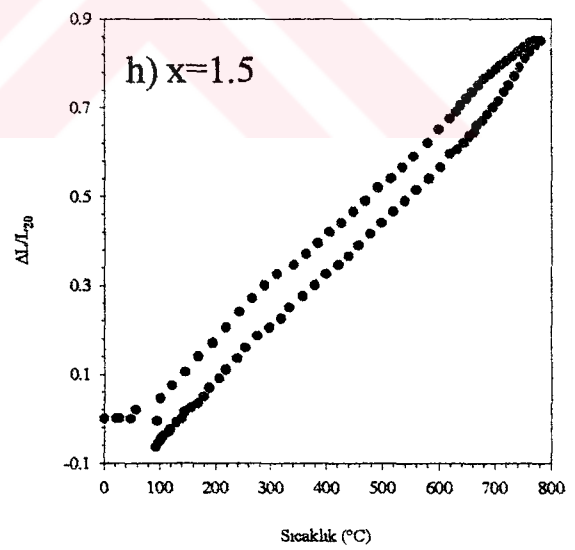
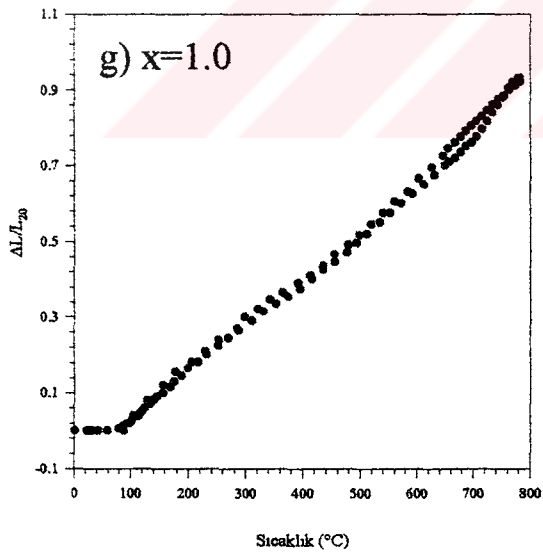


Şekil 67.  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  a)  $x=0.0$  b)  $x=0.0005$  c)  $x=0.001$  d)  $x=0.005$  e)  $x=0.01$  f)  $x=0.5$  g)  $x=1.0$  h)  $x=1.5$  katkılı örneklerin genleşme eğrilerinin toplu görünümü

a)  $x=0.0$ b)  $x=0.0005$ c)  $x=0.001$ d)  $x=0.005$ 

Şekil 68.  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  a)  $x=0.0$  b)  $x=0.0005$  c)  $x=0.001$   
d)  $x=0.005$  e)  $x=0.01$  f)  $x=0.5$  g)  $x=1.0$  h)  $x=1.5$  katkıli örneklerin genişme eğrileri

Şekil 68'in devamı

e)  $x=0.01$ f)  $x=0.5$ g)  $x=1.0$ h)  $x=1.5$

Tablo 6. Katkı miktarına göre genleşme katsayısı ile *c*-örgü parametresi arasındaki değişim

Katkı Miktarı (x)	Genleşme Katsayısı $\alpha \times 10^{-7}$ (1/°C)	<i>c</i> örgü parametresi (Å)	Faz türü
0.0	7.90	37.236	2223
0.0005	7.70	37.206	2223
0.001	7.50	37.197	2223
0.005	6.95	37.190	2223
0.01	6.50	37.181	2223
0.5	5.92	30.651	2212
1.0	5.80	30.323	2212
1.5	5.70	30.278	2212

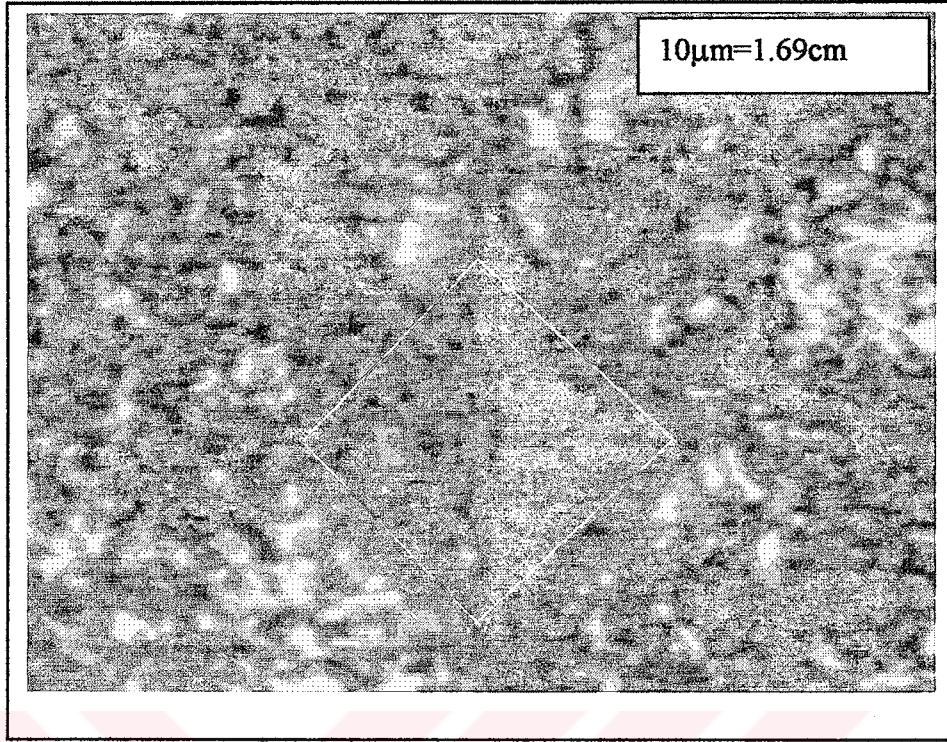
### 3.5. Mikrosertlik Ölçümlerinin Değerlendirilmesi

Katıhal tepkime yöntemi ile üretilen örneklerin sertlik ölçümleri yapıldı.

Örneğe sırasıyla 25, 50, 100, 200 ve 300 gr'lık kuvvetler uygulanarak bunların meydana getirdiği izler ölçüldü (Şekil 69). Burada, örneğe  $F = 980.7 \text{ mN}$ 'luk kuvvet (100gr.) uygulanmıştır.

Örneğe uygulanan kuvvet ve bunlara karşılık gelen izler arasındaki ilişki Şekil 70'de verilmektedir. Burada  $F-d^2$  grafiğinden yararlanarak Vickers sertliği hesaplandı. Leenders ve arkadaşları (Leenders vd., 1997) Vickers sertliğinin Eşitlik (7) yardımı ile bulunabileceğini söylediler. Burada  $H_v$ ; Vickers sertlik değeri (Vickers hardness),  $F$ ; örneğe uygulanan kuvvet;  $F_0$  örneğin kendi iç direnci;  $d^2$ ; uygulanan kuvvetle beliren izin ortalama köşegen uzunluğunun karesi olarak tanımlanır.

$$H_v = 1854.4 \left( \frac{F - F_0}{d^2} \right) \quad (\text{GPa}) \quad (7)$$



Şekil 69. Sm1 adlı örnekten alınan Vickers izinin fotoğrafı

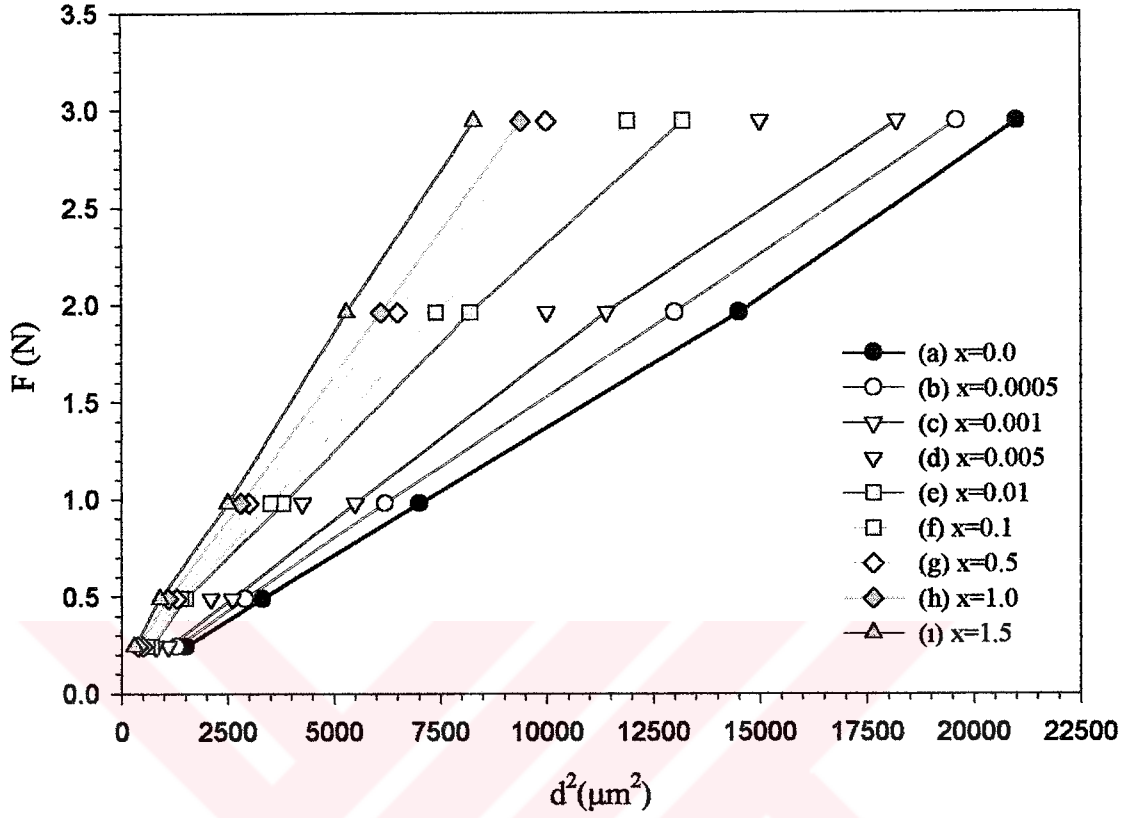
Katıhal tepkime metodu ile üretilen örneklerin Vickers sertliği hesaplandığında, artan katkı oranı ile birlikte sertliğin arttığı görüldü, buna karşılık  $F_0$  ise her örnek için farklı olup katkı ile birlikte lineer bir değişim gözlenmedi (Tablo 7).

Bi-2212 ve Bi-2223 tabanlı süperiletkenler için en yüksek sertlik değeri 1GPa'dan daha küçüktür (Charles p. Poole, JR, 2000).

Fisher ve grubu (Fisher vd., 1997) da bu çalışmadakine benzer bir çalışma yapmışlar ve benzer sonuçlar elde etmişlerdir. Fisher ve arkadaşlarının yaptıkları çalışmada katkı ile örneğin yüksek sıcaklık fazından düşük sıcaklık fazına doğru bir değişim olmasına rağmen, Vickers sertliklerinde ise artış olduğunu gözlemlediler. Bi-2223 üzerinde çalışan Bruneel ve grubu da (Bruneel vd., 2002) yaptıkları çalışma da katkı ile sertliğin arttığını gözlediler.

### 3.6. SEM ile Yapılan İnceleme

Temiz ve katkı yapılarak üretilen  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  süperiletken örneklerin SEM fotoğrafları Şekil 71'de görülmektedir.

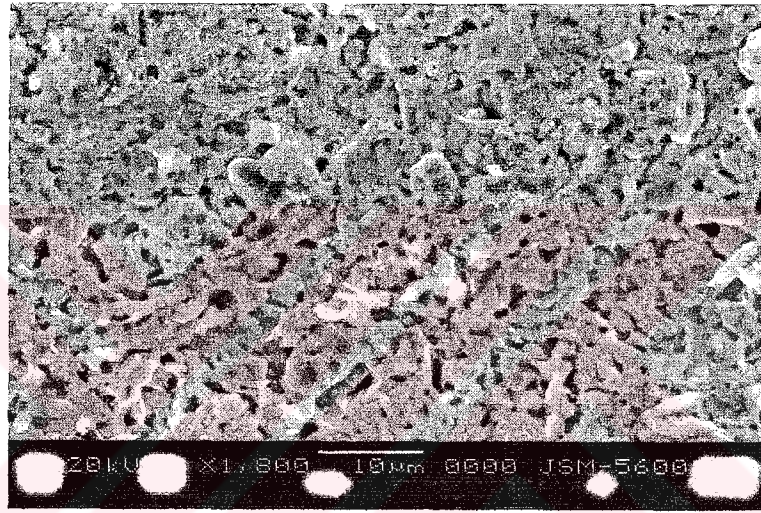


Şekil 70. Sertlik ölçümünde örneklerin F-d<sup>2</sup> değişimi

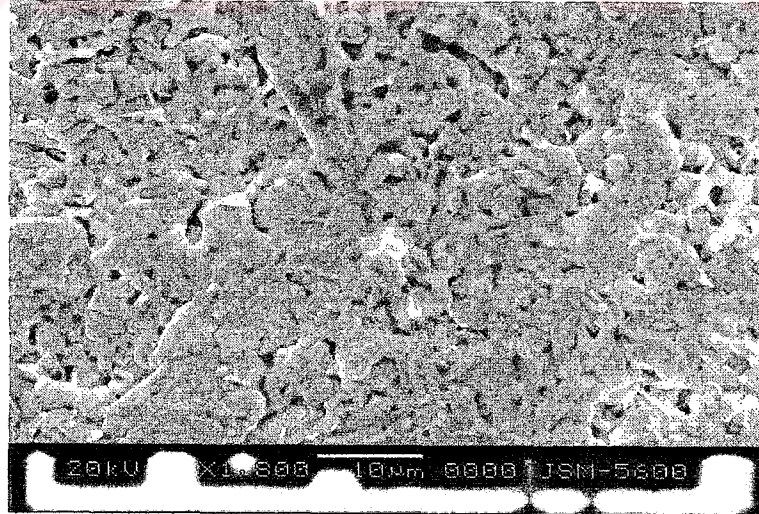
Tablo 7. Katkı miktarı ile sertlik ve F<sub>0</sub> miktarının değişimi.

Katkı miktarı (x)	F <sub>0</sub> x10 <sup>-2</sup> (N)	H <sub>0</sub> (GPa)
0.0	2.722	0.254
0.0005	6.102	0.272
0.001	9.241	0.294
0.005	11.540	0.348
0.01	14.840	0.398
0.1	14.180	0.442
0.5	11.850	0.525
1.0	14.450	0.552
1.5	16.120	0.623

SEM fotoğrafları, 1 cm'lik ölçek 10µm'yi gösterecek şekilde ve 1800 büyütme yapılarak çekildi. Bütün SEM fotoğrafları yapının tabakalı biçimde olduğunu işaret etmektedir. Aynı zamanda yüksek katkı örneklerde porozite gözlenmektedir. Katkısız ve düşük katkı örneklerin daha homojen, yoğun ve az poroziteye sahip olduğu görülmektedir. Katkı oranı arttıkça homojenliğin bozulduğu ve bazı tanelerin büyüdüğü görülmektedir.  $x=0.5$  ve yukarıdaki katkılarda, morfolojinin tamamen değiştiği porozitenin çoğaldığı ve süperiletken tanelerin birbirlerinden koptuğu görülmektedir. Bu sebeple, bu örneklerin süperiletken özellik göstermeyeceği düşünülmektedir. Bu düşünce, XRD ve elektriksel özellikler ölçüm sonuçları ile uyusmaktadır.



(a)

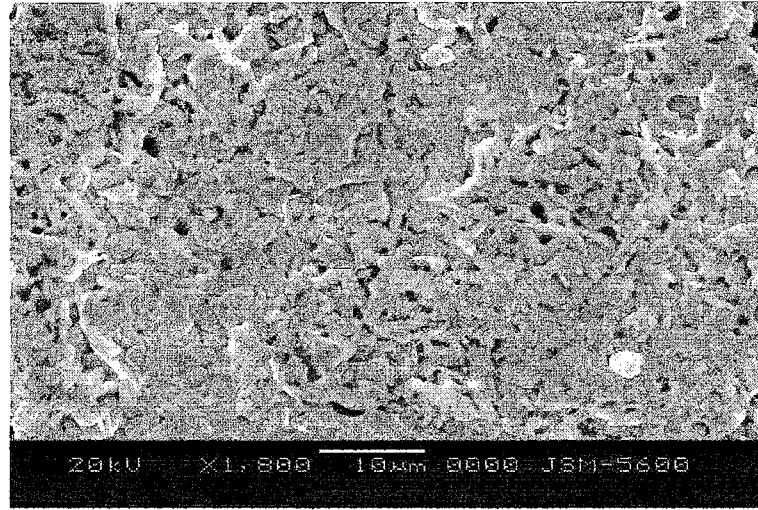


(b)

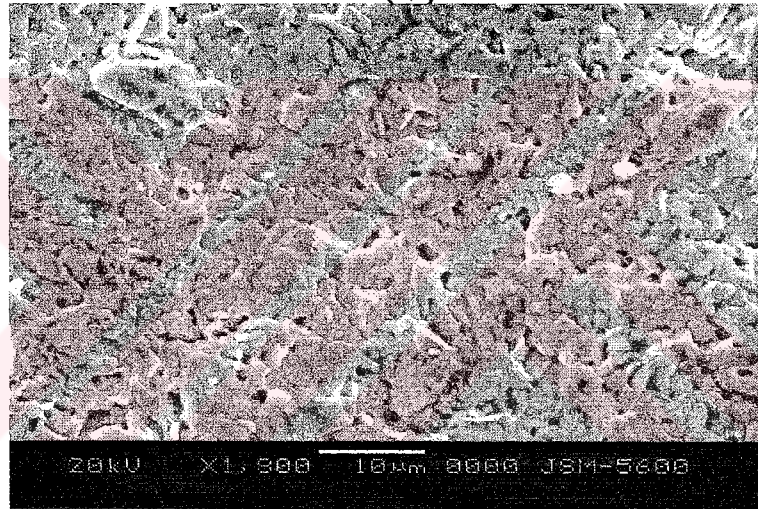
Şekil 71.  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  a)  $x=0.0$  b)  $x=0.0005$  c)  $x=0.001$  d)  $x=0.005$  e)  $x=0.01$  f)  $x=0.1$  g)  $x=0.5$  h)  $x=1.0$  ı)  $x=1.5$  katkıli örneklerinin SEM fotoğrafları



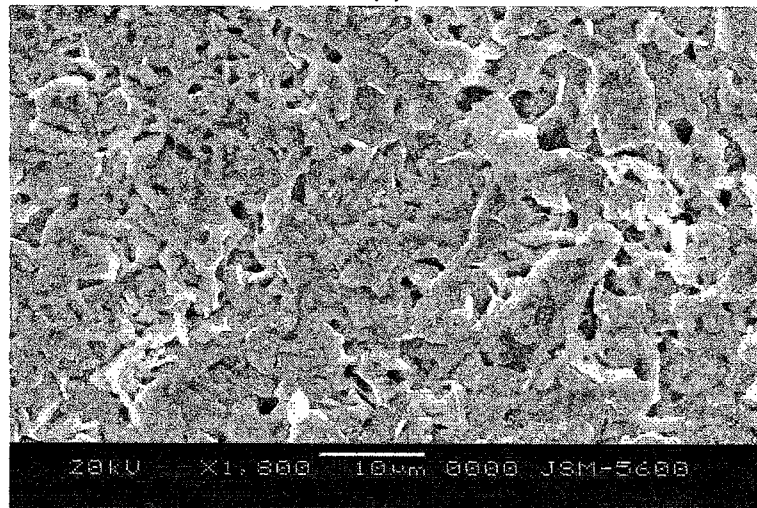
Şekil 71'in devamı



(c)

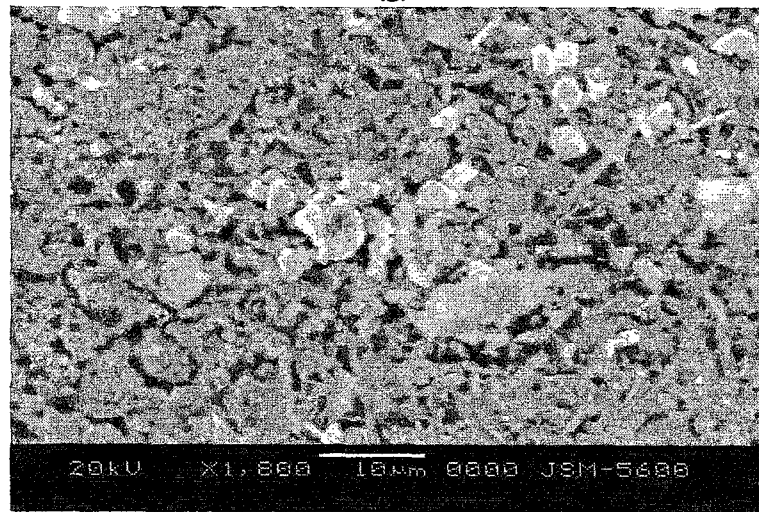
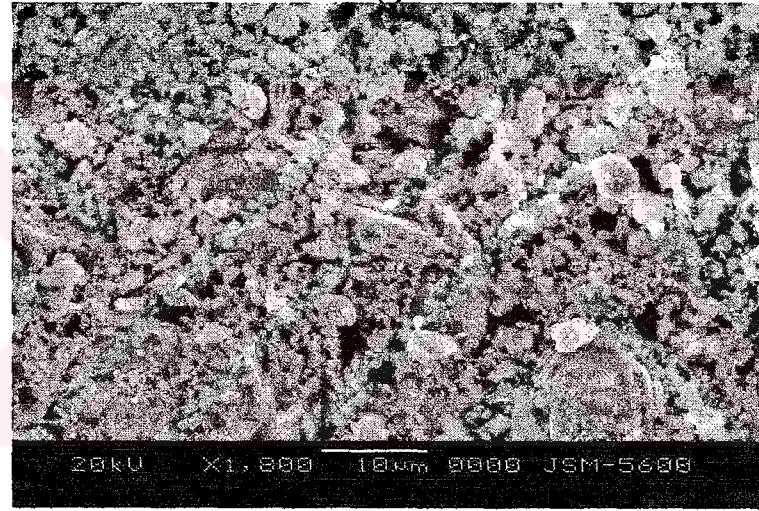
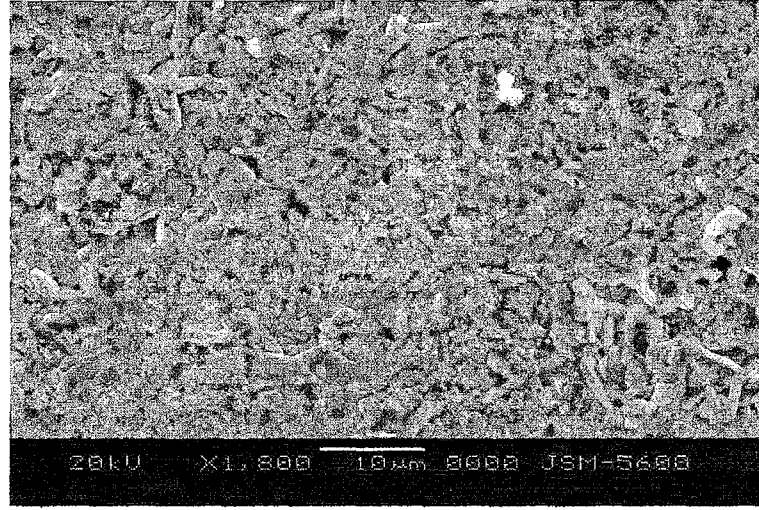


(d)

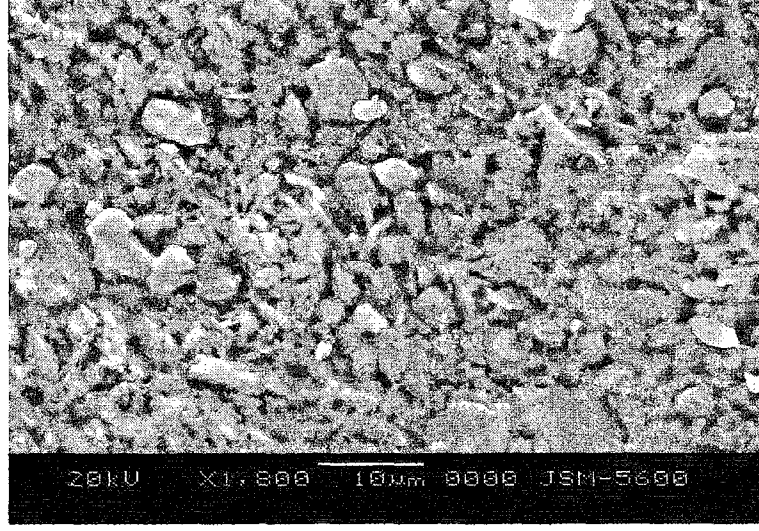


(e)

Şekil 71'in devamı



Şekil 71'in devamı



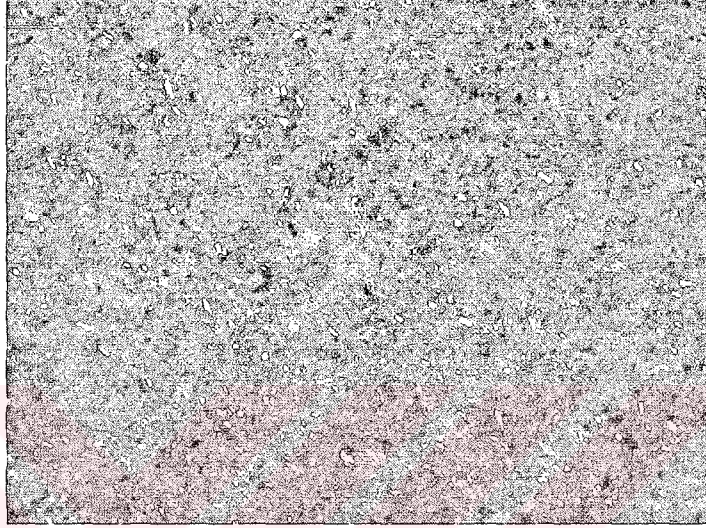
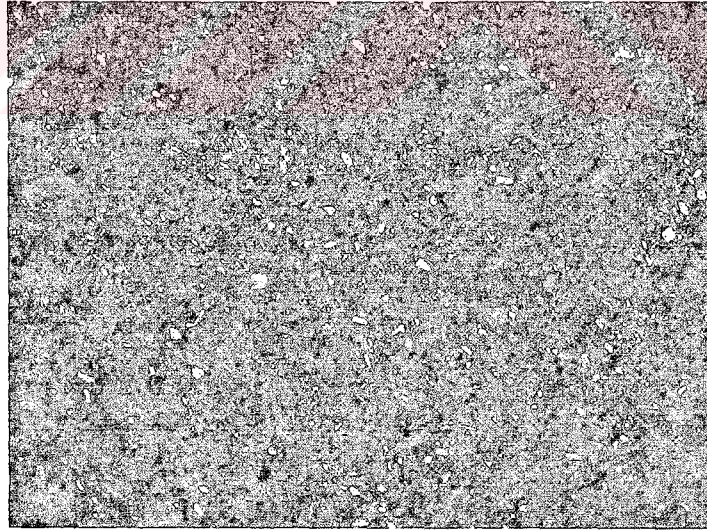
(1)

### 3.7. Metalografik İnceleme

Katıhal tepkime yöntemiyle üretilen katkısız ve  $\text{Sm}_2\text{O}_3$  katkılı örneklerin polarize ışık altında çekilmiş optik mikrografları Şekil 72'de verildi. Örneklerin optik mikrografları örneklerin orta bölgelerine yakın bölgelerden çekildi. Örneklerin parlatılması esnasında bazı zorluklarla karşılaşıldı. Özellikle ısıl işlem görmüş Bi-tabanlı süperiletkenler yumuşak olduklarından düzensiz bir parlatma esnasında veya belli açılarla parlatma yapılmadığı zaman derin çizikler oluşuyor. Örnekler polikristal yapıda olduklarından parlatma sırasında küçük taneler dökülmekte ve oluşan boşluklar fotoğrafta siyah olarak görülmektedir. Örnekler zımpara kağıdına sürülürken belli bir yönde sürülmeli ve daha sonra örneği  $90^\circ$  çevirerek sürmeye devam edilmelidir. Bu şekilde yapılıncaya parlatma işleminden daha iyi sonuç alınmaktadır.

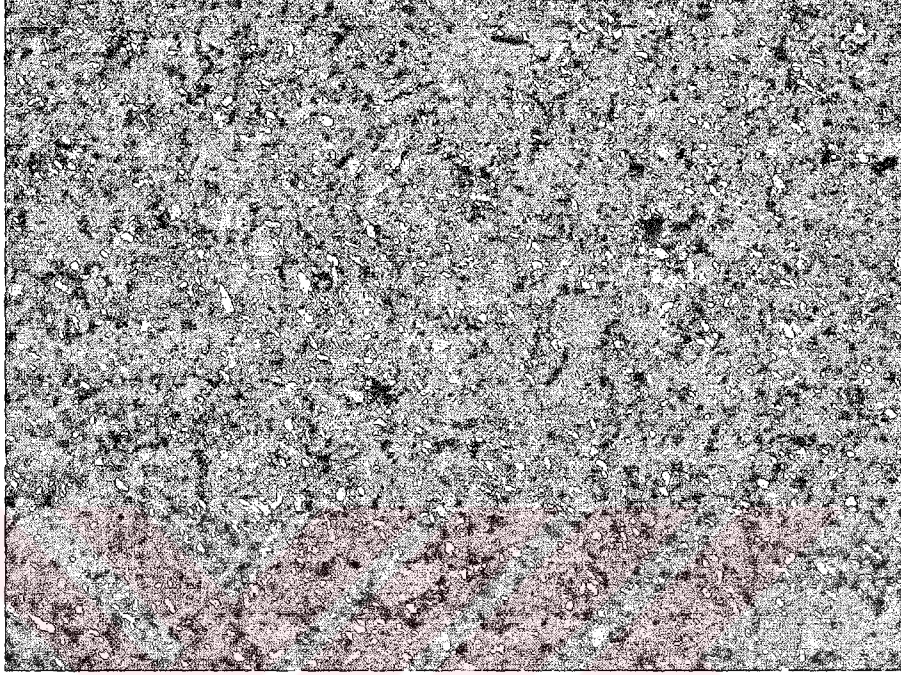
Şekil 72a katkı yapılmamış örneğin polarize optik filmini göstermektedir. Bu film incelendiğinde tane boyutlarının fazla büyük olmadığı, iğnemsisi ve homojen bir dağılımın olduğu görüldü. Bu sinterleme sıcaklığının uygun olduğunu göstermektedir. Böylece taneler arası iletkenlik sağlanmış olur. Düşük katkılarda (Şekil 72b) fazla bir değişiklik olmazken daha yüksek katkılarda (Şekil 72c,d,e) tamamen homojenliğin bozulduğu

görüldü. Bütün örneklerde tanelerin yeteri kadar büyümediği görüldü. Örneklerden çekilen fotoğraflarda, polarize ışık kullanılarak elde edilen farklı renkler, farklı kristal yönlenmelerinin olduğunu göstermektedir. Aynı zamanda bu sonuçlar XRD sonuçlarla uyum göstermektedir. Şekil 72c,d,e de siyah bölgelerin varlığı görüldü. Bu bölgeler parlatma işlemi sırasında dökülmüş boşluklardır.

a)  $x=0.0$ b)  $x=0.0005$ 

Şekil 72.  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  a)  $x=0.0$  b)  $x=0.0005$  c)  $x=0.1$  d)  $x=0.5$   
e) 1.5 katkıli örneklerin optik mikrografları

Şekil 72'nin devamı

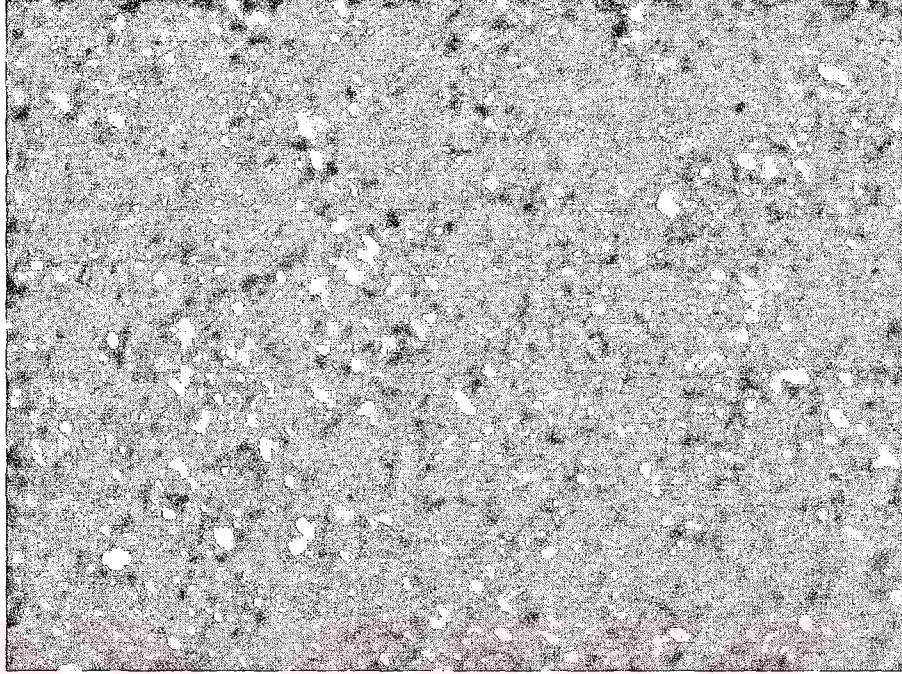


c)  $x=0.1$



d)  $x=0.5$

Şekil 72'nin devamı



e)  $x=1.5$

### 3.8. Elektriksel Özdirenç Ölçümlerinin Mukayesesi

Katıhal tepkime yöntemi ile üretilen; toplam 200 saat ısıtılma ve 3 ara öğütmeye tabi tutulan örneklerin özdirenç-sıcaklık eğrileri Şekil 73'de görülmektedir. Şekil 73, 130K'deki değere göre normalize edilmiştir. Burada görüldüğü gibi en küçük katkı (0.0005) miktarında  $T_{c_{onset}}$  katkısız örnek ile hemen hemen aynı değerdedir (116K). Kishore ve arkadaşları (Kishore vd., 1993) da yaptıkları çalışmada yaklaşık olarak aynı sonucu bulmuşlardır (115K).

Katkısız örnek keskin bir süperiletken özellik gösterdi. Bu örneğin süperiletken başlangıç sıcaklığının ( $T_{c_{onset}}$ ) ve elektriksel özdirençin sıfır olduğu sıcaklığın ( $T_{c_{offset}}$ ) sırası ile 116 K ve 107 K oldukları tespit edildi. Buna göre süperiletken hale geçiş aralığı  $\Delta T$  ( $T_{c_{onset}} - T_{c_{offset}}$ ) = 9 K olmasına rağmen katkı ile birlikte bu geçiş aralığı da artmaktadır (Tablo 8). Bu benzer sonuçlar, bazı çalışma grupları tarafından da gözlemlendi (Kishore vd., 1996).

Katkı miktarı arttıkça örneklerin kritik geçiş sıcaklığı düşmekte ve  $x=0.5$  katkılı örneklerden sonra tamamen yarıiletken özellik göstermektedir. Yoshida ve çalışma grubu da buna benzer bir çalışma yapmışlardır ve Ca'nın yerine Pr, Nd, Sm, Eu ve Gd katmışlardır. Katkı sonucunda belli bir orandan sonra ( $x=0.3$ ) örneklerin yarıiletken özellik gösterdiğini buldular (Yoshida vd., 2001). Bazı çalışma grupları da aynı sonuçları bulmuşlardır (Li vd., 2000).

Üretilen örneklerin  $T_c^{offset}$  değerleri kullanılarak, bilgisayar programı yardımı ile katkı miktarı ile  $T_c^{offset}$  arasında

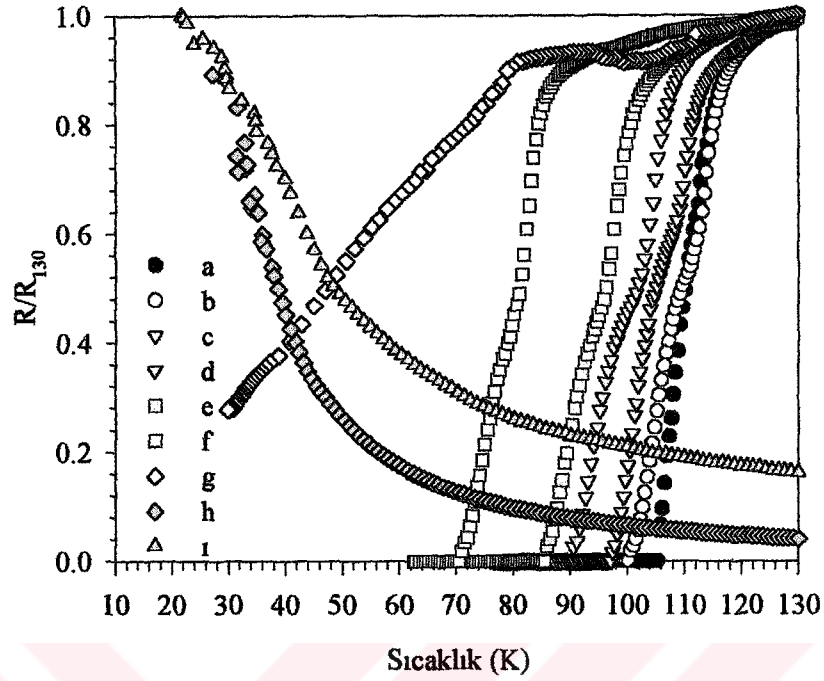
$$T_c^{offset} = \frac{1.075 \times 10^2}{1 + \left( \frac{y}{4.886 \times 10^{-1}} \right)^{0.3785}} \quad 0 \leq y \leq 0.1 \quad (8)$$

şeklinde bir ilişki olduğu görüldü. Eşitlik 8'deki  $y$  katkı miktarını göstermektedir. Bu formül yalnızca  $Sm_2O_3$  katkısında ve 0.1 katkı miktarına kadar geçerlidir. Çünkü bu katkı miktarından sonra yapı yarıiletken özellik göstermektedir. Eşitlik (8) yardımı ile hesaplanan ve deneysel sonuç  $T_c^{offset}$  değerleri arasındaki ilişki Tablo 8'de verilmektedir.

Bu sonuçlar, daha önce yapılan çalışmalarla (Kishore vd., 1993; 1996; Dzhafarov vd., 1997; Xu vd., 2002) iyi bir uyum göstermektedir. Bazı çalışma gruplarının (Ilonca vd., 2001) aynı yöntemle ürettikleri örneklerin kritik geçiş sıcaklıkları, bizim ürettiğimiz örneklerden daha düşüktür.

### 3.9. AC Magnetik Alınganlık Ölçüm Sonuçları

860°C'de 200 saat tavlanan örneklerin AC alınganlık ölçümleri 2.88 A/m alan ve 722 Hz'lik frekans altında 75-130 K aralığında yapıldı. Ölçüm sonuçları, Şekil 74'de görülmektedir. Örneklerin hiçbirinde tanecik içi soğurma piki gözlenmemiştir. Ancak tanecik içi pike ait soğurma piki, tanecik içi kritik magnetik alan değerinden yüksek alanlarda gözlenebilir (Nikolo vd., 1989; Yanmaz vd., 2001). Bu çalışmadaki örnekler de bu duruma uymaktadır. Yani tanecik içi süperiletken geçiş sıcaklığı ile birinci diamagnetik



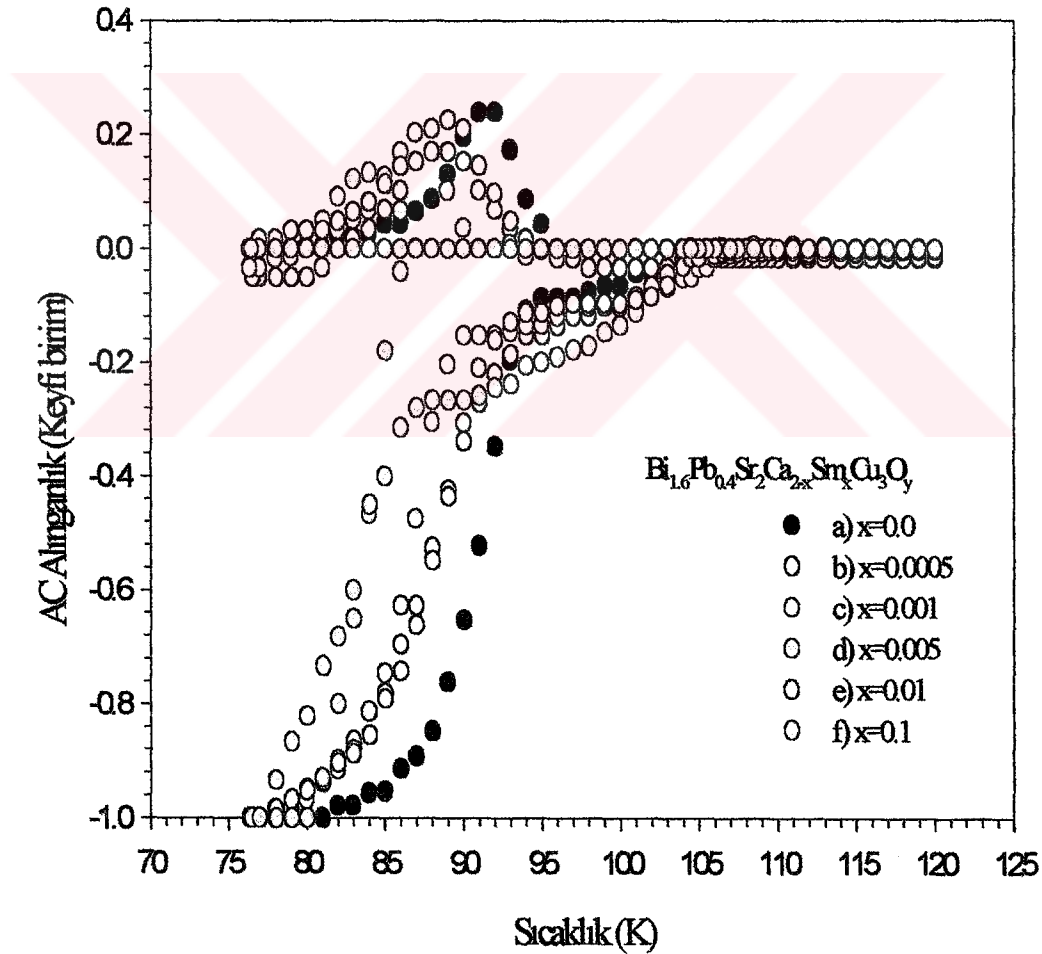
Şekil 73.  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  a)  $x=0.0$  b)  $x=0.0005$  c)  $x=0.001$  d)  $x=0.005$  e)  $x=0.01$  f)  $x=0.1$  g)  $0.5$  h)  $x=1.0$  ve i)  $x=1.5$  katkılı örneklerin 130 K'de normalize edilmiş öz direnç-sıcaklık eğrileri

Tablo 8.  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  örneğinin kritik geçiş sıcaklığı ve  $\Delta T$  geçiş aralığı

Katkı Miktarı (x)	$T_c^{\text{onset}}$ (K)	$T_c^{\text{offset}}$ (K)		$\Delta T$ (K)
		Deneysel	Hesaplanan	
0.0	116	107	107.5	9
0.0005	116	102	100.1	14
0.001	112	97	98.1	15
0.005	107	93	91.2	16
0.01	102	85	87.4	17
0.1	88	70	69.4	18
0.5	78	28	----	50
1.0	----	---	----	---
1.5	----	---	----	---



geçişin başladığı sıcaklık birbirine eşittir. AC alınganlık ölçümlerindeki süperiletkenlik geçiş sıcaklığı ( $T_c^{onset}$ ), özdirenç ölçümlerindeki süperiletkenlik geçiş sıcaklığı ( $T_c^{onset}$ ) değerinden yaklaşık olarak 6-8 K daha düşük değerdedir. Bu çalışmadaki gibi benzer şekilde Kishore ve grubu da (Kishore vd., 1993) Bi-2223 örneğine  $Sm_2O_3$  kattıklarında bu farkı gözlediler. Şekil 74’de görüldüğü gibi katkı ile birlikte taneler arası süperiletken geçiş pik sıcaklığı ( $T_p$ ) düşük sıcaklıklara doğru kaymaktadır. Bunun nedeni, gözenekli yapıya sahip olan katkısız örnekte, katkı ile birlikte gözenek artmakta ve bundan dolayı taneler arası temas azalmaktadır. Bunun sonucu olarak da taneler arası süperiletken geçiş sıcaklık piki katkı ile birlikte düşük sıcaklıklara doğru kaymaktadır.



Şekil 74.  $Bi_{1.6}Pb_{0.4}Sr_{2-2x}Sm_xCu_3O_y$  a)  $x=0.0$  b)  $x=0.0005$  c)  $x=0.001$  d)  $x=0.005$  e)  $x=0.01$  f)  $x=0.1$  katkılı örneklerin 75-120 K arasındaki a.c. alınganlık ölçümleri

### 3.10. Kritik Akım Yoğunluğu Ölçümlerinin Değerlendirmesi

Katıhal tepkime yöntemiyle 200 saat tavlanan ve 3 kez ara öğütmeye tabi tutulan örneklerin kritik akım yoğunlukları, sıvı azot sıcaklığında (77 K ) dört nokta yöntemi ile aşağıdaki biçimde ölçüldü.

Hazırlanan örneklerin kritik akım yoğunlukları iki farklı yol izlenerek ölçüldü:

- a) Bunlardan biri alan yokken örneğin soğutulduğu ZFC (Zero Field Cooled) işlemidir. ZFCV (Zero Field Cooled Virgin); ZFC işleminden sonra adım adım magnetik alan uygulanması esnasındaki ölçümlere karşılık gelmektedir. ZFCD ise (Zero Field Cooled Decreased), maksimum bir alandan sonra alanın adım adım azaltıldığı durumdaki ölçümleri temsil etmektedir.
- b) Diğer işlem ise seçilen dış bir magnetik alanın varlığında, numunenin soğutulduğu FC ( Field Cooled ) işlemidir. FCD ( Field Cooled Decreased) ise, seçilen bu maksimum alandan sonra alanın adım adım azaltıldığı durumdaki ölçümleri temsil etmektedir (Çelebi., Vd., 2000)

Şekil 75' de katkılı örneklerin ZFCV, ZFCD ve FCD ölçümleri görülmektedir. Şekil 74a'dan görülebileceği gibi,  $B=6\text{mT}$ 'daki FC durumu için  $J_c=2.10 \text{ A/cm}^2$ , ZFCV ve ZFCD için  $J_c=1.65 \text{ A/cm}^2$ 'dir. Fakat alan sıfır olduğunda ( $B=0 \text{ mT}$ ) tam tersi durum geçerlidir. Bu durumda ZFCV için  $J_c= 43.42 \text{ A/cm}^2$ , ZFCD için  $J_c= 37.73 \text{ A/cm}^2$  ve FCD için ise  $J_c= 34.73 \text{ A/cm}^2$ 'dir. Bunun sebebi alan altında soğutmada ve alanı sıfıra azaltma durumunda (FCD,  $B=0 \text{ mT}$ ) taneler,  $B=0\text{mT}$ 'da ZFCD durumunda olandan daha büyük bir Şekilde paramagnetik olarak mıknatıslanırlar. Bunun bir sonucu olarak,  $B=0\text{mT}$ 'daki FCD için  $J_c$  değeri, ZFCD için olan  $J_c$  değerinden daha düşüktür. Bu durum Şekil 75 b,c,d ve e durumları için de geçerlidir (Tablo 9). Şekil 75e durumundaki örneğe  $4.4\text{mT}$  dan daha fazla alan uygulanamadı.

Şekil 75 incelendiğinde kritik akım yoğunluğunun her durumda katkı ile birlikte azaldığı görülmektedir. Bu sonuç Bi-2223 üzerine katkı yapan bazı çalışma gruplarının sonuçları ile uyum göstermektedir (Tepe vd., 1998).

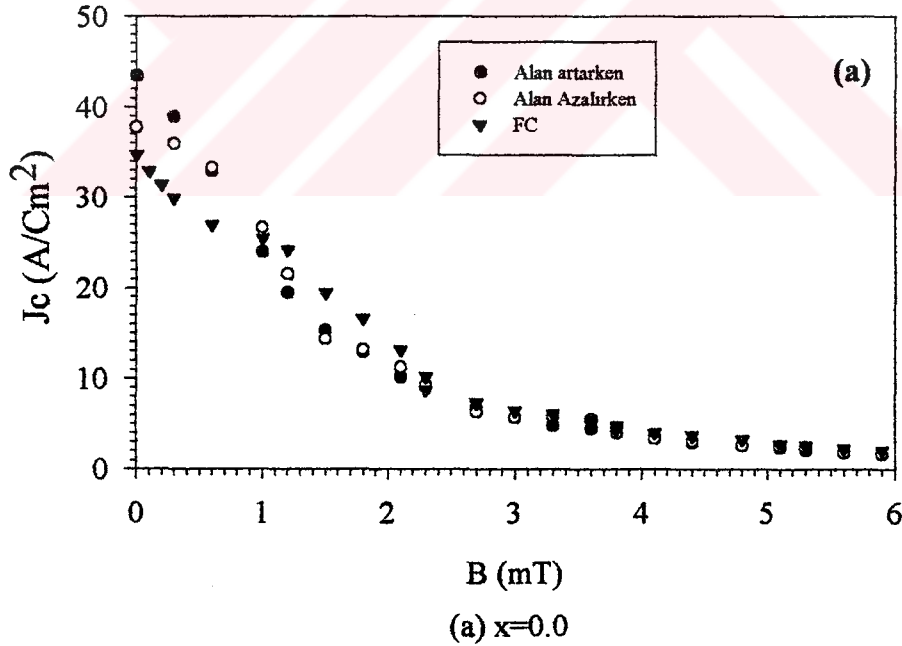
AC alınganlık ölçü sonuçları yardımı ile, Bean modelini kullanarak Clem (Clem vd., 1988), taneler arası ve tane içinde dolaşan akımı aşağıdaki eşitliklerden elde etti;

$$\chi'(T) = -1 + \frac{J_c(T_p)}{J_c(T)} \left( 1 - \frac{5J_c(T_p)}{16J_c(T)} \right) \quad T < T_p \text{ için} \quad (9)$$

$$\chi'(T) = \frac{-5J_c(T)}{16J_c(T_p)} \quad T > T_p \text{ için} \quad (10)$$

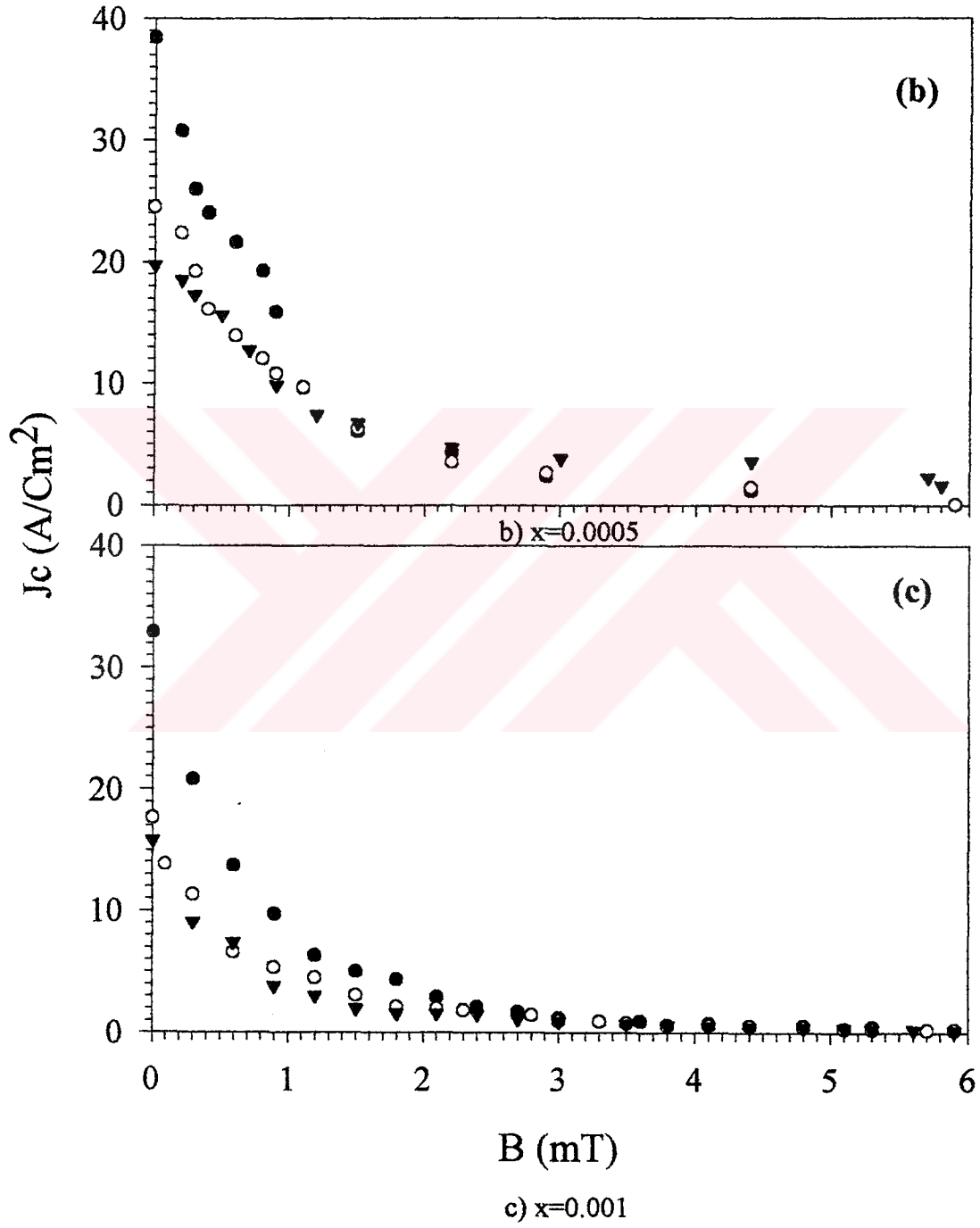
Burada  $T_p$ , AC alınganlığın sanal kısmının maksimumuna karşılık gelen pik sıcaklığı ve  $J_c(T_p)$  ise bu sıcaklığa karşılık gelen kritik akım yoğunluğunu ve  $J_c(T)$  ise herhangi bir sıcaklıktaki kritik akım yoğunluğunu göstermektedir.

Bu çalışmada kritik akım yoğunluğu yalnızca sıvı azot sıcaklığında ölçüldüğü için, Clem modeli ( eşitlik (9) ve (10) ) 77 K için uygulnadı. Şekil 76'da bu sonuç açık olarak görülmektedir. Şekilde de görüldüğü gibi teorik sonuçlar dört nokta yöntemi ile elde ettiğimiz sonuçlardan biraz daha fazladır.

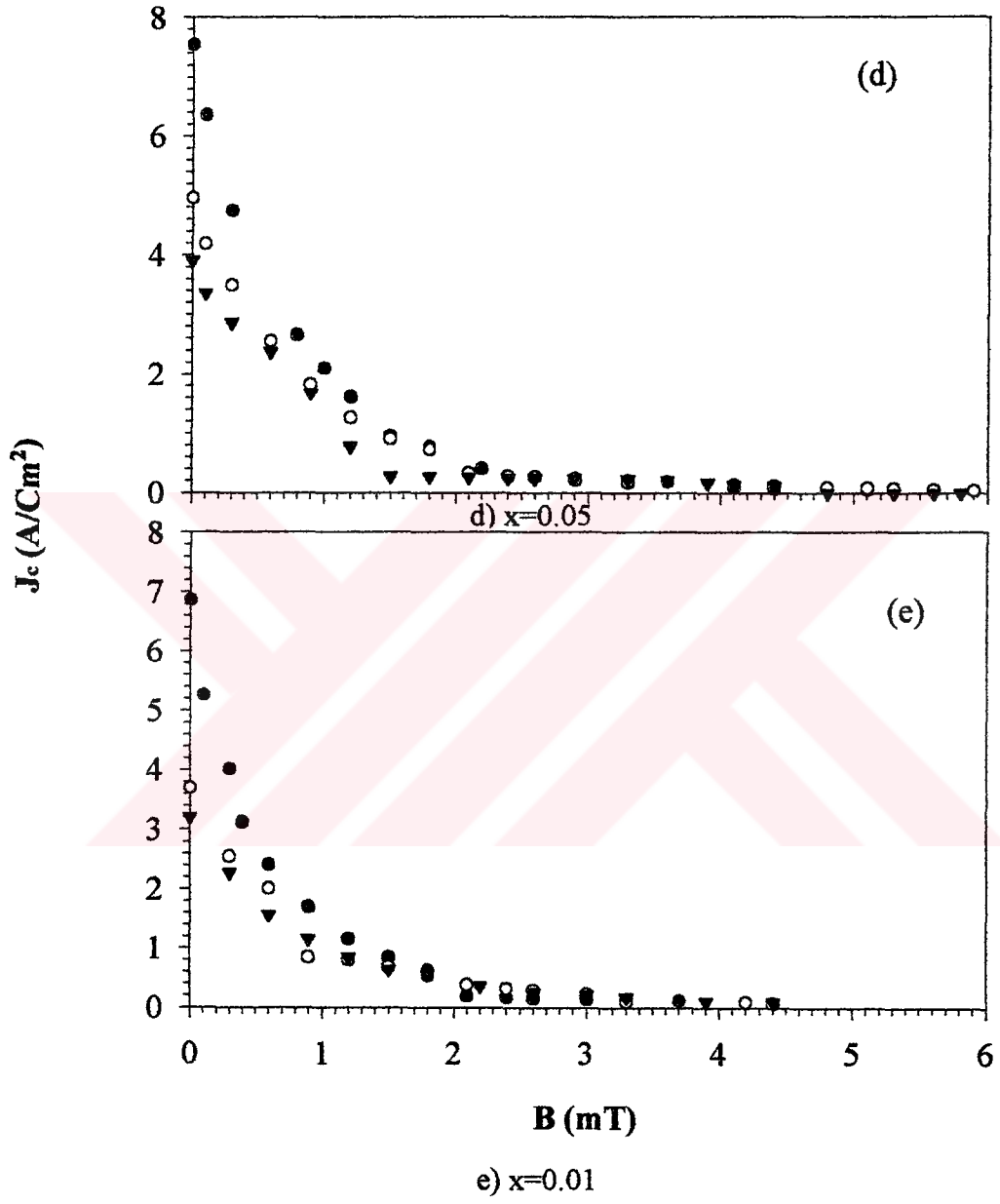


Şekil 75.  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  a)  $x=0.0$  b)  $x=0.0005$  c)  $x=0.001$  d)  $x=0.005$  e)  $x=0.01$  katkılı örneklerin alana bağlı kritik akım yoğunlukları

Şekil 75'in devamı

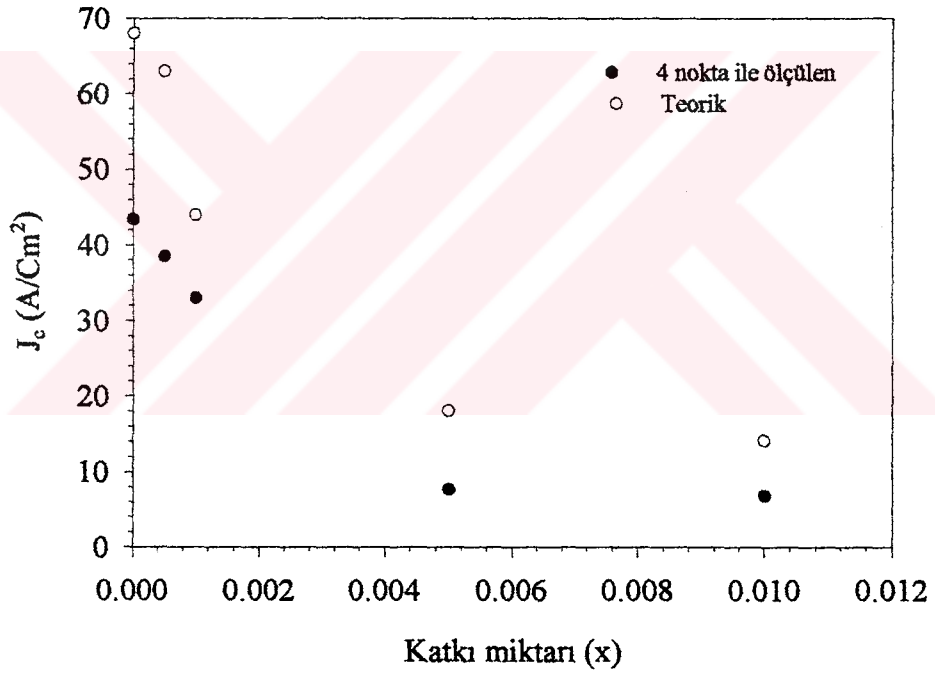


Şekil 75'in devamı



Tablo 9. Katkı ile kritik akım yoğunluğu arasındaki ilişki

Katkı miktarı (x)	B=0 mT, T=77K			B=6 mT, T=77K	
	ZFCV	ZFCD	FC	ZFCD	FC
0.0	43.42	37.73	34.73	1.65	2.10
0.0005	38.44	24.50	19.70	0.06	1.63
0.001	32.94	17.66	15.81	0.21	0.20
0.005	7.5	4.96	3.90	0.04	0.04
0.01	6.86	3.70	3.21	0.07	0.10



Şekil 76. Katkı miktarı ile teorik ve dört nokta ile elde edilen kritik akım yoğunluğunun değişimi

#### 4. TARTIŞMA

Elde edilen sonuçlardan anlaşılacağı gibi artan katkı miktarı ile birlikte yapının sürekliliği bozulmakta ve bunun paralelinde yüksek sıcaklık fazından düşük sıcaklık fazına doğru bir geçiş gözlenmektedir. Bunun sebebi şu şekilde sıralanabilir :

- i.  $r_{Ca^{+2}}=0.106\text{nm}$  iyonik yarıçaplı  $Ca^{+2}$  yerine  $r_{Sm^{+3}}=0.113\text{nm}$  iyonik yarıçaplı  $Sm^{+3}$  katıldığında XRD desenlerindeki değişim açıklanabilir.
- ii. Kishore ve arkadaşları ( Kishore vd., 1993) yaptıkları çalışma sonucunda  $Ca^{+2}$  yerine  $Sm^{+3}$  katılmasının yüksek sıcaklık fazının (2223) süperiletkenlik özelliklerini bozduğunu ve ayrıca tamamen saf örnekte hole taşıyıcı konsantrasyonun bir optimum değerde olduğunu söylediler.
- iii. Süperiletkenliğin azalmasında hem üç değerlikli Sm katılması hem de nadir toprak elementlerin magnetik doğası önemli rol oynar.
- iv. Bu sonuçlar, ortalama Cu'nun oksidasyon durumundaki ve oksijen miktarındaki değişim ile açıklanabilir.
- v. Katkı ile birlikte örgü parametresindeki değişim ise;  $Ca^{+2}$  yerine  $Sm^{+3}$  katıldığında bizmut oksit tabakasındaki oksijen miktarının artmasına ve bu yüzden de  $a$ -örgü parametresinin artması bunun tersi olarak da  $c$ -örgü parametresinin azalması olarak açıklanabilir.

## 5. SONUÇLAR

Bu çalışmada, katıhal tepkime yöntemi kullanılarak  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  süperiletken örnekleri hazırlandı. Hazırlanan katkısız ve  $\text{Sm}_2\text{O}_3$  katkılı örneklerin optimum tavlama sıcaklığı, tavlama süresi araştırıldı. Ara öğütmenin oluşan yapı üzerine etkisi incelendi. Üretilen örneklerin süperiletkenlik durumları ve katkının etkisi, X-ışını kırınımı desenleri (XRD), elektriksel özdirenç, AC alınganlık, DTA, alanlı ve alansız olarak kritik akım yoğunluğu, genleşme katsayıları, Vickers sertliği ve taramalı elektron mikroskopu (SEM) ölçümleriyle incelendi.

Yapılan incelemelerden sonra varılan sonuçlar şunlardır:

1. Bütün örnekler için optimum tavlama süresi 200 saat olarak belirlendi.
2. Ara öğütmenin yüksek sıcaklık faz (2223) oranının elde edilmesine olumlu katkısı olduğu görüldü.
3. XRD analizi sonucu katkı ile birlikte yüksek sıcaklık fazından (2223) düşük sıcaklık fazına (2212) doğru bir geçiş gözlemlendi.  $x=0.1$  katkısına kadar yüksek sıcaklık fazı baskın, bu katkı miktarından sonra yalnızca düşük sıcaklık fazı (2212) görüldü. Katkı ile birlikte  $a$ -örgü parametresinin arttığı  $c$ -örgü parametresinin ise azaldığı belirlendi.
4. Kritik geçiş sıcaklığı ölçümleri sonucu, katkı miktarı ile birlikte örneklerin kritik geçiş sıcaklıklarının düştüğü ve geçiş aralıklarının ( $\Delta T$ ) arttığı görüldü.
5.  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  örneğinin kritik geçiş sıcaklığı ( $R=0$ )  $0 \leq y \leq 0.1$  aralığında

$$T_c^{\text{offset}} = \frac{1.075 \times 10^2}{1 + \left( \frac{y}{4.886 \times 10^{-1}} \right)^{0.3785}} \quad \text{eşitliğine uymaktadır.}$$

6. Genleşme katsayıları ölçümünde, katkı miktarı ile birlikte genleşme katsayısının azaldığı görüldü. Genleşme katsayısındaki değişimin  $c$ -örgü parametresi değişimi ile ilgili olduğu belirlendi.
7. Yapılan Vickers sertlik ölçümleri artan katkı oranı ile birlikte sertliğin de arttığı belirlendi.
8. Kritik akım yoğunluğu ölçümleri, katkı oranı ile birlikte kritik akım yoğunluğunun azaldığını gösterdi.  $x=0.1$  katkı miktarından sonra ölçüm yapılamadı.



9. SEM fotoğraflarının incelemelerinde katkı miktarı arttıkça porozitenin arttığı, homojenliğin bozulduğu görüldü.
10. Optik mikroskop fotoğrafları, tanelerin yeteri kadar büyümediğini, yönelmelerin farklı olduğunu, parlatma esnasında tanelerin dökülmüş olduğunu gösterdi.



## 6. ÖNERİLER

Bu çalışmada,  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $0.0 \leq x \leq 1.5$ ) kompozisyonlu süperiletken numunesi katıhal tepkime metodu ile üretildi. Üretilen bu numunelerin, DTA, XRD,  $\rho$ -T, AC alınganlık, kritik akım yoğunluğu (alanlı ve alansız), sertlik, genleşme ölçümleri, SEM ve optik fotoğrafları çekildi.

Bunlara ilave olarak, Hall olayı yardımı ile taşıyıcı konsantrasyonları ölçülebilir. Sertlik ölçümleri ile ara öğütme, tavlama sıcaklığı ve kritik akım yoğunluğu arasındaki ilişki incelenebilir.

Katıhal tepkimeye yöntemi yerine aynı numuneler eritme yöntemi veya başka yöntemlerle üretilip gerekli ölçüler alınabilir. Alınan ölçümler katıhal tepkime yöntemi ile üretilen numunelerin sonuçları ile karşılaştırılabilir.

Aynı kompozisyonda  $\text{Sm}_2\text{O}_3$  yerine  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  katkısı da yapıp gerekli ölçümler alınabilir.

## 7. KAYNAKLAR

- Akimutsu, J., Yamazaki, A., Sawa H., and Fujiki H., (1987) Jpn.J.Appl.Phys.26. L208.
- Altunbaş, M., Dzhafarov, T.D., Küçükömeroğlu, T., Kopya, A.İ., Görür, O., (1995) Anomalies of Thermal Expansion in Ag-Diffusion Doped BiPbSrCaCuO Superconductors, Physica C 249 133-138.
- Arendt, R.H., Garbaskas, M.F., and Meyer C.A., (1991) Thermal Expansion Measurements Using Neutron Diffraction of Bi<sub>2</sub>CaSr<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>O<sub>x</sub>, Physica C 182 73-78.
- Asada Y., Maeda H., and Ogawa K., (1988) Jpn. J. Appl. Phys.27 L665
- Aygün E. And Zengin M., (1986) Communication (Ankara) A29-26
- Bednorz, J.G.and Müller K.A., (1986) Z.Phys. B64 189
- Blois, M.S., Brown,H.M., Lemmon,R.M., Lindblom, R.O and Weissbluth,M., 1961 Free Radicals in Biological Systems, Academic Pres NewYork.
- Bokhimi A., Perez L., and Orozco E., (1989), Physica C 159 654-658.
- Bolat S., Yanmaz E., And Cömert H. (2000),"Superconducting properties of Ag-doped Bi<sub>1.6</sub>Pb<sub>0.4</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>3</sub>Cu<sub>4-x</sub>Ag<sub>x</sub>O<sub>y</sub> (2234) oxides prepared by S.S.R. method", (in press) Turkish Journal of Physics.
- Bordet, P., Chailout, C., (1987) The Effect of Density on Critical Current, Nature, 327, 687-691.
- Brill,A.S., Den Hartog,H. And Legallais V., Rev.Sci.Inst. 29,383, 1958.
- Bruneel, E., Degrieck, J., Van Driessche, I., and Hoste, S., (2002) Mechanical Properties of Bi-2223/Ag bulk Composites, Physica C xxx xxx-xxx.
- Cava, R.J. et al 1988 Physica C 153-155 560.
- Charles P. Poole, JR, 2000; Handbook of Superconductivity page 607, Academic Press.

- Chen D.X., Nogues J. And Raok V., 1989, AC Suscebtibility and Intergranular Critical Density of High Tc Superconductors; Cryogenics Vol.29, 800-803.
- Chiu, C.W., Hor P.H., Meng R.L., Gao L., Huang Z.J. and Wang Y.Q., (1987) Phys.Rev.Lett. 58 405.
- Chiu, C.W., Meng R.L., Gao L., Huang Z.J., Chen F., and Xue Y.Y. 1993, Nature, 365,323.
- Clem, J.R., (1988), Granular and Superconducting-Glass Properties of the High-Temperature Superconductors, Physica C 153-155, 50-55.
- Çelebi, S., Öztürk, A., Karaca, İ., Kölemen, U., 2000, The Effect of Potassium Doping on Resistive Transitions and Transport Critical Current of Bulk YBCO high-Tc Superconductors, Turk J. Phy. 24, 567-576.
- Dzhafarov T.D., Yılmazlar M., (1997), The Effect of Ag Electromigration on the Properties of BiPbSrCaCuO Superconductors, Physica C 292 140-146.
- Fisher, S.J., Al-Mosawi, M.K., Beduz C., and Yang, Y., (1997), The Effect of Core Density on the Formation of the 2223 Phase in (Bi/Pb)<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>x</sub> Superconducting Tapes, Cryogenics Vol: 37, Number 10 593-596.
- Garnier, V., Monot-Laffez, I., Desgardin, G., (2001), Materials Science and Engineering B 83 48-54.
- Ginley, D.S., Morosin, B., Baughman, R.J., Venturini, E.L., Scriber, J.E., and Kwak, J.F., 1988, J.Cryst.Growth at Press.
- Ginzburg V.L., 2000, Journal of Superconducting Incorporating Novel Magnetism, Vol.13, No.5.
- Goldfarb, R.B., Lelental, M., Thompson, C.A., 1991 Alternating-Field Susceptometry and Magnetic Susceptibility of Superconductors, Magnetic Susceptibility of Superconductors and Other Spin Systems.
- Green, S.M., Jiang, C., Mei, Y., Luo, H.L. and Politis C. 1988, Phys.Rev.B 38, 5016.
- Green, S.M., Mei, Y., Jiang, C., Luo, H.L., And Politis, C. 1988 Mod. Phys. Lett.B at press.
- H.K.Onnes. (1911), Leiden Comm. 120b, 122b, 124c.

- Halim, S.A., Khawaldeh, S.A., Mohammed, S.B., Azhan, H., (1999), Materials Chemistry and Physics 61 251-259.
- Harris, D.C., Hills, M.E., ve Hewston, T.A., (1987), Three Theories of Superconductivity, Journal of Chemical Education, 847-850.
- Hazen R.M., (1988), The Break through, The Race for the Superconductor.
- Horiuchi.S., 1994, Elsevier Science B.V., Amsterdam.
- Huang,Y.K. et al 1988 Physica C 152, 431.
- Ilonca. G., Pop, A.V., Jurcut, T., Redac, R., Lung, C., Deltour, R., 2000, Transport and magnetic properties in  $(\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4})(\text{Sr}_{0.8}\text{Ba}_{0.2})\text{Ca}_2(\text{Cu}_{1-x}\text{Cr}_x)_3\text{O}_y$  bulk, Physica B, 228, 1097-1098.
- Ilonca. G., Pop, A.V., Tzuen-Rong Yang, Jurcut, T., Lung, C., Stiuftuc, G., Stiuftuc, R., Panfilescu, I.A., (2001), Transport properties and ac Susceptibility of  $(\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4})\text{Sr}_2\text{Ca}_2(\text{Cu}_{1-x}\text{Co}_x)_3\text{O}_y$  superconductors, International Journal of Inorganic Materials 3 763-767.
- Kambe, S., Guo, Y.C., Dou, S.X., Liu, H.K., Wakahara,Y., Maeda, H., Kakimoto,K., Yavuz, M., (1998), Supercond. Sci. Technol. 11 1061-1064.
- Kase, J., Togano K., Kumakura H., Dietderich D.R., Irisawa N., Morimoto T. and Maeda H., (1990), Jpn. J. Appl. Phys. 29 L1096.
- Kishore N.K., Muralidhar, M., Hari Babu, V., Pena, O., Sergent M., Beniere,F., (1993), Effect of Rare-Earth  $\text{Sm}^{+3}$  Substitution on the Superconducting Properties of the  $\text{Bi}_{1.7}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  system, Physica C 204 299-304.
- Kishore Nanda, K., Satyavathi, S., Hari Babu, V., Pena, O., (1996), Materials Science and engineering B 38 267-271.
- Kishore, K.N., Satyavathi, S., Muralidhar, M., Pena, O. and Babu, V.H., (1995) Thermoelectric Power Studies On The Sm Substituted Kishore BPSCCO (2223) Superconductors, Physica C 252 49-53.
- Komatsu, T., Sato, R., Meguro, H., Matusita,K., Yamashita,T., (1991), Effect of Copper Content on Glass Formation and Superconductivity in the Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O System, J.Material Science, 26 683-688.

- Koyama S., Endo U., and Kawai T., (1988), Jpn.J.Appl.Phys. Vol.27, No.10. p.L1861-L1863.
- Ledbetter, H.M., Kim, S.A., Goldfarb, R.B., and Togano, K., (1989), phys. Rev. B 39,9689.
- Leenders, A., Ullrich, M., and Freyhardt, H.C., (1997), Influence of Thermal Cycling on the Mechanical Properties of VGF melt-textured YBCO, Physica C 279, 173-180.
- Li, Q., Pan, H.B., Zhu, C.G., Xu, P.S. and Zhang, X.Y., 2000, Substitution Effect of Pr for Ca in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  system. Journal of Superconductivity Vol.13 No 4.
- Lin, J.J., Benitez, E.L., Poon, S.J., Subramanian, M.A., and Sleight, A.W. 1988 Preprint.
- Maeda H., Tanaka Y., Fukutomi M., Asano T., (1988), Jpn.J.Appl. Micheal C., Hervieu M., Borel M.M., Grandin A., Deslandes F., Provost J., Raveau B., Z.Phys. B-Condensed Matter, 68, p.421-423.
- Maeda H., Tanaka Y., Fukutomi M., Asano T., (1988), Jpn.J.Appl.Phys., 27, p.209-210.
- Maeda, A., Hase, M., Tsukada, I., Noda, K., Takebayashi, S., And Uchinokura, K., (1990), Physical Properties Of  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_{n-1}\text{O}_y$  ( $n=1,2,3$ ), Phys. Rev.B., 41, 10 6418-6434.
- Matsui Y., Maeda H., Tanaka Y., and Horiuchi S., (1988), Jpn.J.Appl.Phys. 27: L361, L372.
- Micheal C., Hervieu M., Borel M.M., Grandin A., Deslands F., Provost J. and Ravenau B., (1987), Z.Phys. B 68,421.
- Morosin, B., Ginley, D.S., Hlava, P.F., Carr, M.J., Baughman, R.J., Schriber, J.E., Venturini, E.L., and Kwak, J.F. 1988 preprint.
- Nguyen-Van- Huong, C., Hinnen, C., and Siffre, J.M., (1997), Journal of Materials Science 32 1725-1731.
- Nikolo, M., Goldfarb, R.B., (1989), Flux Creep and Activation Energies at the Grain Boundaries of Y-Ba-Cu-O Superconductors, Phys.Rev.B., 39, 10 ,6615-6618.
- Nkum, R.K., (1998), Superconductivity in  $(\text{Bi,Pb})_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_{3-x}\text{V}_x\text{O}_y$  Journal of Materials Science 33 ,207-210.

- Ooata, A., Krihigashi, A., Sasaki, Y., Ohba, K., (1988), The effect of Pb Addirtion on Superconductivity in Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O, Jpn. J. Appl. Phys. 27,12 2289-2292.
- Ott H.R., Schilling A., Cantoni M. and Guo J.D., 1993, Nature 363, 56
- Özdaş, E., and Fırat, T., 1992, Influence of the Hole Concentration on Tc in 110K BPSCCO Superconductors: the Intergrain and Intragrain Effects: Proceeding of Physics and Materials Science of High Tc Superconductors-IIEds. R. Kossowsky et al., NATO ASI Series, Kluwer Publisher P:381.
- Park C., Wong-Ng, W., Cook,L.P., Snyder, R.L., Sastry, P.V.P.S.S., and West, A.R., (1998), Physica C 304 ,265-276.
- Saffet Nezir, 1996, Amonyum Nitrat Yöntemiyle Hazırlanmış Yüksek Sıcaklık Bi(Pb)-Sr-Ca-Cu-O Süperiletken Bileşiklerin Bazı Elektriksel, Yapısal ve Magnetik Özellikleri, Doktora Tezi, KTÜ, Fen Bilimleri Enstitüsü, Trabzon.
- Sandeep Singh, 1998 Physica C 294, 249-256.
- Sasakura, H., Yoshida, K., Hayashi,Y., Oka,T. and Kawabata,K., (1998) Superconductivity And Structural Change In The  $(\text{Bi}_{2-y}\text{Pb}_y)\text{Sr}_2(\text{Eu}_{2-x}\text{Ce}_x)\text{Cu}_2\text{O}_z$  System. Physica C 302, 325-330.
- Satyavathi, S., Muralidhar, M., Kishore N.K., Hari Babu, V., Pena, O., Sergent M., and Beniere,F., 1995, Effect of Annealing on the Superconducting Properties of  $\text{Bi}_{1.7}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_2\text{O}_y$  ( $0 \leq x \leq 1.0$ ) System. Applied Superconductivity Vol.3. No.4 pp.187-195.
- Savaşkan, T., 1999, Malzeme Bilgisi ve Muayenesi, Trabzon, Derya Kitapevi.
- Serway Cilt 3, 3.Baskı Palme yayıncılık 1996 sayfa 1318.
- Sheng Z.Z., and Hermann A.M., 1988, Nature, 332, 55,138.
- Singh, R.and Sita, D. R., (1999), Thermoelectric Power Of The  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Tb}_x\text{Cu}_2\text{O}_y$  System. Physica C 312 289-298.
- Singh, S., (1998), Suppression Of Superconductivity in Sm And Co Substituted  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$  System. Physica C, 294, 249-256.
- Subramanian M.A., Torardi C.C., Carabress J.C., (1988), Science 239, 1015.

- Takayama E., Uchida Y., Matsui Y., Onoda M., and Kato K., (1988), Jpn. J. Appl. Phys. 27, L556.
- Takemura, T., Kitajima, T., Sugaya, T. and Terasaki, I. Scaling behaviour of the in-plane thermopower in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{RCu}_2\text{O}_8$  (R= Ca, Y, Pr, Dy and Er). J. Phys. Condens. Matter 12(2000) 6199-6206.
- Tallon, J.L., Buckley, R.G., Gilperd, P.W., Presland, M.R., Brown, I.W.M., Bowden, M.E., Christian, L.A., and Goguel, R. 1988, Nature 333, 153.
- Tanaka, S., Uchida S., Takagi H. and K. Kitazawa, (1987), Jpn. J. Appl. Phys. 26.
- Tarascon, J.M., LePage, Y., Barboux, P., Bagley, B.G., Greene, L.H., Hwang, D.M., Hull, G.W., McKinnon, W.R. and Giroud, M. 1988, Phys. Rev. B at Press.
- Tarascon, J.M., LePage, Y., Greene, L.H., Bagley, B.G., Barboux, P., Hwang, D.M., Hull, G.W., McKinnon, W.R. and Giroud, M. 1988, Preprint.
- Tarascon J.M., LePage L.Y., Barboux P., Bagley B.G., Greene L.H., McKinnon W.R., Hull G.W., Giroud M., Hwang D.M., (1988), Phys. Rev. B., 37, p.9382-9389.
- Tarascon, J. M., McKinnon, W. R., LePage, Y., Stoffel, N. and Giroud, M., (1988) Phys. Rev. B. 38, 8885-8892.
- Tepe, M., Abukay, D., (1998), A Study on the Effect of Ni Doping on Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O System, Tr. J. of Physics 22, 57-63.
- Torardi, C. C., Subramanian, M. A., Calabrese, J. C., Gopalakrishnan, J., McCarron, E. M., Morrissey, K. J., Askew, T. R., Flippen, R. B., Chowdhry, U. ve Sleight, A. W., (1988), Phys. Rev. B. 38, 225-231.
- Torrance J.B., Tokura Y., Laplaca S.J., Huang T.C., Savoy R.J., and Nazzari A.I., (1988), Solid State Communications. Vol.66 No.7. p.703-706.
- Tyagi, A.K., Achary, S.N., Mathewes, M.D. and Hedge, M.S., (1999) Thermal Expansion of  $\text{LaBa}_2\text{Cu}_2\text{CoO}_{7+x}$  Materials Research Bulletin Vol. 34 Nos.10/11 pp.1699-1705.
- Uehara, M., Asada Y., Maeda H. and Ogawa K., (1988) Jpn. J. Appl. Phys. 27 L665.
- Wu, M.K., Ashburn J.R., Torng C.J., Hor, P.H., Meng R.L., Gao L., Huang Z.J., Wang Y.Q., and Chu C.W., (1987), Phys. Rev. Lett. 58, 908.



- Xu Gaojie, Qirong Pu, Zengming Zhang, Zejun Ding, (2002) Microstructure and Phonon Vibration of  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.2}\text{Sr}_{1.6+x}\text{La}_{0.4-x}\text{Cu}_{1-x}\text{M}_x\text{O}_y$  ( $\text{M} = \text{Co}, \text{Ga}$ ) ( $0.0 \leq x \leq 0.4$ ) Physica C 370, 101-107.
- Yanmaz E., Balcı S., And Küçükömeroğlu T., (2001), "Magnetic properties of melt textured  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{7.3}$  with  $\text{TiO}_2$  Dopant", to be published in Materials Letters.
- Yanmaz, E., 1992, "Preparation And Characterization of Melt-Processed Y-Ba-Cu-O and Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O Ceramic Superconductors", University of Birmingham, Faculty of Engineering, School of Metallurgy and Materials, The Degree of Doctor of Philosophy, UK.
- Yoshida, K., Sano, Y., and Tomii, Y., (1995), Precipitation Of Impurity Phases And Its Effect On The Intergrain Conducting Properties Of Ag-Doped Bi(Pb)-Sr-Ca-Cu-O, Sup.Sci. Tech. 8 ,329-335.
- Yoshida, K., Sasakura, H., Tsukui, S., Tabata, T., Adachi, M., Oshima, R., Mizokawa, Y., (2001), Preparation of metastable Bi-2223 Phase of  $\text{Bi}_2(\text{Ln}_x\text{Ca}_{2-x})\text{Sr}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  Thin Films ( $0.3 \leq x \leq 0.7$ ,  $\text{Ln} = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}, \text{Eu}$  and  $\text{Gd}$ ) Physica C 1-6.
- Zandbergen, H.W., Groen, W.A., Smith, A., and Van Tendeloo, G., (1990), Physica C 168.
- Zandbergen, H.W., Huang, Y.K., Menken, M.J.V., Li, J.N., Kadowaki, K., Menovsky, A.A., Van Tendeloo, G. and Amelinckx, S., 1988, Nature *in Press*.

## ÖZGEÇMİŞ

17.03.1969 yılında Gaziantep'in İslahiye ilçesinde doğdu. İlk, orta ve lise öğrenimini Gaziantep'te tamamladı. 1989 yılında K.T.Ü. Fen Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü'nde lisans öğrenimine başladı. 1993 bahar yarı yılında bölüm ikincisi olarak mezun oldu. 1993-1994 öğrenim yılında K.T.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü Fizik Anabilim Dalı'nda yüksek lisans öğrenimine başladı. Şubat 1997 yılında yüksek lisans eğitimini tamamladı ve aynı dönemde doktora programına kaydoldu. 30 Mart 1994 yılında Kırıkkale Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü Katıhal Fiziği Anabilim Dalı'na Araştırma Görevlisi olarak atandı. Halen bu bölümde görevine devam etmektedir.

**İ.C. YÜKSEKÖĞRETİM KURULU  
KURUMSAL GELİŞTİRME BİRİMİ**