

**ÇUKUROVA ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**DOKTORA TEZİ**

**Onur NANE**

**ATIMLI LAZER YIĞILIMI (PLD) TEKNİĞİ KULLANILARAK  
ÜRETİLEN BSCCO İNCE FİLMLEİN FİZİKSEL ÖZELLİKLERİNİN  
ARAŞTIRILMASI**

**FİZİK ANABİLİM DALI**

**ADANA, 2013**

**ÇUKUROVA ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**ATIMLI LAZER YIĞILIMI (PLD) TEKNİĞİ KULLANILARAK  
ÜRETİLEN BSCCO İNCE FİLMLEİN FİZİKSEL ÖZELLİKLERİNİN  
ARAŞTIRILMASI**

**Onur NANE**

**DOKTORA TEZİ**

**FİZİK ANABİLİM DALI**

Bu Tez .././2013 Tarihinde Aşağıdaki Jüri Üyeleri Tarafından  
Oybirliği/Oyçokluğu ile Kabul Edilmiştir.

Prof. Dr. Bekir ÖZÇELİK  
DANIŞMAN

Prof. Dr. Osman SERİNDAĞ  
ÜYE

Prof. Dr. Doğan ABUKAY  
ÜYE

Prof. Dr. Ramazan ESEN  
ÜYE

Doç. Dr. Faruk KARADAĞ  
ÜYE

Bu Tez Enstitümüz Fizik Anabilim Dalında hazırlanmıştır.

**Kod No:**

**Prof. Dr. Selahattin SERİN  
Enstitü Müdürü**

Bu Çalışma Ç. Ü. Araştırma Projeleri Birimi Tarafından Desteklenmiştir.

**Proje No: FEF2011D20**

**Not:** Bu tezde kullanılan özgün ve başka kaynaktan yapılan bildirişlerin, çizelge ve fotoğrafların kaynak gösterilmeden kullanımı, 5846 sayılı Fikir ve Sanat Eserleri Kanunundaki hükümlere tabidir.

ÖZ

DOKTORA TEZİ

ATIMLI LAZER YIĞILIMI (PLD) TEKNİĞİ KULLANILARAK  
ÜRETİLEN BSCCO İNCE FİMLERİN FİZİKSEL ÖZELLİKLERİNİN  
ARAŞTIRILMASI

Onur NANE

ÇUKUROVA ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ  
FİZİK ANABİLİM DALI

Danışman : Prof. Dr. Bekir ÖZÇELİK

Yıl : 2013, Sayfa: 119

Jüri : Prof. Dr. Bekir ÖZÇELİK

: Prof. Dr. Doğan ABUKAY

: Prof. Dr. Ramazan ESEN

: Prof. Dr. Osman SERİNDAĞ

: Doç. Dr. Faruk KARADAĞ

Bu çalışmada, Atımlı Lazer Yığılma Tekniği (PLD) ile MgO (100) altlıklar üzerine büyütülen  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$  süperiletken ince filmlerin yapısal ve süperiletken özellikleri araştırıldı. İlk olarak katıhal tepkime yöntemi ile uygun  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$  hedef malzeme üretebilmek için, üretim teknikleri araştırması yapıldı. En uygun hedef üretim tekniği seçilerek farklı PLD parametreleri ile  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$  kompozisyonuna uygun stokiometri araştırması yapıldı. En başarılı PLD parametreleri kullanılarak üretilen ince filmler, kaplama sonrasında argon ve oksijen (Ar:93, O<sub>2</sub>:7) atmosferinde farklı sıcaklıklarda (800-880 °C) 10 dakika tavlansak,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmlerini üretmek için optimum ısı işlem sıcaklığı araştırması yapıldı. Sonra Polimer yöntemi ile üretilen  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$  hedef malzeme kullanılarak üretilen  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmler 860 °C'de farklı sürelerde tavlansak  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmleri üretmek için optimum ısı işlem süresi araştırması yapıldı. Üretilen filmlerin yapısal ve süperiletkenlik özellikleri XRD, SEM, AFM, EDX, M-T, R-T ve M-H ölçümleri ile analiz edilerek yorumlanmıştır.  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmleri üretmek için optimum tavlama sıcaklığı 860 °C ve optimum tavlama süresi 30 dakika olarak tespit edilmiştir. Katıhal tepkime yöntemi ile üretilen hedef malzeme ile üretilen  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$  film 82 K'de diyamanyetik, 89 K'de sıfır direnç özelliği göstermektedir.

**Anahtar Kelimeler:** Bi-2212, Süperiletken İnce Film, Atımlı Lazer Yığılma Tekniği (PLD).

## ABSTRACT

### PhD THESIS

# INVESTIGATION OF PHYSICAL PROPERTIES OF BSCCO THIN FILMS PRODUCED VIA PULSED LASER DEPOSITION

Onur NANE

ÇUKUROVA UNIVERSITY  
INSTITUTE OF NATURAL AND APPLIED SCIENCES  
DEPARTMENT OF PHYSICS

Supervisor : Prof. Dr. Bekir ÖZÇELİK  
Year : 2013, Pages: 119  
Jury : Prof. Dr. Bekir ÖZÇELİK  
: Prof. Dr. Doğan ABUKAY  
: Prof. Dr. Ramazan ESEN  
: Prof. Dr. Osman SERİNDAG  
: Assoc. Prof. Dr. Faruk KARADAĞ

In this study, we have investigated the structural and superconductivity properties of the  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$  thin films deposited on MgO (100) substrates by pulsed laser deposition (PLD). In first part, the different production conditions of solid state reaction method were investigated to synthesize the  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$  target with optimum conditions. Secondly, we have tried the various parameters of PLD technique to obtain the best stoichiometry in accordance with  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$  phase. The films which were deposited with optimum conditions were post-annealed in an atmosphere of a gas mixture of Ar (%93) and  $\text{O}_2$  (%7), at temperatures ranging in  $800^\circ\text{C}$ - $880^\circ\text{C}$  for 10 minutes to investigate the optimal post-annealing temperature. Later on, another target was produced via polymer method in order to use in an investigation of optimal post-annealing time for producing  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$  thin films. The structural and superconductivity properties of the films were investigated by XRD, SEM, AFM, EDX, M-T, R-T, and M-H measurements, than the results have been commuted. According to our results, the temperature of  $860^\circ\text{C}$  was found as the optimal temperature value for the post-annealing and 30 minutes was the optimal time. The critical temperature,  $T_C$ , of the film was measured as 82 K from M-T measurement and 89 K from R-T one for the film produced by target prepared via solid state reaction technique and annealed at  $860^\circ\text{C}$ .

**Keywords:** Bi-2212, Superconductor Thin Films, Pulsed Laser Deposition (PLD).

## TEŞEKKÜR

Lisansüstü eğitimlerim boyunca, her türlü imkânları sağlayan, karşılaştığım tüm zorlukların aşılmasında, öneri ve desteğini esirgemeyen, ayrıca her anlamda donanımlı bir akademisyen olmam için beni yetiştiren, tez danışmanım sayın Prof. Dr. Bekir ÖZÇELİK' e sonsuz teşekkürler.

PLD tekniği ile ince filmlerin üretimi ve ölçümleri esnasında tüm laboratuvar imkânlarıyla beni destekleyen İzmir Yüksek Teknoloji Enstitüsü öğretim üyesi sayın Prof. Dr. Doğan ABUKAY' a tüm emekleri için şükranlarımı sunarım. Üretilen filmlerin XRD ve AFM ölçümleri sırasında gösterdiği tüm yardımlarından dolayı Çukurova Üniversitesi öğretim üyesi Prof. Dr. Ramazan ESEN' e teşekkürlerimi sunarım. Yine tez aşamasında sağladığı laboratuvar imkânları ve verdiği değerli bilgiler için İnönü Üniversitesi öğretim üyesi sayın Prof. Dr. M. Eyüphan YAKINCI' ya teşekkür ederim. Sağladıkları tüm kolaylıklar ve imkânlar için Hakkâri Üniversitesi rektörü sayın Prof. Dr. İbrahim BELENLİ ve değerli bilimsel katkıları için Ankara Üniversitesi öğretim üyesi sayın Prof. Dr. Ali GENCER teşekkür ederim. Tez savunma jüri üyeleri, Çukurova Üniversitesi öğretim üyesi Prof. Dr. Osman SERİNDAG' ve Doç. Dr. Faruk KARADAĞ' a tez yazım aşamasında gösterdikleri yardımlardan dolayı teşekkür ederim.

Tez çalışmalarım sürecinde gösterdikleri yardımlardan dolayı başta Dr. Hakan GÜNDOĞMUŞ ve Canan KAYA olmak üzere tüm grup arkadaşlarıma, İnönü Üniversitesi IBTAM merkez laboratuvarından Uzm. Murat ÖZABACI ve Arş. Gör. Olcay KIZILASLAN' a, İzmir Yüksek Teknoloji Enstitüsünden Selin ÖZDEN ve İYTE-MAM merkez laboratuvarı çalışanlarına, Ankara Üniversitesinden Öğr. Gör. Hasan AĞIL' a teşekkürler.

Çok sevdiğim aileme ve beni her zaman bir aile ferdi olarak görüp destekleyen, ÖZÇELİK ailesine teşekkürler.

Gösterdiği sabır ve sevgisi ile manevi dayanağım Fulya KARAÇORA' ya sonsuz teşekkürler.

## İÇİNDEKİLER

## SAYFA

ÖZ.....	I
ABSTRACT.....	II
TEŞEKKÜR.....	III
İÇİNDEKİLER.....	IV
ÇİZELGELER DİZİNİ.....	VIII
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	X
1. GİRİŞ.....	1
1.1. Sıfır Direnç ve Diyamanyetik Geçiş.....	3
1.2. Meissner-Ochsenfeld Etkisi.....	5
1.3. I. ve II. Tip Süperiletkenler.....	7
1.4. Josephson Etkisi.....	10
1.5. Bean Modeli.....	11
1.6. Süperiletkenlik Teorileri.....	14
1.6.1. London Teorisi.....	14
1.6.2. Ginzburg-Landau Teorisi.....	16
1.6.3. BCS Teorisi.....	18
1.7. High-Tc Süperiletkenler.....	20
1.7.1. BSCCO Süperiletken Ailesi.....	20
1.7.2. Bi-2212 Kristal Yapısı ve Faz Oluşumu.....	23
1.8. Süperiletken İnce Filmler ve Üretim teknikleri.....	24
1.8.1. Tek Kristal Altlıklar ve Uygun Altlık Seçimi.....	27
1.8.2. Lazer Atımlı Yığılma Tekniği (PLD).....	29
1.8.2.1. Lazer-Hedef Etkileşimi.....	30
1.8.2.2. Plazma-Altılık Lazer Etkileşimi.....	31
2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR.....	33
3. MATERYAL VE YÖNTEM.....	45
3.1. Giriş.....	45
3.2. Hedef Malzeme Hazırlama Teknikleri.....	45
3.2.1. Katıhal Tepkime Yöntemi.....	45

3.2.2. Polimer Yöntemi .....	46
3.3. Hedef Malzemelerin Hazırlanma Koşulları.....	47
3.4. İnce Filmlerin Tavlama.....	48
3.5. X-Işını Toz Kırınım (XRD) Ölçümleri .....	48
3.6. DC Manyetik Duygunluk (VSM) Ölçümleri.....	49
3.7. Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) ve Enerji Dağılımlı X-ışını (EDX) Ölçümleri.....	49
3.8. Sıcaklık Bağımlı Direnç (R-T) Ölçümleri.....	50
3.9. Atomik Kuvvet Mikroskobu (AFM) Ölçümleri .....	50
4. ARAŞTIRMA VE BULGULAR.....	53
4.1. Giriş.....	53
4.2. Uygun $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ Hedef için Üretim Teknikleri Araştırması.....	53
4.3. Farklı PLD Parametreleri ile Üretilen İnce Film Sonuçları .....	62
4.4. Tavlama Sıcaklığının PLD Tekniği ile Üretilen $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ İnce Filmler Üzerindeki Etkisi.....	84
4.4.1 Giriş .....	84
4.4.2. XRD Sonuçları.....	85
4.4.3. SEM Sonuçları .....	87
4.4.4. EDX Sonuçları .....	88
4.4.5. M(T) DC Manyetizasyon Sonuçları .....	91
4.4.6. R(T) Direnç Sonuçları .....	93
4.4.7. M(H) DC Manyetizasyon Sonuçları.....	94
4.5. Tavlama Süresinin PLD Tekniği ile Üretilen $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ İnce Filmler Üzerindeki Etkisi.....	98
4.5.1. Giriş .....	98
4.5.2. XRD Sonuçları.....	98
4.5.3. SEM Sonuçları .....	100
4.5.4. M(T) DC Manyetizasyon Sonuçları .....	101
4.5.5. R(T) Direnç Sonuçları .....	102
4.5.6. M(H) DC Manyetizasyon Sonuçları.....	103
5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER .....	107

5.1. Sonular.....	107
5.2. neriler.....	111
KAYNAKLAR.....	113
ZGEMİŐ .....	119





## ÇİZELGELER DİZİNİ

## SAYFA

Çizelge 1.1. Yaygın olarak kullanılan bazı tek kristal altlıkların fiziksel özellikleri .....	28
Çizelge 4.1. A, B ve C örnekleri için hazırlama teknikleri.....	54
Çizelge 4.2. Farklı sıcaklıklarda tavlanan ince filmlerin kristal örgü parametreleri ve kristal büyüklükleri .....	86
Çizelge 4.3. Farklı sıcaklıklarda tavlanan ince filmlerin kristal örgü parametreleri ve kristal büyüklükleri .....	100



## ŞEKİLLER DİZİNİ

## SAYFA

- Şekil 1.1. Normal iletken ile karşılaştırıldığında, süperiletkenin  $T_c$  kritik sıcaklık altında sıfır direnç göstermesi..... 3
- Şekil 1.2. Sıcaklık düşerken, manyetik alınganlığın pozitif değerden  $T_c$  altında ideal diyamanyetik değere düşmesi..... 4
- Şekil 1.3. Kararlı akım halkası deneyi..... 4
- Şekil 1.4. Süperiletkende, Meissner ve Ochsenfeld etkisi..... 6
- Şekil 1.5. (a)  $H_{uyg} = 0$  durumunda soğutulan ideal iletken (b)  $H_{uyg} > 0$  durumunda soğutulan ideal iletken ..... 5
- Şekil 1.6. (a) I. tip süperiletken için  $H_c$  kritik alanın sıcaklık bağımlılığı (b) I. tip süperiletken için  $M$  mıknatıslanmanın manyetik alan bağımlılığı ( $S_M$ : Süperiletken Meissner durumu,  $N$ : Normal durum) ..... 8
- Şekil 1.7. (a) II. tip süperiletken için  $H_c$  kritik alanın sıcaklık bağımlılığı (b) II. tip süperiletken için  $M$  mıknatıslanmanın manyetik alan bağımlılığı ( $S_M$ : Süperiletken Meissner durumu,  $S_G$ : Süperiletken Girdap durumu,  $N$ : Normal durum) ..... 8
- Şekil 1.8. Girdap durumundaki II. tip süperiletkende Abrikosov girdap örgüsü ..... 9
- Şekil 1.9. İnce bir yalıtkan ile ayrılmış S-I-S Josephson eklemi..... 10
- Şekil 1.10. Bean modeli; (a)  $B_A$  sabit dış manyetik alan uygulandıktan sonra; üst kısım  $d$  kalınlıklı malzeme içerisinde manyetik akı dağılımı, alt kısım akım yoğunluğu dağılımı. (b) Benzer bir örnek (1), (2) durumu manyetik akı şiddeti  $B_A$  dan  $B_B$  değerine ulaştığında manyetik alanın malzemenin merkezine nüfuz etmesi (kritik durum). (3) durumu  $B_A$  dan  $B_m$  (maksimum akı) değerine ulaşırken ..... 12
- Şekil 1.11. II. Tip bir süperiletken için  $H$  dış manyetik alan bağımlı manyetizasyon eğrisi (histerisiz)..... 13
- Şekil 1.12. Süperiletken durumda, malzeme içerisine nüfuz eden manyetik alan..... 16
- Şekil 1.13. Normal-Süperiletken ara yüzeyde,  $B$  manyetik alan ve  $\Psi$  dalga fonksiyonu değişimleri ..... 17
- Şekil 1.14. Örgüdeki bozulma ile etkileşime giren elektronlar (Cooper çiftleri)..... 19

Şekil 1.15. BSCCO süperiletken ailesinin kristal yapıları. a) 2201 fazına b) 2212 fazına c) 2223 fazına ait kristal düzlemleri göstermektedir. (Tarascon, 1988) .....	21
Şekil 1.16. Bi <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -SrO-CaO-CuO için 850 °C de hava ortamında dörtlü faz diyagramı (Majewski, 1997).....	24
Şekil 1.17. Atımlı Lazer Yiğilimi (PLD) sistemi .....	29
Şekil 1.18. Lazer- hedef etkileşimi (Tozan, 2010).....	30
Şekil 4.1. A, B ve C örnekleri için Tavlama işlemi.....	54
Şekil 4.2. Tavlama işlemi sonrasında A, B ve C örneklerinin fotoğrafı.....	55
Şekil 4.3. A, B ve C bulk örneklerinin x-ışını kırınım desenleri.....	55
Şekil 4.4. A, B ve C bulk örneklerinin sıcaklık bağımlı manyetizasyon eğrileri.....	56
Şekil 4.5. A örneğine ait farklı sıcaklıklarda histerisiz eğrileri.....	57
Şekil 4.6. B örneğine ait farklı sıcaklıklarda histerisiz eğrileri.....	58
Şekil 4.7. C örneğine ait farklı sıcaklıklarda histerisiz eğrileri.....	58
Şekil 4.8. A örneğine ait farklı sıcaklıklarda alan bağımlı kritik akım yoğunluğu değerleri.....	59
Şekil 4.9. B örneğine ait farklı sıcaklıklarda alan bağımlı kritik akım yoğunluğu değerleri.....	59
Şekil 4.10. C örneğine ait farklı sıcaklıklarda alan bağımlı kritik akım yoğunluğu değerleri.....	60
Şekil 4.11. A, B ve C örneklerine ait 10 K sıcaklığında histerisiz eğrileri.....	60
Şekil 4.12. A, B ve C örneklerine ait 10 K sıcaklığında kritik akım yoğunluğu değerleri.....	61
Şekil 4.13. 1 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.....	63
Şekil 4.14. 1 nolu deneme örneğine ait EDX sonuçları.....	64
Şekil 4.15. 2 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.....	65
Şekil 4.16. 2 nolu deneme örneğine ait EDX sonuçları.....	66
Şekil 4.17. 3 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.....	67
Şekil 4.18. 3 nolu deneme örneğine ait EDX sonuçları.....	68
Şekil 4.19. 4 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.....	69
Şekil 4.20. 4 nolu off-axis deneme örneğine ait EDX sonuçları.....	70

Şekil 4.21. 4 nolu on axis deneme örneğine ait EDX sonuçları.....	71
Şekil 4.22. 5 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.....	72
Şekil 4.23. 5 nolu deneme örneğine ait EDX sonuçları.....	73
Şekil 4.24. 6 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.....	74
Şekil 4.25. 6 nolu deneme örneğine ait EDX sonuçları.....	75
Şekil 4.26. 7 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.....	76
Şekil 4.27. 7 nolu deneme örneğine ait EDX sonuçları.....	77
Şekil 4.28. 8 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.....	78
Şekil 4.29. 8 nolu deneme örneğine ait EDX sonuçları.....	79
Şekil 4.30. 9 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.....	80
Şekil 4.31. 9 nolu deneme örneğine ait EDX sonuçları.....	81
Şekil 4.32. 10 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.....	82
Şekil 4.33. 10 nolu deneme örneğine ait EDX sonuçları.....	83
Şekil 4.34. MgO altlık üzerine, farklı sıcaklıklarda büyütülen filmlerin XRD deseni.....	85
Şekil 4.35. 860 °C de tavlanmış $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ince filmine ait a) 25000 büyütmede ve b) 10000 büyütmede, SEM sonuçları.....	87
Şekil 4.36. 880 °C de tavlanmış $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ince filmine ait a) 25000 büyütmede ve b) 10000 büyütmede, SEM sonuçları.....	87
Şekil 4.37. 860 °C de tavlanmış $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ince filminin spectrum 6 bölgesine ait EDX sonuçları .....	89
Şekil 4.38. 860 °C de tavlanmış $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ince filminin spectrum 7 bölgesine ait EDX sonuçları .....	90
Şekil 4.39. MgO altlık üzerine, farklı sıcaklıklarda büyütülen filmlerin 50 Oe alan altında, sıcaklık bağımlı manyetizasyon eğrileri .....	92
Şekil 4.40. 860 ve 880 °C de tavlanmış $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ince filmine ait R-T sonuçları .....	93
Şekil 4.41. MgO altlık üzerine, farklı sıcaklıklarda büyütülen filmlerin 10 K de alan bağımlı manyetizasyon (Histerisiz) eğrileri .....	95
Şekil 4.42. MgO altlık üzerine, farklı sıcaklıklarda büyütülen filmlere ait 10 K sıcaklığında $H_{C1}$ kritik alan değerleri.....	96

Şekil 4.43. MgO altlık üzerine, farklı sıcaklıklarda büyütülen filmlere ait 10 K sıcaklığında kritik akım yoğunluğu değerleri.....	97
Şekil 4.44. MgO altlık üzerine, 860 °C de farklı sürelerde tavlanan filmlerin XRD deseni.....	99
Şekil 4.45. 860 °C de 30 dakika tavllanmış $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ince filmine ait a) 50000 büyütmede ve b) 10000 büyütmede, SEM sonuçları.....	100
Şekil 4.46. 860 °C de 60 dakika tavllanmış $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ince filmine ait a) 50000 büyütmede ve b) 10000 büyütmede, SEM sonuçları.....	101
Şekil 4.47. MgO altlık üzerine, 860 °C de farklı sürelerde tavlanan filmlerin 50 Oe alan altında, sıcaklık bağımlı manyetizasyon eğrileri.....	102
Şekil 4.48. 860 °C de 30 dk tavllanmış $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ince filmine ait R-T sonucu.....	103
Şekil 4.49. MgO altlık üzerine, 860 °C de farklı sürelerde tavlanaarak büyütülen filmlerin farklı sıcaklıklarda alan bağımlı manyetizasyon (Histerisiz) eğrileri .....	104
Şekil 4.50. MgO altlık üzerine, 860 °C de farklı sürelerde tavlanaarak büyütülen filmlerin farklı sıcaklıklarda alan bağımlı kritik akım yoğunluğu değerleri.....	106
Şekil 5.1. 860 °C de tavlanan $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ince filmine ait XRD deseni .....	108
Şekil 5.2. Katıhal tepkime yöntemi ile sentezlenmiş $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ hedef kullanarak PLD tekniği ile üretilen ve 860 °C de 30 dakika tavlanan ince filmine ait AFM profili.....	110

## 1. GİRİŞ

Süperiletkenlik yaşıntımıza bir sürpriz olarak girdi. Her şey tam yüz yıl önce Leiden de K. Onnes un cıva elementinin 4.2 K civarında sıfır direnç özelliğini keşfetmesiyle başladı. Beklenmeyen bu durum mevcut teori ve modellerle açıklanamamıştı. Daha henüz oturmuş bir düşünce sistemi dahi yokken 1933 yılında Meissner ve Ochsenfeld ikinci süperiletken özellik olan diyamanyetik davranışı keşfetti. 1950 li yıllar süperiletkenliğin doğasını kuramsal olarak açıklayacak fizik teorilerinin gün ışığına çıktığı yıllar olmuştur. 1957 de Bardeen, Cooper ve Schrieffer oluşturdukları kuantum teorisi ile süperiletkenliğin oluş mekanizmasını açıkladılar. Aynı yıl sonuçları daha sonra anlaşılacak ve süperiletkenlerin manyetik özelliklerini açıklayacak bir çalışma Abrikosov tarafından ileri sürülmüştür. 1961 yılında Josephson daha sonraları deneysel olarak ispatlanacak ve adı ile anılacak çok önemli bir etkiyi açıklayan teoriyi ileri sürerek, süperiletkenliğin kayda değer üçüncü bir özelliği Josephson etkisini keşfetmiştir. Bu keşif sonrasında süperiletkenliğin, zamanına göre büyük ve yüksek donanımlı laboratuarlardan, dünya çapında büyüklü ve küçüklü grupların çalışma konusu konumuna gelmesi tam 25 yıl aldı. Çünkü 1986 yılında Zürih de Bednorz ve Müller yüksek sıcaklıklarda süperiletkenliğin mümkün olabileceğini kanıtladılar. Bu keşfin hemen sonrasında dünya çapındaki yüzlerce grup kendini bir yarışın içerisinde bulmuştu. Bakır-oksit tabanlı yüksek sıcaklık süperiletkenleri bir yemek ve periyodik tablo ise baharat çeşidine dönmüştü. Tüm bu karmaşanın ortasında güzel haber gecikmedi ve 1987 yılında YBCO süperiletken ailesi keşfedildi. O zamana kadar yüzlerce süperiletken malzeme keşfedilmişti, fakat esas güzel haber, bu malzemenin 90 K de süperiletken duruma geçmesiydi. Seramiklerden beklenmeyen bu durum çok önemliydi, zira 77 K sıvı azot sıcaklığının üzerindeki, bu sıcaklık, mümkün ve yaygın teknolojik gelişmelerin sözünü vermektedir. Daha sonraki çalışmalarda keşfedilmiş BSCCO ailesi 110 K de bir üyeye sahip oldu. Yine devam eden çalışmalarda 125 K de TIBCCO ve 133 K de HgBCCO süperiletkenleri keşfedildi. Özellikle cıva tabanlı HgBCCO ilginç bir davranışla öne çıkarak, yüksek basınç altında 200 K lere yakın geçiş sıcaklıkları göstermektedir. Fakat bu türler hem uygulama bakımından yetersizlikleri hem de



çevre dostu olmayan bileşenleri yüzünden, sadece bir araştırma konusu olarak kalmaktadır. 2001 yılında  $MgB_2$  süperiletkenin keşfi kritik sıcaklığı epey aşağılara düşürse de, üstün süperiletken özellikleri ve elementel yapısı bu malzemeye önemli kılmaktaydı. Zira dünya bor rezervlerinin %72 si ülkemizde bulunmaktadır. Türkiye’deki bu büyük bor rezervleri düşünüldüğünde, bor esaslı malzemelerin ülkemiz ekonomisi ve teknolojik alt yapısını geliştirme potansiyeli, ülkemiz bilim çevresinde ayrı bir heyecan yaratmakta ve bu alandaki çalışmalar gün geçtikçe yoğunlaşmaktadır.

Tüm bu anlatılanlar çerçevesinde mutlaka yeni bir paragraf başlatmak gerekmektedir. Bunun sebebi 2008 yılında pnictide (demir tabanlı) olarak bilinen 50 K civarlarında süperiletken duruma geçen Fe demir tabanlı süperiletkenlerdir. Bu zamana kadar birbirinin düşmanı olarak bilinen iki olgu, süperiletkenlik ve manyetizma barış ilan ederek bir araya gelmiştir. Bu durum mevcut bazı teorileri maalesef geçersiz kılmaktadır. Fakat son yılların yeni teorik yaklaşımı haline gelen d-wave kavramının, ileriki yıllarda bazı cevaplar bulması gerekmektedir.

Süperiletkenlerin teknolojik anlamda kullanılabilmesi için uygun yapıda ve istenen özelliklerde üretilmesi gerekmektedir. Bu üretim şekilleri, kablo, şerit, tek kristal ve ince film biçiminde olmaktadır.

Küçük boyut uygulaması olarak bilinen süperiletken ince filmler, cry-elektronik devre elemanlarında, THz mertebesinde sinyal kaynağı yapımında, farklı görüntüleme sistemlerinde, sıcaklık sensörü bolometre ve manyetik sensör SQUID yapımında temel eleman olarak kullanılmaktadır.

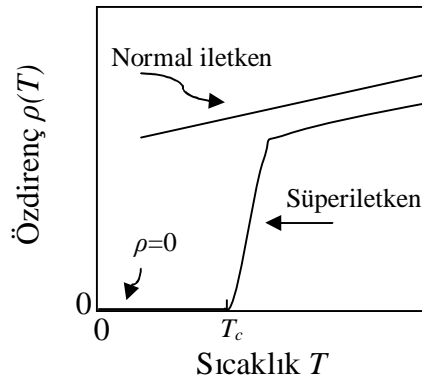
Bu tez çalışmasında Atımlı Lazer Yığılımı PLD tekniği ile  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$  süperiletken ince filmler üretilmesi amaçlanmıştır. PLD tekniği kullanılarak BSCCO süperiletken ince film üretimi ülkemizde çalışılmamış bir konudur. Literatür incelendiğinde ise, yurtdışı çalışmaların etkin bir boyuta ulaşamadığı görülmüştür. Bunun sebebinin genel olarak, BSCCO bileşiğinde Bi elementinin yüksek mobilite ve düşük erime noktasına sahip olması ve bu nedenlerle ana yapıyı kaliteli bir şekilde sentezlemede sıkıntılar çekilmesidir. Önceki araştırmalar incelendiğinde birçok çalışmada çok zayıf süperiletken özellikler gösteren BSCCO ince filmler üretildiği tespit edilmiştir. Bu amaçla, çalışmalarımızda PLD ile üretilen  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$

süperiletken ince filmlerin faz oluşumları ile optimum PLD parametreleri, tavlama sıcaklığı ve süresi araştırılmıştır. Bu bölümde süperiletkenliğin temel kavramları ve üretim aşamaları hakkında bilgiler verilmektedir.

### 1.1. Sıfır Direnç ve Diyamanyetik Geçiş

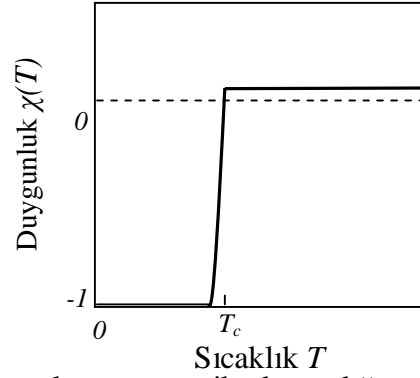
Süperiletkenliğin iki belirleyici özelliği vardır.

- Sıfır dirence geçiş; normal durumda, yani kritik süperiletken geçiş sıcaklığı  $T_c$  üzerindeki öz direncin  $\rho_N$ ,  $T_c$  altında sıfıra düşmesi  $\rho=0$ . Bu durum, mükemmel DC iletkenlik olarak da anılır. ( $\sigma = \infty$ )



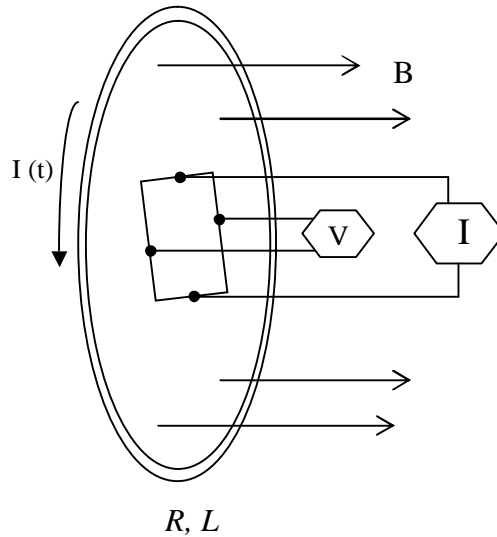
Şekil 1.1. Normal iletken ile karşılaştırıldığında, süperiletkenin  $T_c$  kritik sıcaklık altında sıfır direnç göstermesi.

- Manyetik geçiş;  $T_c$  üzerindeki manyetik alınganlık  $\chi$  değerinin, küçük pozitif paramanyetik bir değerden,  $T_c$  altında negatif değere düşmesi ( $\chi = -1$ ). Bu durum mükemmel diyamanyetizma olarak anılır.



Şekil 1.2. Sıcaklık düşerken, manyetik alınganlığın pozitif değerden  $T_c$  altında ideal diyamanyetik değere düşmesi.

Geleneksel olarak bir direnci ölçmenin yolu, direnci ölçülecek örneği Wheatstone köprüsüne, 4. ve bilinmeyen direnç olarak bağlamak ve denge durumunda galvanometre kullanarak direnç değerini hassas bir şekilde hesaplamaktır. Fakat sıfır direnci, direk olarak ölçmek pratikte olanaksızdır. O halde sıfır direnç başka bir yolla ölçülmelidir.



Şekil 1.3. Kararlı akım halkası deneyi.

Bir iletkende direnç, bir uçtan diğer uca ilerlemeye çalışan elektronların, yani akımın, iletken içerisindeki coulomb etkileşimleri, fonon titreşimleri ve örgü kusurları gibi etkilerle zorlanmasından kaynaklanır. Bir iletken halka düşünelim, eğer bu halka üzerindeki direnç sıfır olsaydı, iletken içerisindeki akım bir kez

kurulduğunda sonsuza kadar akmaya devam ederdi ve içerisinde geçen bir manyetik alan üretti. Bu manyetik alanın farklı bir kapalı halkada indüklediği akımı, zamanın fonksiyonu olarak incelediğimizde, zamanla akımda bir azalma olmuyorsa süperiletken halka içerisinde sıfır direnç olduğu bulunmuş olur. Bu deneye kararlı akım halkası deneyi denir ve sıfır direnci ölçmek için kullanılır.

## 1.2. Meissner-Ochsenfeld Etkisi

1911'de Onnes'un sıfır direnç keşfinden 22 yıl sonra önemli bir keşif daha yapıldı. Meissner ve Ochsenfeld mükemmel diyamanyetizma olarak anılan ikinci süperiletken karakteristiği buldular. Bu keşif öncesinde, mükemmel iletkenliğin süperiletken durumun tek temel karakteristiği olduğu üzerine önemli tartışmalar olmuştu. Meissner ve Ochsenfeld bu tuzak tartışmalardan uzak kalarak, kritik geçiş sıcaklığı civarında uyguladıkları manyetik alanın, süperiletken malzeme üzerindeki etkilerini araştırdılar ve  $T_c$  altında süperiletken malzeme içerisinde  $B=0$  olarak buldular. Süperiletken durumda, buluşlarını aşağıdaki denklemler ile açıkladılar.

$$B = \mu_0(H+M) = 0 \quad (1.1.)$$

Yani süperiletken içerisinde manyetizasyon,

$$M = -H \quad (1.2.)$$

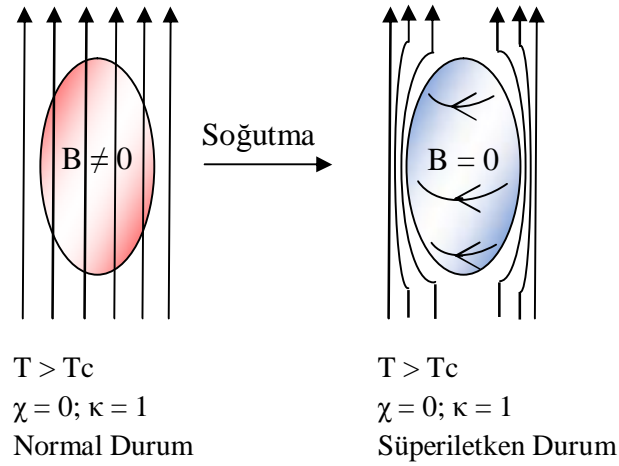
Mükemmel diyamanyet için alınganlık,

$$\chi = \frac{dM}{dH} = -1 \quad (1.3.)$$

Manyetik geçirgenlik,

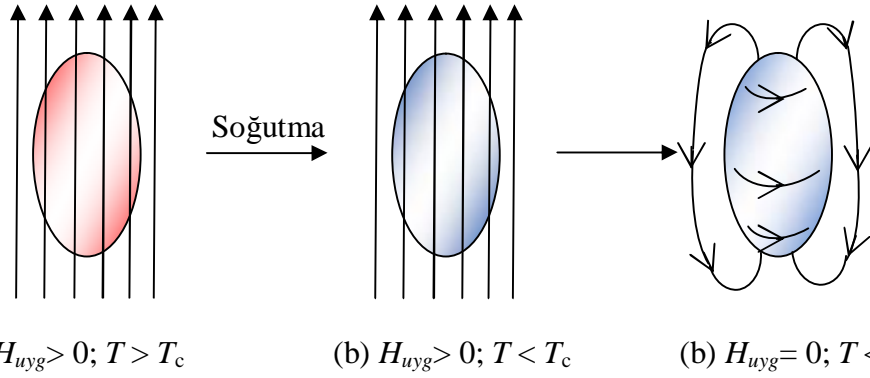
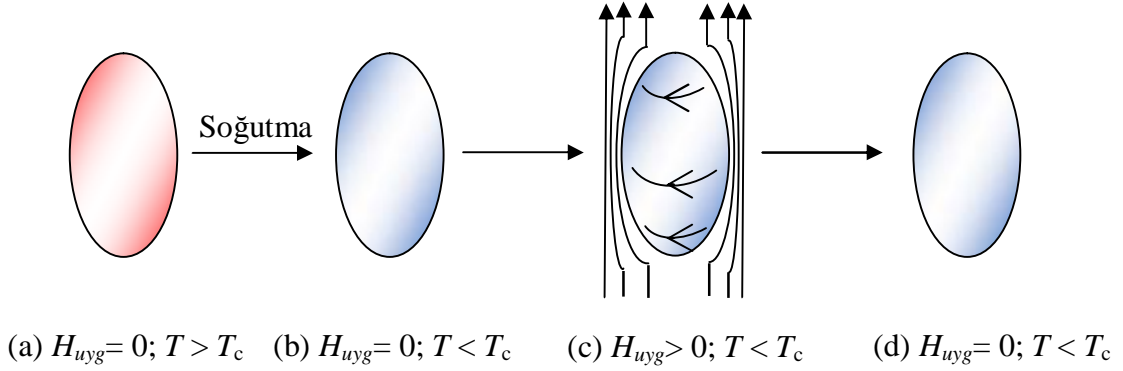
$$\kappa = 1 + \chi \quad (1.4.)$$

Bu durumda kritik sıcaklık  $T_c$  altında  $\kappa = 0$  olur. Normal durumda bulunan bir süperiletken zayıf bir  $B$  manyetik alan içerisine koyulursa (Şekil 1.4), manyetik alan malzemenin içerisine nüfuz eder. Sıcaklık  $T_c$ 'nin altına düşürüldüğünde ise manyetik alan malzeme içerisinden dışlanır. Süperiletken yüzeyinde oluşan akımlar, uygulanan alanın tersine manyetik alan uygulayarak, malzeme içerisinde  $B = 0$  olmasını sağlar. Bu durum süperiletken bir malzemenin diyamanyetik davranışa sahip olduğunu ispatlar ve bu olaya Meissner ve Ochsensfeld etkisi denir. Bu etki yalnızca belirli bir  $B_c$  kritik manyetik alan değeri altında gözlemlenebilir ve eğer manyetik alan değeri  $B > B_c$  olacak şekilde arttırılırsa, süperiletken durum bozularak manyetik alan malzeme içerisine nüfuz eder.



Şekil 1.4. Süperiletkende, Meissner ve Ochsensfeld etkisi.

Lenz yasası gereği süperiletken bir malzeme, daimi bir mıknatısı iterek havada asılı kalmasına sebep olmaktadır ve yine Lenz yasası sonucu dış alan kaldırıldığında, yüzey akımları sonlanır ve malzeme içinde alan yine  $B = 0$  olur. İdeal bir iletken için ise durum farklıdır. İdeal bir iletkenin, malzeme kritik sıcaklığın altına soğutulduktan sonra veya kritik sıcaklığın altına soğutulmadan önce uygulanması farklı sonuçlar doğurmaktadır. Bu deney Şekil 1.5 de görülmektedir. Bu durumda bir süperiletkenin, ideal bir iletken olmasının yanında mükemmel bir diyamanyet olduğu anlaşılmaktadır.

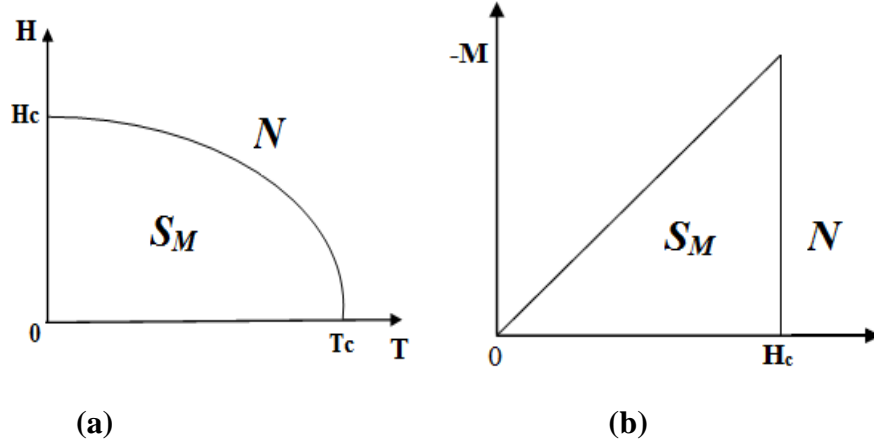


Şekil 1.5. (a)  $H_{uyg} = 0$  durumunda soğutulan ideal iletken (b)  $H_{uyg} > 0$  durumunda soğutulan ideal iletken.

### 1.3. I. ve II. Tip Süperiletkenler

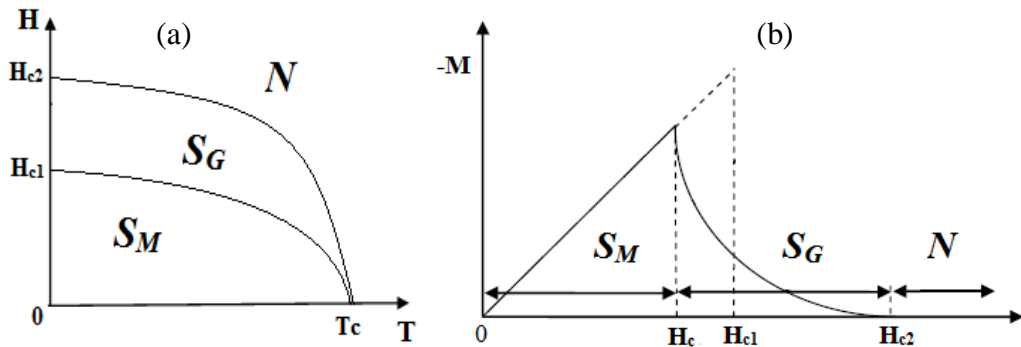
Manyetik alan altındaki davranışlarına göre süperiletken malzemeler, I. tip ve II. tip olarak ikiye ayrılmaktadır. I. tip süperiletken malzemeler,  $H_c$  kritik alan altındaki her manyetik alan değeri için tam diyamanyetik davranış gösterir ve uygulanan manyetik alan tamamen malzeme tarafından dışlanır. Bu duruma, Meissner durumu denir ve eğer uygulanan manyetik alan değeri  $H_c$  değerine ulaşırsa malzeme süperiletken özelliğini kaybeder ve normal duruma geçer  $H_c$  değeri sıcaklık bağımlı bir karakteristiğe sahiptir (Şekil 1.6 ve denklem 1.5). Bu davranış genellikle Al, In, Sn ve Hg gibi saf metallerde gözlenmektedir.

$$H_c(T) = H_c(0) \left[ 1 - \left( \frac{T}{T_c} \right)^2 \right] \quad (1.5.)$$



Şekil 1.6. (a) I. tip süperiletken için  $H_c$  kritik alanın sıcaklık bağımlılığı (b) I. tip süperiletken için  $M$  mıknatıslanmanın manyetik alan bağımlılığı ( $S_M$ : Süperiletken Meissner durumu,  $N$ : Normal durum).

II. tip süperiletken ise I. Tip malzemelerden farklı olarak, düşük kritik alan  $H_{c1}$  ve yüksek kritik alan  $H_{c2}$  olmak üzere iki farklı kritik alan değerine sahiptir. Uygulanan dış alanın  $H_{c1}$ ' den küçük olduğu her durumda, II. Tip süperiletkenler, Meissner durumuna sahiptir. Alan  $H_{c1}$  değerinin üzerinde arttırıldığında ise manyetik akı çizgilerinin malzeme içine kısmen nüfuz ettiği ama yine malzeme içerisinde süperiletken bölgelerin korunarak, malzemenin süperiletken davranış gösterdiği karışık durum (girdap durum) oluşmaktadır. Manyetik alan değeri  $H_{c2}$  değerine ulaştığında ise akı çizgileri tüm malzemeye nüfuz ederek süperiletken davranışı öldürür, böylece malzeme normal duruma geçer.

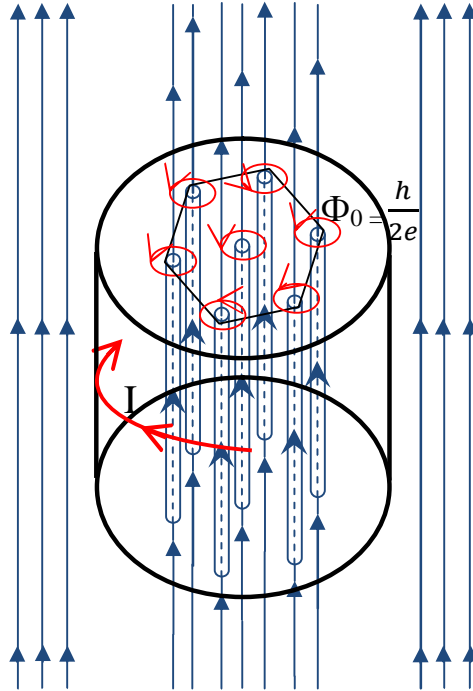


Şekil 1.7. (a) II. tip süperiletken için  $H_c$  kritik alanın sıcaklık bağımlılığı (b) II. tip süperiletken için  $M$  mıknatıslanmanın manyetik alan bağımlılığı ( $S_M$ : Süperiletken Meissner durumu,  $S_G$ : Süperiletken Girdap durumu,  $N$ : Normal durum).

II. tip süperiletken malzemelerde, karışık durumda, manyetik alan malzeme içerisine kuantize olmuş girdaplar şeklinde nüfuz eder. Bu kuantize girdap akısı aşağıdaki ifade ile verilir.

$$\Phi_0 = \frac{h}{2e} = 2,07 \times 10^{-15} \text{ T.m}^2 \quad (1.6.)$$

Malzeme içerisindeki bu girdaplar, hegzagonal bir örgü yapısında oluşmaktadır.



Şekil 1.8. Girdap durumundaki II. tip süperiletkende Abrikosov girdap örgüsü.

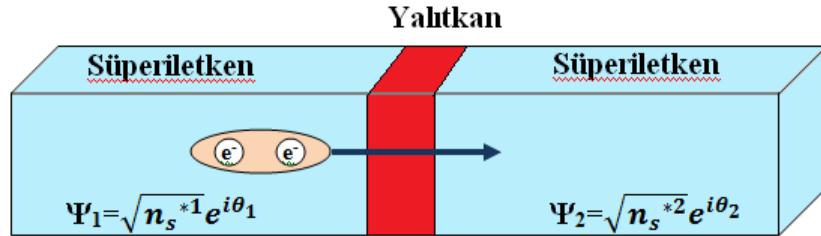
II. tip süperiletkenler karışık durumda iken yeterince büyük bir akım, girdapların akıma dik bir hareket yapmasına sebep olan bir Lorenz kuvveti indüklemektedir. Bu hareket malzeme içerisinde bir direnç oluşturmaktadır. Bu girdap hareketini önlemek için yapı içerisine safsızlık ihtiva eden bölgeler yerleştirilerek girdapların bu bölgelerde oluşması ve çivilenmesi sağlanmaktadır.



Böylece girdap hareketinden kaynaklanan direnç yok edilerek daha yüksek  $J_c$  kritik akım yoğunluğu elde edilmektedir.

#### 1.4. Josephson Etkisi

1961 yılında Brian D. Josephson, süperiletkenliğin makroskopik kuantumlu doğasının bir sonucu olarak Cooper çiftlerinin tünellenebileceğini önerdi. Aralarında zayıf bir bağ ya da ince yalıtkan bir yüzey bulunan iki süperiletkenden oluşan yapıda (Şekil 1.9), elektron çiftlerinin dalga fonksiyonlarının zayıf bir şekilde örtüşmesi ile gözlenebilen bu olaya Josephson etkisi denilmektedir. Başlangıçta çift elektron tünellemesinin, tek elektron tünellemesine göre daha düşük bir istatistiksel yoğunluğa sahip olacağı öngörülse de, faz uyumu dikkate alındığında yeterli şartlar altında bu olasılıklar birbirine eşit olmaktadır. Bu durumda Cooper çiftleri bir süperiletkenden diğerine bir potansiyel farka gerek olmadan geçerek bir DC akım oluşturmaktadır.



Şekil 1.9. İnce bir yalıtkan ile ayrılmış S-I-S Josephson eklemi.

Oluşan akım yoğunluğu, her iki süperiletken kısımdaki dalga fonksiyonlarının faz farkından kaynaklanır ve aşağıdaki gibi ifade edilir.

$$J_s = J_c \sin \varphi \quad (1.7.)$$

Burada,  $J_s$  ekleme meydana gelen akım yoğunluğu,  $J_c$  eklemnin kritik akım yoğunluğu ve  $\varphi = \theta_1 - \theta_2$  faz farkıdır. Bir Josephson eklemine eklem boyunca bir DC voltaj uygulanırsa bu DC voltaj aşağıdaki ifade ile bir AC akım üretir.

$$I_s = I_c (\omega t + \phi_0) \quad (1.8.)$$

Burada,  $I_s$  ekleme meydana gelen AC akım,  $I_c$  eklemnin sahip olduğu kritik akım,  $\omega$  oluşan AC Josephson akımının salınım frekansı ve  $\phi_0$  faz farkıdır. Faz farkının zamanla değişimi aşağıdaki gibi verilir,

$$\frac{d\phi}{dt} = \frac{2e}{\hbar} V \quad (1.9.)$$

$\hbar = h/2\pi$  ve  $\phi_0 = h/2e$  olarak alınır, eşitlik 1.9,  $\partial\phi/\partial t = (2\pi/\phi_0)V$  şeklinde yazabilir. DC voltaj altında faz farkı,

$$j(t) = j_0 + (2p/f_0)V.t \quad (1.10.)$$

Burada,  $\omega = (2\pi/\phi_0)V$  yazarsak,

$$f = \frac{\omega}{2\pi} = \frac{V}{\Phi_0} \quad (1.11.)$$

Sonuç olarak, sabit bir V voltajı altında eklemi geçen Cooper çiftleri 2 eV enerjiye sahip olacak ve direnç olmadığı için  $f = 2 \text{ eV}/h$  frekansına sahip bir foton yayımlayacak ya da soğuracaktır. Böylece 1µV luk bir gerilim farkının 483.6 MHz lik bir frekans doğuracağı sonucu elde edilir. Josephson eklemleri yüksek mertebede frekans (THz) kaynağı olarak kullanılabilir.

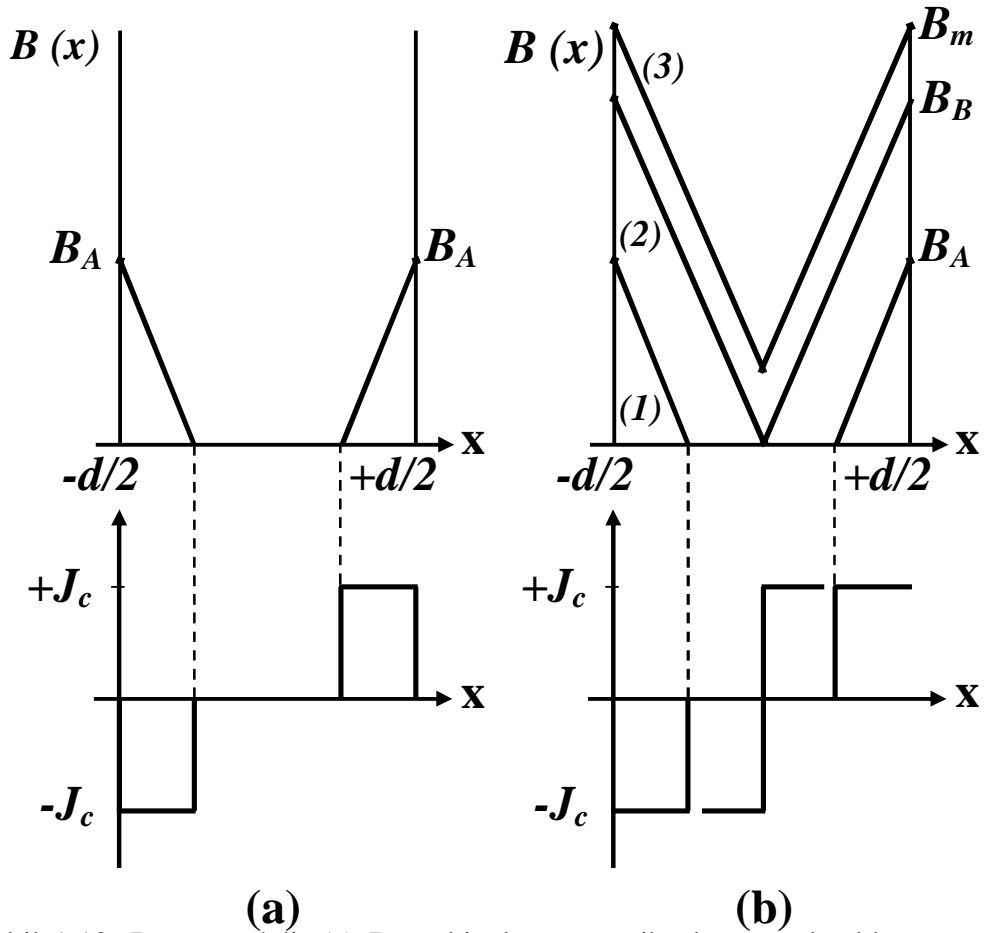
### 1.5. Bean Modeli

1962 yılında Bean genel olarak kullanışlı olan basitleştirilmiş bir model önerdi. Modele göre, kritik akım yoğunluğu  $J_c$ , dış manyetik alan B ve bu alanın malzemeye girme derinliği olan r uzunluğuna bağlıdır. Bean' e göre dış manyetik

alanın nüfuz edebildiği her bölgede, akım yoğunluğu sabit bir  $J_c$  değer almaktadır ve uygulanan manyetik alanın rotasyoneline bağımlı olarak aşağıdaki gibi ifade edilir,

$$J_c = \frac{1}{\mu_0} \left( \frac{dB}{dx} \right) \quad (1.12.)$$

Ayrıca bu model malzemede oluşan kritik akım yoğunluğunun dış manyetik alana, alanın uygulanma yönüne ve süperiletken malzemenin boyutlarına bağlı olabileceğini önerir.

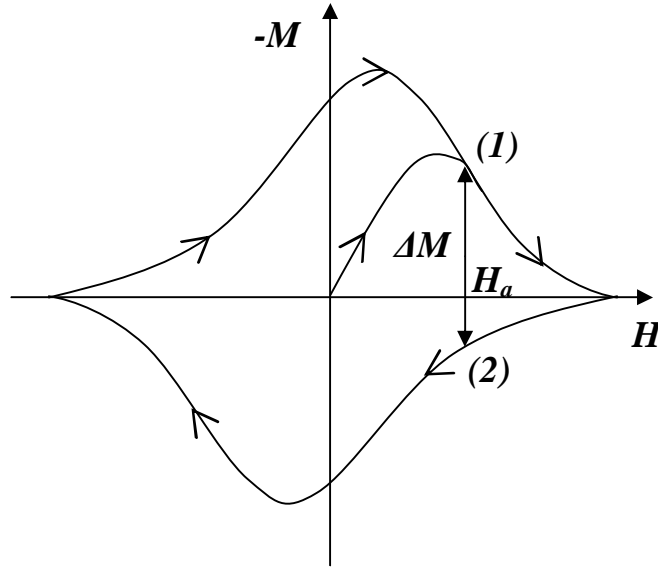


Şekil 1.10. Bean modeli; (a)  $B_A$  sabit dış manyetik alan uygulandıktan sonra; üst kısım  $d$  kalınlıklı malzeme içerisinde manyetik akı dağılımı, alt kısım akım yoğunluğu dağılımı. (b) Benzer bir örnek (1), (2) durumu manyetik akı şiddeti  $B_A$  dan  $B_B$  değerine ulaştığında manyetik alanın malzemenin merkezine nüfuz etmesi (kritik durum). (3) durumu  $B_A$  dan  $B_m$  (maksimum akı) değerine ulaşırken.

Bean modeli özellikle II. Tip süperiletkenlerin farklı manyetik alanlar altında analiz edilmesinde başarılı bir şekilde kullanılmaktadır. Fakat yüksek manyetik alanlara çıkıldığında model sonuçlarının deneysel sonuçlardan ayrıştığı gözlenmiştir. I. Tip süperiletkenler için bu ayrışmanın nedeni kritik akım yoğunluğunun manyetik alana bağımlılığı ile açıklanmaktadır. Anderson ve Kim 1964 yılında, kritik akım yoğunluğunu, yerel manyetik akı yoğunluğuna bağımlı olacak şekilde bir ifadeyle açıklayarak Bean modelini geliştirdiler.

$$J_c(T, B) = \frac{J_0(T)}{1+B/B_0} \quad (1.13.)$$

Burada,  $J_0(T)$  sıfır manyetik alan altındaki akım yoğunluğu,  $B$  yerel akı yoğunluğu ve  $B_0$  deneysel olarak tanımlanan model parametresidir.



Şekil 1.11. II. Tip bir süperiletken için H dış manyetik alan bağımlı manyetizasyon eğrisi (histerisiz).

Tam bir manyetizasyon eğrisi (histerisiz) düşünelim.  $H_a$  alanındaki toplam manyetizasyon farkı  $\Delta M = M_{(1)} - M_{(2)} = \Delta M (H_a)$  olur,  $M_{(1)}$   $H_a$  alanındaki üst manyetizasyon ve  $M_{(2)}$   $H_a$  alanındaki alt manyetizasyon değerleridir. Bean modeline göre,  $J_c = M(x)/x$ , böylece  $M(x) = J_c x \cdot M_{(1)}$  değerini hesaplırsak,

$$M_{(2)} = -\frac{1}{d/2} \int_0^{d/2} J_c x dx = -\frac{1}{4} J_c d \quad (1.14.)$$

Benzer şekilde  $M_{(1)}$  değerini de  $M_{(1)} = J_c d/4$  olarak buluruz. Böylece toplam manyetizasyon farkı  $\Delta M = M_{(1)} - M_{(2)} = J_c d/2$  olur. Son olarak kritik akım yoğunluğu aşağıdaki şekilde ifade edilir,

$$J_c = 2 \frac{\Delta M}{d} \quad (1.15.)$$

Bu şekilde yarı deneye dayalı yöntemlerle kritik akım yoğunluğu farklı geometriler içinde hesaplanabilir.

## 1.6. Süperiletkenlik Teorileri

### 1.6.1. London Teorisi

1933 yılında Meissner ve Ochsenfeld, manyetik alan altında süperiletken bir malzemenin diyamanyetik davranışını yani yüzey akımları kurularak manyetik alanın malzeme içerisinden dışlanmasını keşfetmişlerdi. Fakat akım sadece yüzeyde tanımlı olamazdı ve  $\lambda$  kadar bir derinlikte malzemeye nüfuz etmeliydi. Aksi takdirde sıfır kalınlıkta sonlu bir akım sonsuz bir yük yoğunluğu ile akmak zorunda kalırdı. Bu olay, katı içerisinde bilinen elektrik modelleriyle açıklanamadı. 1935 yılında F. London ve H. London kardeşler bir hipotez ileri sürdü. B manyetik alan ve A manyetik vektör potansiyeli olmak üzere  $\vec{B} = \vec{\nabla} \times \vec{A}$  ilişkisi verilir. London teorisi akım yoğunluğunun  $\vec{A}$  vektör potansiyeline lineer olarak bağımlı olduğunu öne sürer.

$$\vec{j} = \frac{-1}{\mu_0 \lambda_L^2} \vec{A} \quad (1.16.)$$

Bu London denklemi olarak adlandırılır ve  $\vec{J} = \sigma \vec{E}$  yasasından farklıdır. Burada Maxwell denklemlerine dayanılır. Her iki tarafın rotasyoneli alınarak vektör potansiyeli yerine manyetik alan yazılabilir,

$$\vec{\nabla} \times \vec{J} = \frac{-1}{\mu_0 \lambda_L^2} \vec{B} \quad (1.17.)$$

Zaman bağımlı elektrik alanın yokluğunda Maxwell 3. yasası  $\vec{\nabla} \times \vec{B} = \mu_0 \vec{J}$  şeklini alır. Bu eşitliğin rotasyonelini alırsak,

$$\vec{\nabla} \times \vec{\nabla} \times \vec{B} = \mu_0 \vec{\nabla} \times \vec{J} \quad (1.18.)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{\nabla} \times \vec{B} = \vec{\nabla} (\vec{\nabla} \cdot \vec{B}) - \vec{\nabla}^2 \vec{B} \quad (1.19.)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0 \text{ (Maxwell 2. Denklem)} \quad (1.20.)$$

$$-\vec{\nabla}^2 \vec{B} = \mu_0 \vec{\nabla} \times \vec{J} \quad (1.21.)$$

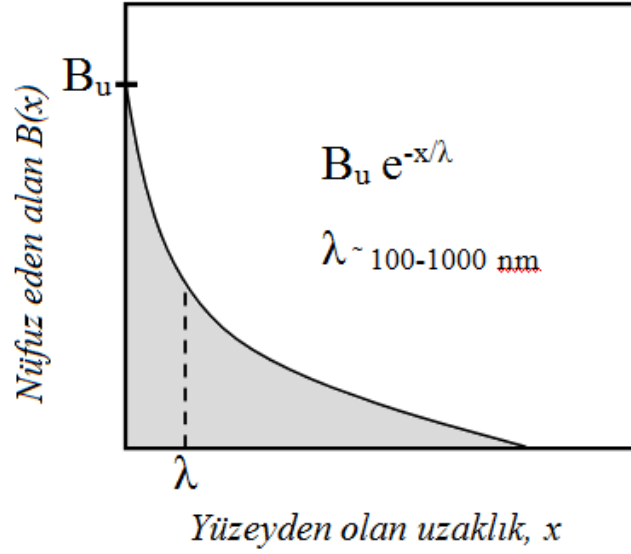
Denklem 1.17. yi kullanarak,  $\vec{\nabla} \times \vec{J}$  yerine  $-\vec{B}/\mu_0 \lambda_L^2$  yazılırsa,

$$\vec{\nabla}^2 \vec{B} = \frac{1}{\lambda_L^2} \vec{B} \quad (1.22.)$$

Yukarıdaki denklem 1.22. nin bilinen bir çözümü var ayrıca süperiletken içerisinde manyetik alan dışlanarak  $B_{iç} = 0$  olmalıdır. Denklem için önerilen çözüm,

$$B(x) = B_0 \exp(-x/\lambda_L) \quad (1.23.)$$

Yukarıdaki çözüm için manyetik alanın sınır düzlemine paralel olduğu varsayılmıştır Burada  $\lambda_L$  London girme derinliğidir.



Şekil 1.12. Süperiletken durumda, malzeme içerisine nüfuz eden manyetik alan.

Fakat girme derinliği sadece  $\lambda_L$  ile belirlenemez çünkü London kardeşler denklemleri birçok ideal koşul altında oluşturmuşlardır. Süperiletken durumda  $m$  kütleli,  $n_s$  yoğunluklu ve  $q$  taşıyıcı yüklü bir parçacık için SI birim sisteminde girme derinliği,

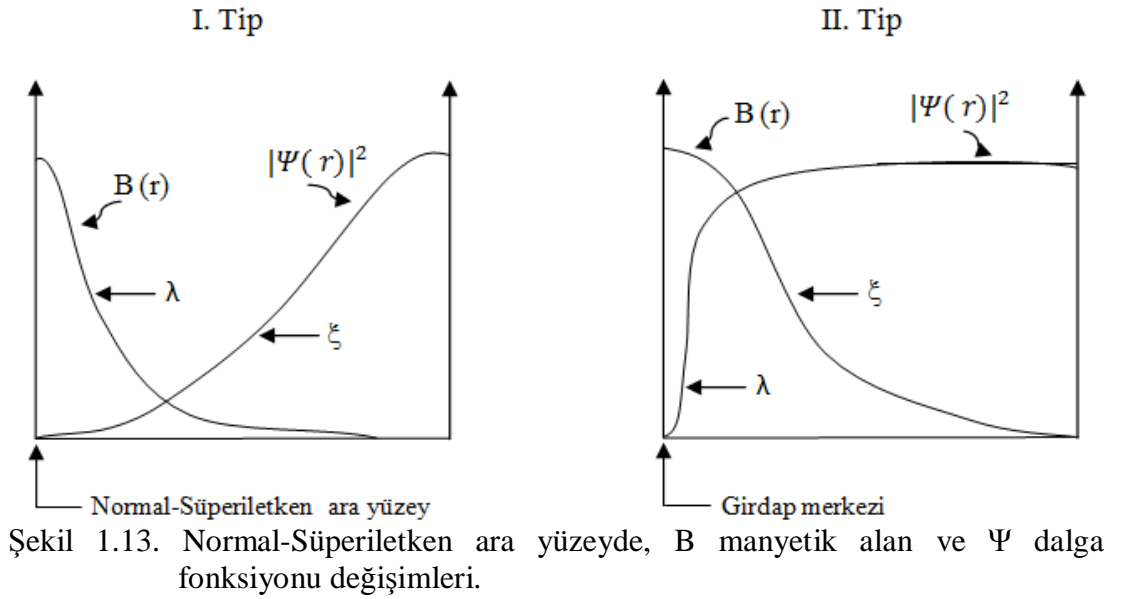
$$\lambda = \left( \frac{m_q}{\mu_0 n_s q^2} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (1.24.)$$

şeklinde ifade edilir. Daha sonra BCS teorisi  $q$  yükünü 2 kat artırarak London teorisini geliştirmiştir.

### 1.6.2. Ginzburg-Landau Teorisi

Ginzburg ve Landau 1950 yılında süperiletkenlik teorisine,  $\xi$  eş uyum uzunluğu olarak bilinen notasyonu geliştirerek önemli bir katkıda bulundular. Hipotezlerini öne sürdükleri zamanlarda, süperiletkenlik sadece elektronlar arası bir etkileşimle açıklanabiliyordu ve doğal olarak bu etkileşimin sınırlı bir uzunlukta gerçekleşmesi beklenmekteydi. Temel olarak  $\xi$  eş uyum uzunluğu, bir elektron çiftinin birbiriyle olan etkileşimlerini ifade eden bir ölçüdür. Süperiletkenliği

tanımlamak için kuantum-mekaniksel dalga fonksiyonu denklemleri ilk olarak Ginzburg-Landau teorisinde kullanılmıştır. Teorinin anahtar sorusu; Süperiletkenlik ve manyetizmanın birlikteliği,  $\lambda$  nüfuz derinliği ve  $\xi$  eş uyum uzunluğu arasındaki ilişkiye nasıl bağlıdır?  $\xi_0$  olarak bilinen esas eş uyum uzunluğu, I. Tip süperiletkenler için yaklaşık olarak  $3 \mu\text{m}$  olarak hesaplanmıştır. Bu değer saf bir metal içinde benzerdir. Fakat alaşım ve bileşikler için  $\xi_0$  daha küçük değerler alır. Bunun sebebi elektronların serbest yol uzunluğunun küçülmesidir ve işte bu sebeptendir ki II. Tip süperiletkenler bu gruba dâhildir. Bir malzemenin süperiletken özellikleri, elektronların serbest yol uzunluğu değişimiyle şekillenebilir. Bu prensip, uygulanabilir süperiletkenler için hangi malzemenin en iyi seçim olduğuna karar vermede epey avantaj sağlar.



Süperiletkenleri kategorize etmek için faydalı bir yöntem Ginzburg-Landau oranının kullanmaktır,

$$\kappa = \frac{\lambda}{\xi} \quad (1.25.)$$

$\kappa$  değerinin birden büyük veya küçük olması malzemenin süperiletkenlik tipinin belirlenmesinde önemli bir rol oynamaktadır. Bu durum şu şekilde açıklanabilir: ara



durumda normal ve süperiletken bölgeler arasındaki sınırda geçiş aniden olmaz. I. Tip süperiletkenler için, akı süperiletken yüzeye nüfuz derinliği kadar girebilmektedir ve bu sınırda  $\kappa < 1$  durumu pozitif yüzey enerjisine sebep olur. II. tip süperiletkenler için ise  $\kappa > 1$  durumu negatif yüzey enerjisine yol açar. Ara yüzey enerjisi süperiletken durumun hacmine ilişkin ekstra enerji olarak tanımlanabilir. Pozitiften negatife geçişin  $\kappa = 1/2$  değerinde olduğu, orijinal Ginzburg-Landau makalesinde gösterilmiştir. Ginzburg-Landau parametresindeki  $\kappa > 1/2$  için negatif yüzey enerjisi durumunun anlaşılması ve değerlendirilmesi Abrikosov tarafından yapılmıştır.

Gerçekte süperiletken olan malzemede negatif yüzey enerjisi, tek bir akı kuantumunun ince bir tüp halinde malzemeyi delip geçinceye kadar yarılmasına ve bu bölgelerin normal duruma geçip akı taşımaya sebep olur. Bu olay II. Tip süperiletkenlik olarak bilinir.

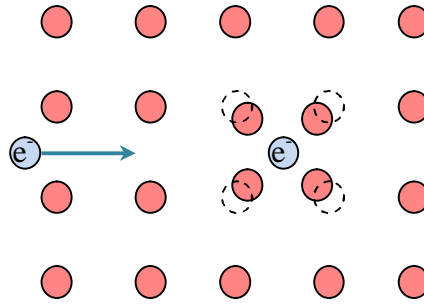
### 1.6.3. BCS Teorisi

Bardeen, Cooper ve Schrieffer 1957 yılında yayınladıkları ‘Microscopic Theory of Superconductivity’ isimli çalışmalarında, Süperiletkenliğin mikroskobik kuantum teorisinin temellerini atmışlardır. Teori öncesinde süperiletkenliğin klasik modellerle açıklanamayacağı kabul görmüştü ve yine basit kuantum mekaniksel yaklaşımlarla da süperiletkenlik mekanizması açıklanamazdı. 1950 yılında Maxwell ve Reynold aynı elementin farklı kütle numarasına sahip izotoplarının farklı süperiletken kritik geçiş sıcaklığına sahip olduklarını bulduklarında, elektron-fonon etkileşiminin süperiletkenlik mekanizmasında önemli bir rol oynadığı anlaşılmıştı.

$$T_c \propto \frac{1}{\sqrt{M}} \quad (1.26.)$$

Bu noktada BCS teorisi, 0 K de ve fermi yüzeyine yakın dar bir enerji aralığında bulunan elektronların cazip bir potansiyel varlığında, aralarındaki net çekim etkileşmesi üzerine kurulmuştur. BCS teorisi, elektronların örgü titreşimleri ya da fononlar aracılığı ile birbiriyle etkileşen çiftler halinde hareket ettiğini söyler. Atom

içerisinde bir elektron harekete geçtiği zaman örgü üzerinde titreşen fononlar, bu elektrona doğru bir Coulomb kuvveti etkisi ile deforme olurlar. Böylece, elektron çevresinde pozitif bir yük yoğunluğu meydana gelir. Oluşan bu potansiyel gradyenti altında, ikinci bir elektron bu yük yoğunluğundan etkilenir ve yayılan fononu soğurarak termodinamik açıdan daha düşük enerjili bir duruma geçer. Böylece iki elektron arasında fonon yardımıyla çekici bir Coulomb etkileşimi meydana gelir. Bu çiftlenme Pauli dışarlama ilkesi gereği ters spinli elektronlar arasında gerçekleşmektedir.



Şekil 1.14. Örgüdeki bozulma ile etkileşime giren elektronlar (Cooper çiftleri).

Fermi enerjisinin üzerinde  $\hbar\omega$  enerji aralığındaki elektronlar arasında  $V$  büyüklüğünde cazip bir etkileşme potansiyeli varsa iki elektronun enerjisi  $\Delta$  kadar azalacaktır,

$$\Delta = -2 \hbar\omega e^{-2/(g(\epsilon_f)V)} \quad (1.27.)$$

Böylece sistemin toplam enerjisi,

$$\Delta = 2\epsilon_f - 2 \hbar\omega e^{-2/(g(\epsilon_f)V)} \quad (1.28.)$$

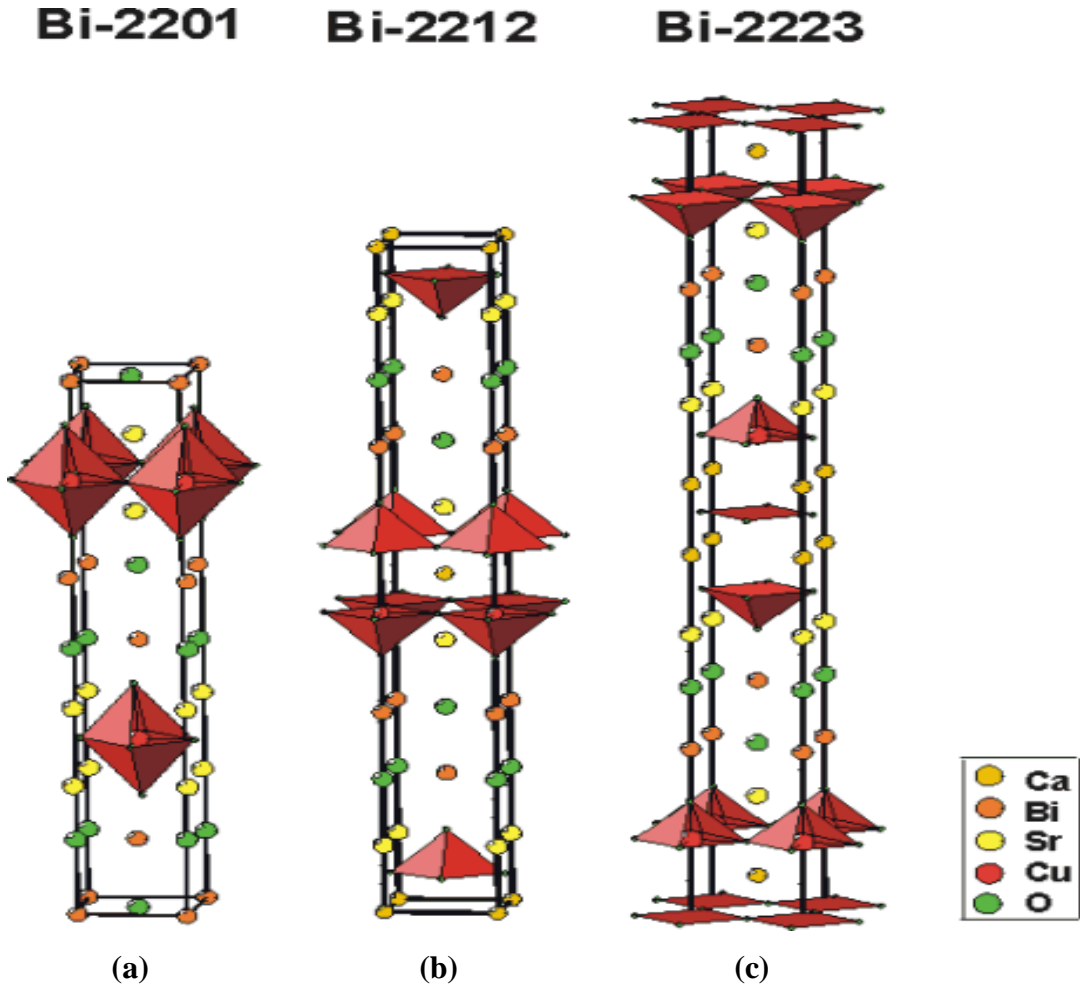
Bu durumda sistemin yüksek kinetik enerjisine rağmen çekici potansiyel enerjisi, toplam enerjiyi Fermi durumuna göre daha düşük enerjili bir duruma çekmektedir. Yani Cooper çiftlerinin oluşumu sistemin enerjisinin azalacağı anlamına gelmektedir. BCS teorisine göre, süperiletken durumu etkileşimsiz

bozonlar gibi düşünmek gerçekçi değildir çünkü Cooper çiftinin olduğu hacimde  $10^6$  elektron vardır. Yani ortam serbest elektron gazı durumunda ise bozon yoğunlaşması gerçekleşebilir.

## 1.7. High-Tc Süperiletkenler

### 1.7.1. BSCCO Süperiletken Ailesi

1987 yılında Mitchell ve arkadaşları Bi-Sr-Cu-O yapısında süperiletken davranışı keşfettiler hemen sonrasında 1988 yılında Maeda ve arkadaşları yapıya Ca ekleyerek BSCCO (Bi-Sr-Ca-Cu-O) yapılı süperiletken aileyi oluşturdular. Bu süperiletken grubun özelliklerinin başlangıç kompozisyonlarına, hazırlama yöntemlerine ve seçilmiş olan yöntemin değişken parametrelerine (sinterleme sıcaklığı ve sinterleme süresi vb.) oldukça hassas olduğu görülmüştür (Tarascon, 1988). BSCCO sistemlerinde,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4+y}$  genel formülü ile elde edilebilen üç faz mevcuttur. Genel denklemde n, bir birim hücrede bulunan Cu-O düzlemlerinin sayısını vermektedir. n=1 için 20 K sıcaklığa sahip  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+y}$  (2201), n=2 için yaklaşık 80 K sıcaklığa sahip  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$  (2212), n=3 için 110 K kritik sıcaklığa sahip  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+y}$  (2223) fazları elde edilmektedir (Tarascon, 1988). Şekil 1.15 de gösterilen bu fazların birim hücreleri iki çift Bi-O düzlemleri arasına yerleşmiş Sr-O, Cu-O ve Ca-O düzlemlerinden meydana gelmiştir.



Şekil 1.15. BSCCO süperiletken ailesinin kristal yapıları. a) 2201 fazına b) 2212 fazına c) 2223 fazına ait kristal düzlemleri göstermektedir. (Tarascon, 1988).

2201 fazında Cu atomları, O atomları ile kare piramidal bir yapı göstermektedir. Piramidal yapının alt ve üst kısımlarında Sr-O düzlemleri bulunmaktadır. Bir birim hücrede, dört tane Bi-O düzlemi bulunmaktadır. Yalnızca Cu-O kare piramidal yapının üst kısmını düşünürsek, ilk Bi-O düzlemi olan  $\text{BiO}_3$ , Sr-O<sub>2</sub> düzleminden 2.9 Å, ikinci Bi-O düzlemi olan  $\text{BiO}_2$  ise 2.0 Å uzaklıktadır. Bu uzaklıklar, benzer olarak alt Bi-O düzlemleri için de geçerlidir. n=1 fazının,  $a \approx b = 5.4$  Å ve  $c = 24.4$  Å birim hücre boyutlarına sahip hacim merkezli tetragonal ya da  $a \approx b = 3.9$  Å ve  $c = 24.4$  Å birim hücre boyutlarına sahip ortorombik simetride olduğu ileri sürülmektedir (Tarascon, 1988 ve Mei, 1988).

2212 fazı ise,  $n=1$  fazından, Cu-O düzlemleri arasında bir Ca-O düzleminin bulunması dışında farklı değildir. Yani, iki Sr-O<sub>2</sub> ve bir Cu-O düzleminde oluşan Sr-Cu-Sr dizilimi bozulmakta, iki Sr-O<sub>2</sub> düzlemi arasında ikinci bir Cu-O düzlemi oluşmakta ve yine bu iki Cu-O düzlemi arasına, bir Ca-O düzlemi girmektedir. Bu durumda, Sr-Cu-Ca-Cu-Sr dizilimi oluşmaktadır. Bu fazda Cu-O düzlemleri, CuO<sub>5</sub> piramitleri şeklindedir. Birim hücre boyutları  $a \approx b = 5.37 \text{ \AA}$  ve  $c = 30.8 \text{ \AA}$  olarak verilmektedir (Tarascon, 1988). Kristal simetrisinin, ortorombik ya da tetragonal olabilmektedir.

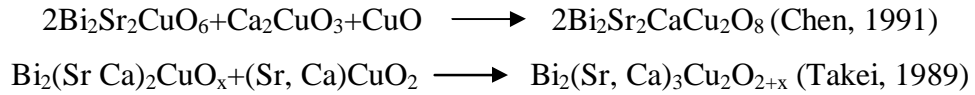
2223 fazında ise, Bi-O ve Sr-O düzlemlerinin sayısı ve düzeni değişmemekte ve birer tane daha Cu-O ve Ca-O düzlemlerinin yapıya girmesi ile Sr-Cu-Ca-Cu-Ca-Cu-Sr dizilimi oluşmaktadır. Son oluşan Cu-O düzleminde bakırın oksijen ile karesel bir yapıya sahip olduğu görülmektedir. Örgü parametreleri  $a \approx b = 5.4 \text{ \AA}$  ve  $c = 37.1 \text{ \AA}$  boyutlarındadır ve kristal simetri tetragonaldir (Gupta, 1990, Zhu, 1991 ve Subramanian, 1988).

Bu sistemlerde süperiletkenlik geçiş sıcaklığının, Cu-O düzlemlerinin artması ile arttığı görülmektedir. BSCCO sistemlerinin genel yapısal karakteristiklerinden birisi de bunların tek faz olarak elde edilmesinin zorluğudur. Bir başka özellikleri de sonuç stokiyometrilerinin başlangıç stokiyometrilere oldukça farklı olabilmeleridir. Maeda ve arkadaşları bakırca zengin 2223 ( $n=3$ ) fazını hazırlayabilmek için 1112 çıkış stokiyometrisini, Tarascon ve arkadaşları ise 4336 çıkış stokiyometrisini kullanmışlar ve genelde tek faz elde edememişlerdir. Tek bir tanecikte bile görülen bu karışık faz özelliği, BSCCO sistemlerini bozuk ve karmaşık yapıya bir hale getirmektedir. Mikro yapıda bile görülen bu bozukluk ve karışık faz özelliği, bu sistemlerin bütün özelliklerini (kritik sıcaklık, kritik akım yoğunluğu ve kritik manyetik alan gibi) etkilemektedir. Örneğin, 110 K kritik sıcaklığına sahip  $n=3$  fazında kritik sıcaklığın başlangıcı 110 K olmasına rağmen, tanecik sınırları yakınlarında  $n=1$  ve  $n=2$  fazlarının oluşması nedeniyle sıfır direnç daha düşük sıcaklıklarda elde edilebilmektedir. Yapıda bizmut ile kurşunun kısmi yer değiştirmesinin direnç-sıcaklık (R-T) eğrilerinde görülen bu istenmeyen durumu ortadan kaldırarak özelliklerde iyileşme sağladığı görülmüştür (Gren, 1990). Bütün yüksek sıcaklık süperiletken sistemlerinde olduğu gibi, BSCCO ailesinin kristal

yapısı da c örgü parametresinin a ve b örgü parametrelerine göre oldukça büyük olmasından dolayı yüksek bir anizotropiye sahiptir.

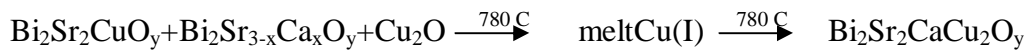
### 1.7.2. Bi-2212 Kristal Yapısı ve Faz Oluşumu

2212 fazının, 2201 ve 2223 fazlarının oluşum sıcaklıklarının arasındaki bir sıcaklık değerinde oluştuğuyla ilgili genel bir görüş vardır. 2212 fazının oluşma mekanizmasını şu şekilde gösterebiliriz,

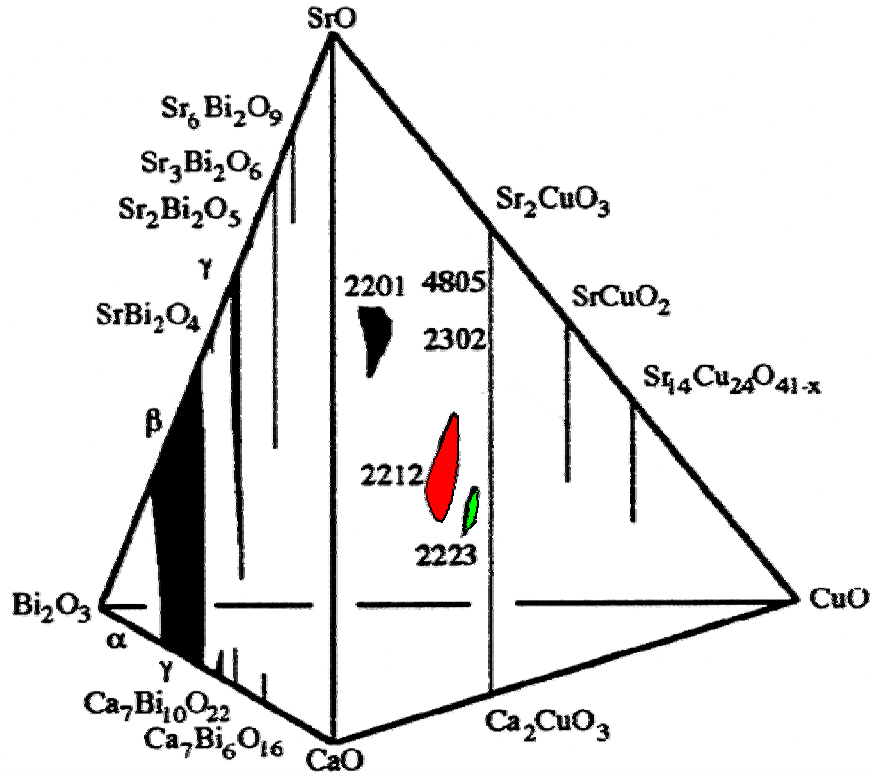


Sıcaklığın 600 °C' nin üstüne çıkmasıyla reaksiyon ilerlemektedir ve reaksiyonun ana ürünü olarak 2212 fazı oluşmaktadır.

Sato ve arkadaşları 1993 yılında,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCuO}_x$  cam için kristalleşme mekanizmasını incelediler ve Cu(II) tüketilene kadar önce  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_y$  fazının oluştuğunu, daha sonra kalan camda  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{3-x}\text{CaO}_y$  ( $x \approx 1$ ) ve  $\text{Cu}_2\text{O}$  oluştuğunu tespit ettiler. Örnek 780 °C' ye ısıtıldığında  $\text{CuO}_2$ ' nin varlığına bağlı olarak bir sıvı oluşmaktadır. Bu sıvının; Cu(I)'i Cu(II)'ye dönüştürmede oksijen difüzyonuna yardımcı olduğu belirtilmiştir. Özetle,



Holesinger ve arkadaşları 1992 yılında,  $\text{O}_2$  ortamındaki  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$  için kristalleşme sürecinin, iki adımda ortaya çıktığını bulmuşlardır. Önce 2201 ve  $\text{CuO}_2$  çekirdekleşmiştir; sonra Sr, Ca ve  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{3-x}\text{Ca}_x\text{O}_y$  kristalleri oluşmuştur. 2212 fazı 800 °C' de dominant bir faz olarak ortaya çıkmaktadır.



Şekil 1.16.  $\text{Bi}_2\text{O}_3$ - $\text{SrO}$ - $\text{CaO}$ - $\text{CuO}$  için  $850^\circ\text{C}$  de hava ortamında dörtlü faz diyagramı (Majewski, 1997).

### 1.8. Süperiletken İnce Filmler ve Üretim Teknikleri

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

Süperiletken malzemelerin ince/kalın film, tel ve şerit formunda elektronik, manyetik ve optik uygulamalar gibi teknolojik alanlara entegrasyonları için yoğun

çalışmalar yapılmaktadır. Birçok uygulamada çok önemli yeri olan ince filmler üzerine araştırmalar yapılmaktadır. Günümüzde ince filmler yarıiletken aletlerde, manyetik kayıt ve algılama sistemlerinde, optik kaplamalarda ve dekoratif işlerde yaygınlıkla kullanılmaktadır. Kaplama yöntemlerindeki farklılıklar ve kaplama sırasındaki çeşitli işlemler sonucu, külçe malzemede bulunmayan birçok özellik ince filmlerde elde edilebilmektedir: Atomik büyütme işleminden kaynaklanan filme özgü malzeme özelliklerini, kristal yönlenmesini ve çok katlı yapılardan kaynaklanan kuantum ve diğer boyut etkilerini görmek mümkündür.

Genel olarak ince film kaplama teknikleri, fiziksel buhar kaplama (PVD) ve kimyasal buhar kaplama (CVD) olmak üzere iki gruba ayrılırlar. Fiziksel buhar kaplama tekniklerinde en yaygın olarak kullanılan yöntemler; Atımlı Lazer Yığılma (PLD), Püskürtme (Sputtering), Moleküler Demeti Epitaksi (MBE) ve Buharlaştırma (Evaporation)'dır. Kimyasal buhar kaplama tekniklerinde en yaygın olarak kullanılan yöntem ise Metal-Organik Kimyasal Buhar Kaplama (MO-CVD)'dir. Günümüze kadar geliştirilen farklı kaplama işlemleri ile uygulanan fiziksel buhar kaplama tekniği vakumlu ortamda, bir ısıtıcı (rezistans, lazer, elektron bombardımanı vb.) ile buharlaştırılan materyallerin kaplanacak olan malzeme üzerinde (örneğin altlık) ince bir film katmanı halinde birikmesi işlemine dayanmaktadır.

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



Püskürtme (sputtering) tekniği, ince film üretiminde bilim adamları tarafından yaygın olarak kullanılan tekniklerden biridir. Bu yöntemde katı malzeme gaz bir plazma içinde pozitif iyonlarla bombardıman edilir ve katı malzemenin yüzeyinden atomlar kopartılır. Kaplanacak olan malzeme, hızlandırılmış iyonlar gibi enerjik parçacıklarla bombardıman edilirse saçılan atomlar altlık yüzeyinde film tabakası oluştururlar. Maksimum kaplama oranı, birbirine bakan hedef ve altlığın geometrisinin uyuşmasıyla gerçekleşmektedir. Ancak, kaplanmış filmde gaz plazmasındaki iyonların bombardımanından dolayı ciddi kusurlar gözlenebilir. Bunu önlemek için altlık yüzeyi, hedef püskürtücüsüyle dik açılı olacak şekilde yerleştirilmelidir. Bu teknik başlangıç eksenini, ürünün miktarını önemli derecede azaltabilme gibi dezavantajlara sahiptir. Püskürtme tekniğinde bir diğer problem, farklı elementler için püskürtülen ürünlerdeki farklılıklardan dolayı istenilen kompozisyona sahip olamamasıdır. Bu problemlere karşın, yüksek sıcaklık süperiletken filmlerin üretiminde yoğun olarak kullanılmaya devam eden pahalı olmayan bir tekniktir.

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

Kimyasal buhar kaplama (Chemical Vapour Deposition-CVD) katı malzemeyi oluşturan gaz içerikli bileşenlerin kimyasal reaksiyonlarını ve ayrışmalarını kapsar. Tepkimeye giren gazlar, ısıtılan bir altlık yüzeyine taşınır. Burada bileşenlerine ayrılır ve istenilen süperiletken fazın oluşması için, altlık yüzeyi

ile etkileşime girer. CVD metodunun avantajı düzenli, saf ve tekrarlanabilir filmlerin üretiminin gerçekleştirilebilmesidir. Yüksek reaksiyon sıcaklığı, aşındırıcı gazların varlığı ve nispeten düşük kaplama oranları dezavantajlarıdır.

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

Atımlı lazerle yığılma (PLD) tekniği, yüksek sıcaklık süperiletkenlerinden iyi kalitede filmler elde etmede kanıtlanmış başarısıyla önem kazanmıştır. PLD tekniği vakum çemberi içerisindeki hedefe yüksek güçte lazer tutulması ile gerçekleştirilir. Bu metotta lazer, hedef malzeme üzerine odaklandırılır. Lazer tutulması, hedefteki malzemenin buharlaşarak altlık üzerine kaplama yapabilmesini sağlar. Bu işlem çok yüksek vakum ortamlarında veya bir taşıyıcı gaz ortamında yapılabilir. Örneğin, oksijen oksit kaplama işlemlerinde kullanılır. Lazer demeti hedefe ulaştığında, enerji hedef tarafından soğurularak termal enerjiye çevrilir. Buharlaşma oluşur ve plazma meydana gelir. Plazmanın içerisinde çok yüksek enerjili parçacıklar vardır. Bu parçacıklar, sıcak altlık üzerine birikerek film tabakasını oluşturur. Plazma, nispeten düşük altlık sıcaklıklarında çok yüksek kalitede ince filmlerin büyütülmesine yardımcı olmaktadır. Atomik oranda çok katmanlı yapılar ve süper örgüler kolaylıkla bu teknik ile üretilirler. Bu tür avantajlar, PLD tekniğini ince film teknikleri arasında en popüler yöntemlerden biri haline getirmiştir (Türkoğlu, 2010).

### **1.8.1. Tek Kristal Altlıklar ve Uygun Altlık Seçimi**

Altlık seçimi, yüksek kalitede ince filmler üretmek için önemli bir parametredir. Bütün filmlerin kaplanmasında kaplama sonrası ısıl işlem gereklidir ve

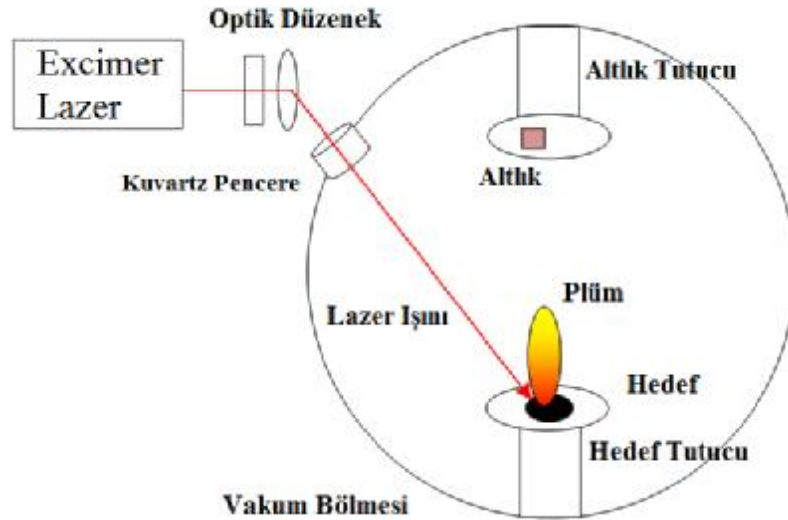
bu işlem sırasında film ile altlık arasında etkileşim meydana gelir. Film ile altlık arasındaki etkileşim, örgü uyumu ve film ile altlığın termal genişleme katsayılarının uyumu olarak adlandırılmaktadır. Burada kaplama ve altlıktan farklı yapıların olduğu bir reaksiyon bölgesi veya yeni yapıların oluşmadığı film ile altlık arasında meydana gelen difüzyonun olduğu bir ara yüzey meydana gelmektedir. Yeni bölge, zaman ve sıcaklıkla büyümeye devam eder. Altlıkları belirlemedeki ilk iş, altlık ve filmin kimyasal açıdan uygun olup olmadığının belirlenmesidir. Aynı zamanda altlık, çökeltme sürecine ve filmlerin kullanım şartlarına da uygun olmalıdır. Altlık seçiminde bir diğer önemli nokta, film ile altlık arasındaki termal genişleme katsayıları arasındaki uyumdur. Yüksek sıcaklık süperiletken filmler ile altlık arasında iyi bir termal genişleme uyumunun olması filmin altlığa tutunması ve ısı işlem sırasında filmde çatlakların ortaya çıkmaması için çok önemlidir. Bu parametrelerin uyumu iyi olduğunda yüksek kalitede epitaksiyel büyümenin gerçekleşme olasılığı da artar. Altlık seçiminde göz önüne alınan diğer bir nokta da özellikle filmler, endüstride kullanılacaklarsa, fiyat ve ebat konusudur. Yüksek sıcaklık süperiletken filmleri kaplamada kullanılan bazı altlıkların kristal özellikleri Çizelge 1.1 de gösterilmiştir.

Çizelge 1.1. Yaygın olarak kullanılan bazı tek kristal altlıkların fiziksel özellikleri.

<b>Altlıklar</b>	<b>SrTiO<sub>3</sub></b>	<b>LaAlO<sub>3</sub></b>	<b>MgO</b>
<b>Kristal Yapı</b>	Kübik	Triklirik	Kübik
<b>Erime Noktası</b>	2353 K	2373 K	3250 K
<b>Yoğunluk</b>	5.12 g/cm <sup>3</sup>	6.52 g/cm <sup>3</sup>	3.58 g/cm <sup>3</sup>
<b>Özgül Isı</b>	0.544 J/g.k (@ 298 K)	0.427 J/g.k (@ 298 K)	0.879 J/g.k (@ 298 K)
<b>Termal İletkenlik</b>	11.2 W/m.k (@ 300 K)	11.6 W/m.k (@ 300 K)	59 W/m.k (@ 300 K)
<b>Termal Genleşme</b>	9.4 x 10 <sup>-6</sup> k <sup>-1</sup> (@ 300 K)	11.6 x 10 <sup>-6</sup> k <sup>-1</sup> (@ 300 K)	11 x 10 <sup>-6</sup> k <sup>-1</sup> (@ 300 K)
<b>Hücre Parametresi</b>	a = 3.905 Å	a = 3.79 Å	a = 4.213 Å
<b>Sertlik (Mohs)</b>	6	6.5	5.5

### 1.8.2. Lazer Atımlı Yığılma Tekniği (PLD)

Lazerle aşındırma tekniği, temel deneysel tasarım bakımından, diğer fiziksel buhar yığılma işlemleri ile benzerdir. PLD sistemi, bir vakum bölgesi, ısıtıcı bir altlık tutucu ve hedef içerir. PLD sisteminin şematik bir gösterimi Şekil 1.17 de görülmektedir. Kr, F<sub>2</sub>, He ve Ne gazlarının bir karışımını kullanarak çalışan excimer lazer, 193 nm ve 308 nm aralığında elektromanyetik dalga üreterek hedef malzemeyi aşındırır. Lazer akısı, farklı lazer enerji çıkışları ya da lazer ışınını odaklayarak değiştirilebilir.

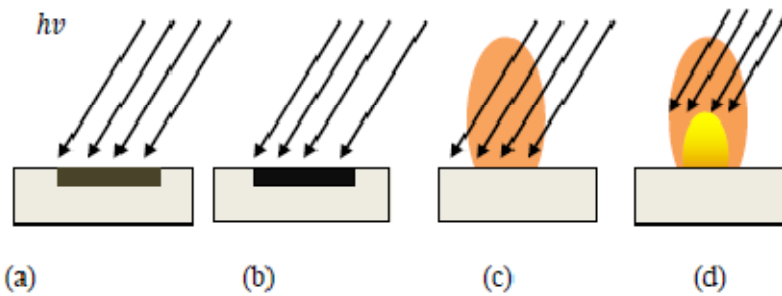


Şekil 1.17. Atımlı Lazer Yığılma (PLD) sistemi.

Optik sistem, bir ayna ve bir yüzü düz diğer yüzü iç bükey olan bir lens den oluşur. Ayna yansıtıcı boyalı bir yüzeye sahiptir. Lazer ışını, lazer enerji yoğunluğu çok yüksek ya da pencere toz parçacıkları ile kaplıysa zarar vermeye duyarlı olan kuvartz bir pencereden vakum bölgesine girer. Vakum bölgesi lazer ışığını içeri alan dışında birçok pencereye sahiptir bunların bazıları, yığılma işlemini gözlemlemek bazıları ise farklı in-situ dinamik ölçüm aygıtlarını sisteme dâhil edebilmek içindir. Büyütme bölgesi, ısıtıcı bir altlık tutucu, dönen bir hedef tutucu ve bu parçalar arası görsel teması kesen bir kapatıcı içerir. Yığılma işlemi esnasında ortam gaz basıncı, bir kütle akış kontrolcüsü ve bir valf kullanarak düzenlenir.

### 1.8.2.1. Lazer-Hedef Etkileşimi

Lazer-hedef etkileşimi püskürtme olayı ile tanımlanabilir. Termal püskürtmede, hedefin yüzey sıcaklığı genellikle aşındırılan materyalin kaynama noktasının üzerinde olmaktadır. Fakat aşındırılan materyalin daha yüksek sıcaklıklara ihtiyacı vardır. Bu sebeple Termal püskürtücü, aşındırma bulutunun oluşumunu açıklayabilir. Lazer radyasyonu hedef tarafından soğurulduğunda, uyarılmış elektron enerjileri yüzey sıcaklığını yükseltir. Yüzey sıcaklığındaki artış (Seramiklerin erime sıcaklığı  $-1500^{\circ}\text{C}$  kolayca aşılabılır) materyalin optik nüfuz etme derinliğine, hedefin termal iletkenliğine ve fotonların tedarik edildiği orana bağlıdır. Lazer atımları yüzeyi bombardıman ederken, erimiş yüzey tabakası buharlaştırılır. Böylece hedef materyalin bileşenlerinin etkin bir şekilde aynı anda serbest bırakıldığı, uyumlu bir buharlaştırma gerçekleşir. Lazer enerjisi yaklaşık 18 ns gibi kısa bir zamanda küçük bir hacim için üretilmektedir. Bu durum hedef materyal ile aynı sitokiyometriye sahip materyal sökmeyi garanti eder. Materyallere nano saniyede lazer ışını atmasının termal etkileri lazer atma parametreleri (Geçici güç yoğunluğu  $I(t)$ , atım süreci ve dalga boyu gibi), optik özellikler (yansıtma  $R$  ve soğurma katsayısı  $\alpha$ ) ve materyalin termal özellikleri (Termal iletkenlik  $K$ , hacim başına durgun ısı  $L_V$  ve özgül ısı  $C_V$  ayrıca aşındırma sıcaklığı gibi) ile belirlenir. Lazer-hedef etkileşimi Şekil 1.18 de görülen süreçle özetlenebilir.



Şekil 1.18. Lazer- hedef etkileşimi (Tozan, 2010).

- a) İlk lazer atımı hedefe vurur,
- b) Bu atım hedef yüzeyini eritir,
- c) Sıvı materyal buharlaşır,
- d) Son olarak hedef yüzeyinde çıkan plazmada, materyaller iyonize olur.

### 1.8.2.2. Plazma-Altık Etkileşimi

Plazma-altık etkileşimi, plazma içerisindeki iyonize materyallerin, ortamda bulunan oksijen atomları ile esnek olmayan çarpışmalarla enerji kaybederek (soğuyarak), altlık yüzeyine tutunması ve zamanla altlık yüzeyinde birikmesi şeklinde açıklanabilir. Bu sebeple plazma altlık etkileşimini etkileyen faktörleri, O<sub>2</sub> basıncı, altlık sıcaklığı, altlık konumu ve hedef altlık arası mesafe olarak özetleyebiliriz. O<sub>2</sub> basıncı plazma ve altlık arasındaki ortamda iyon sayısını belirleyen faktördür. Yüksek basınçta ortamdaki atom sayısı artacak ve esnek olmayan çarpışma sayısı artarak, buharlaştırılan materyalin daha fazla enerji kaybetmesine dolayısı ile plüm büyüklüğünün baskılanmasına sebep olacaktır. Ters durumda düşük basınçta plüm boyu büyüyecek ve hedef-altlık arası mesafe uygun uzaklıkta değilse, altlık yüzeyine yüksek enerjili parçacıklar çarpacaktır. Bu durum film kalitesi açısından istenen bir olay değildir. Altlık sıcaklığı, epitaksiyel olarak büyütülmek istenen malzemenin cinsine bağlı olmalıdır. Zira plazmada tamamen iyonize olarak buharlaşan malzemeler, altlık yüzeyinde belli bir sıcaklıkta uygun termal bir denge bulamazlarsa ortamdaki kaçacak ya da yüzeyde istenmeyen fazlara sebep olacaktır. Altlık konumu, plazma-altlık etkileşiminde plüm kinematiki ile ilişkili bir biçimde tercih edilmesi gereken bir parametredir.



## 2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR

Viret ve arkadaşları (1993) tek hedefli lazer aşındırma yöntemi ile BSCCO ince filmler ürettiler. Kaplama sonrasında tavlama işleminin bu filmlerde oldukça tanecikli bir yapıya nede olduğunu söylediler. Bu yolla üretilen  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  (2212) filmlerin sıcaklık bağımlı dirençlerinin 80-85 K civarlarında düşmeye başladığını buldular.  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$  (2223) ince filmlerinin çok dar bir tavlama sıcaklığı aralığında elde edilebildiğini ve tüm bu filmlerin (2212) düşük sıcaklık fazı içerdiğini, bu sebeple filmlerin 110 ve 80 K de iki tane direnç düşüşü gösterdiğini tespit ettiler. Tüm ex-situ tavlama yapılan filmlerin tanecikli yapısından dolayı direnç grafiklerinde kuyruk davranışı gösterdiğini buldular. In-situ tavlama ile üretilen filmlerin gayet düzgün yüzeye sahip, fakat zayıf süperiletken özellikler gösterdiğini söylemiştir. Bu filmlerin direnç ölçümlerinde, daha geniş geçiş aralığına sahip olmasına rağmen kuyruk davranışı göstermediği bildirilmiştir. Bu davranışın yığılma esnasında oksijenin atmosferinin homojen olmamasından kaynaklanabileceğini önerdiler. In-situ ile hazırlanan (2223) filmlerinde faz oranının başarılı bir şekilde elde edildiğini fakat filmleri çok geniş geçiş aralıklarına sahip olduğunu, bu sebeple kaplama sonrasında tavlama işleminin faz formasyonları için gerekli olduğunu bildirdiler.

Polyakov ve arkadaşları (1996) BSCCO tabanlı Josephson eklemleri hazırlamak için yaptıkları çalışmalarında, MgO ve  $\text{CeO}_2$  ile tamponlanmış  $\text{SrTiO}_3$  altlıkları üzerine, lazer aşındırma tekniği ile büyüttükleri  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$  (BSCCO-2212) filmlerini, x-ışını kırınım ölçümü yöntemiyle araştırdılar. Analiz sonuçlarına göre, üretilen filmlerin neredeyse tek kristal olduğunu ve  $\text{CeO}_2$  katman kaplamasının BSCCO-2212 mikro yapısını iyileştirdiğini ayrıca hafif ortorombik örgü kusurlarına sebep olduğunu gösterdiler.  $\text{CeO}_2/\text{MgO}$  katmanları ( $\leq 10$  nm) üzerine büyütülen filmler için  $0^\circ$  ve  $45^\circ$  derecede yönelmiş domainler gözlemlenildi. Filmlerin a- b örgü parametrelerini hesapladılar ve kritik akım yoğunluğu  $J_c$  değerlerinin filmlerin yapısal kaliteleriyle uyumlu olduğunu tespit ettiler.

Seidel ve arkadaşları (1997) c-yönünde Josephson etkisi gösteren farklı anizotropik yüksek sıcaklık süperiletkenlerinden, mesa yapıları üreterek bu yapıların



dış sıcaklık, manyetik alan ve mikrodalga ışıma bağımlılığını araştırdılar. Kritik akım yoğunluğunun, manyetik ve mikrodalga alanlarına açık bir şekilde bağımlı olduğunu bildirdiler.

Brencht ve arkadaşları (1997) ters silindirik manyetron püskürtme tekniği ile SrTiO<sub>3</sub> (100) altlıklar üzerine Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub> filmleri kapladılar. Yaptıkları yapısal çalışmalarda, altlık yüzeyine dik c-ekseninde yönelen ve (100) ile (010) yönlerine paralel c-ekseninde yönelen yapılar gözlemlenildi. Her iki büyüme yönelimini (110) düzleminde hizalamayı başardılar.

Yang ve Lieber (1997) MgO nanorodlar ile yüzey yoğunlukları  $2 \times 10^{10}/\text{cm}^2$  'yi bulan altlıklar üzerine Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub> , Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>z</sub> ve Tl<sub>2</sub>Ba<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>z</sub> yüksek sıcaklık süperiletkenlerini, atımlı lazer yığılım tekniği ile kaplayarak, sütun-kusur oluşumlarını araştırdılar. Mikroyapısal analizlerde, MgO nano çubukların, yüksek sıcaklık süperiletkenleri ile sütun-kusur yapıları gösterdiğini tespit ettiler. MgO nano çubuk ile HTS bileşik yapısı için transport ölçümleri yaparak, kritik akım yoğunluğu J<sub>c</sub> değerinin, yüksek sıcaklık ve manyetik alanlarda referans numunesi ile karşılaştırdıklarında kayda değer bir şekilde arttığını gözlemlenildi.

Pfuch ve arkadaşları (1997) 75 K' e kadar çalışacak d.c. SQUID için PLD tekniği ile BSCCO-2212 tabanlı Josephson eklemlerini, SrTiO<sub>3</sub> altlıklar üzerine hazırlayarak, özelliklerini incelediler. Bikristal SQUID için 30 ile 75 K arasında yaptıkları transfer foksionunun, sıcaklık bağımlılığı ölçümleri ile manyetik nüfuz derinliğini saptadılar. BSCCO-2212 ve TBCCO-2212 ince filmlerini kullanarak 50 nm yüksekliğinde ve 3x3 μm<sup>2</sup> genişliğinde Josephson eklemleri üreterek, bu eklemler üzerinde, manyetik alan ve mikrodalga ışınım etkilerini araştırdılar.

Marecha ve arkadaşları (1998) atımlı lazer yığılım tekniği ile MgO altlıklar üzerine büyüttükleri Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>y</sub> (2212) epitaksiyel filmleri, atomik kuvvet mikroskobu ile incelediler. Araştırmalarında, iki boyutlu kristal büyüme baskın olmak üzere üç boyutlu büyüme ile iki farklı kristal büyüme mekanizması tespit ettiler ve Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>y</sub> ince filmlerinin birim hücre-birim hücre şeklinde büyüdüğünü gözlemlenildi. X-ışını kırınım ölçümleri ile üç farklı epitaksiyel durum gözlemlenildi. İki tanesi MgO (100) üzerine (2212) (100) ve MgO (110) üzerine (2212) (100) diğer durum ise MgO (100) üzerine 12.5 derecelik sapan (2212)

durumudur.  $12.5^{\circ}$  derecelik yönelimlerin MgO altlıklar üzerine PLD tekniği ile kaplanan  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$  ince filmlerin karakteristiğine sahip olduğunu tespit ettiler.

Bauerle (1998) yüksek kalitede,  $\text{REBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ ,  $\text{REBaSrCu}_3\text{O}_7$  ve  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  (Bi-2212) yüksek sıcaklık süperiletken ince filmlerini  $\text{SrTiO}_3$  (001) ve MgO (001) altlıklar üzerine büyötmek için atımlı lazer yığılma tekniğini kullandı. Araştırmasında üretilen ince filmlerin, örgü parametrelerinin, yüzey morfolojisinin, elektriksel özelliklerinin ve geçiş sıcaklığının güçlü bir şekilde lazer parametreleri, arka plan gaz tipi ve basıncına bağımlı olduğunu buldu. Ayrıca bazı filmlerin tek kristale yakın karakteristikler gösterdiğini bildirdi.

Yoshida ve arkadaşları (1999)  $\text{Bi}_2\text{La}_x\text{Ca}_{3-x}\text{Cu}_2\text{O}_z$  ( $0.2 \leq x \leq 0.7$ ) ince filmlerini, MgO (100) altlıkları üzerine büyötmek için PLD tekniğini kullandılar. Katıhal tepkime reaksiyonu ile  $x=0.5$  konsantrasyonu için stokiyometrik kompozisyonu elde edemediler.  $x=0.2$  numunesinin en yüksek diyamanyetik geçiş sıcaklığına ( $T_c=78$  K) sahip olduğunu ve La konsantrasyonunun artmasıyla birlikte örneklerin, süperiletken davranıştan yalıtkan duruma geçtiğini rapor ettiler.

Asana ve arkadaşları (1999) PLD tekniği kullanarak üretilen Bi tabanlı yüksek sıcaklık süperiletken ince filmlerin zayıf süperiletkenlik özellikleri göstermesinden dolayı bu filmleri Bi-Sr-Cu-O ve Ca-Cu-O hedefleri kullanarak blok-blok kaplamışlardır. Çalışmalarında, Bi-2212 ve Bi-2223 tabanlı filmleri tek faz olarak üretmeyi başardılar fakat Bi-2223 fazını üretmenin, Bi-2212 fazından zor olduğunu rapor ettiler. Ürettikleri Bi-2212 fazı için en yüksek  $T_c=69.2$  K ve Bi-2223 fazı için en yüksek  $T_c=78.5$  K olduğunu buldular.  $820^{\circ}\text{C}$  ve  $850^{\circ}\text{C}$  yığılma sıcaklıklarındaki yüksek geçiş sıcaklıklarına rağmen maksimum kristallenmenin  $750^{\circ}\text{C}$  civarında gerçekleştiğini tespit etmişlerdir.

Otsuka ve Ohbayashi (1999) çoklu-hedef püskürtme tekniği ile MgO (100) altlıkları üzerine kapladıkları Bi-2212 filmlerinin yüzey dirençlerini araştırdılar. Y-Ba-Cu-O gibi birçok yüksek sıcaklık süperiletkeninin zayıf-bağ modeli ile uyumlu olmasına rağmen, yüzey direncinin, tanecik büyüklüğü ve kritik akım yoğunluğuna bağılı olmadığını yani Bi-Sr-Ca-Cu-O süperiletkenleri için tanecik sınırlarında iletim kayıplarının düşük olduğunu bildirmişlerdir.

Zahner ve arkadaşları (1999) süperiletken  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmleri ( $T_c \approx 85$  K),  $\text{SrTiO}_3$  altlıklar üzerine büyütme için atımlı lazer yığılma tekniğini uyguladılar ve SEM, XRD ile iletkenlik ölçümleri yaptılar. Kaplanan filmlerin tek kristal yüzey normali ile yaklaşık  $\alpha \approx 15^\circ$  e kadar eğimli düzlemler üzerine büyüdüğünü tespit ettiler.  $200^\circ\text{C}$  ile  $400^\circ\text{C}$  arasında yapılan iletkenlik ölçümleriyle izotermal oksijen difüzyonunu gözlemladiler ve düzlemde difüzyon sabiti  $D_{ab}$ ' yi belirlediler.

Uchiyama ve Wang (2000)  $\text{MgO}(100)$  üzerine, excimer lazer ışını ve Nd:YAG atımlı lazerin 4. harmoniğini kullanarak aşındırdıkları  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+\delta}$  (2201) ince filmleri ürettiler. Bi-2201 hedef malzeme kullandıkları çalışmalarında üretilen filmlerin yüksek kristalizasyon gösterdiklerini 4 K civarında direnç düşüşü ve bazı filmlerin yarıiletken davranış gösterdiklerini tespit ettiler. Excimer lazerle yığılma filmlerin ise 10 K de direnç düşüşü başladığını bildirdiler. Bi-2201 filmlerdeki bu farkın aşındırma süresince aktifleştirilmiş oksijen varlığı ile ilgili olduğunu öne sürdüler.

Ishii ve Hatano (2000)  $\text{MgO}(001)$  altlıklar üzerine  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  süperiletken ince filmleri, külçe malzeme seviyesinde kritik geçiş sıcaklığı ve düzgün bir yüzey ile üretmek için atımlı lazer yığılma tekniği ile sonrasında tavlama yöntemini kullandılar. Filmlerin düşük altlık sıcaklıklarında, sadece  $(100)2212// (100)\text{MgO}$  yapılanması gösterdiğini tespit etmişlerdir. Büyütülen filmlerin, birim hücre seviyesinde düzgün yüzeylere sahip olmasına rağmen filmlerin kritik geçiş sıcaklıklarının, külçe malzemelerden küçük değerlere sahip olduğunu ve tavlama sonrasında düzlem üzerinde  $45^\circ$  lik yönelime sahip olan (2212) taneciklerinin büyüdüğünü gözlemladiler. Tavlama sonrası filmlerin yüzey düzgünlüğünü kaybetmeden 75-80 K civarında kritik geçiş sıcaklığı değerlerine sahip olduğunu ve bu iyileşmeye düzlem üzerinde tekrar kristalizasyon gerçekleştirmelerinin sebep olduğunu bildirdiler.

Yoshida ve arkadaşları (2000) Bi-2212 tabanlı  $\text{Bi}_2\text{Ln}_{0.3}\text{Ca}_{2.7}\text{Cu}_2\text{O}_z$  (Ln= Pr, Nd, Sm, Eu ve Gd) ince filmlerini,  $\text{MgO}(100)$  altlıklar üzerine kaplamak için PLD tekniğini kullandılar. Üretilen filmlerin yarı kararlı olduğunu ve elde ettikleri en

yüksek sıfır direnç sıcaklığının  $T_c = 57$  K olduğunu gözlemiştir. XPS ölçümlerinde, Pr elementinin valans değerliliğinin +3 olduğunu bildirdiler.

Lang ve arkadaşları (2001) girdaplar üzerindeki Lorenz ve çivileme kuvveti denge ilişkisini gözlemleyebilecekleri bazı yüksek sıcaklık süperiletkenleri için atımlı akım yoğunluğu ile sonuçlanan Hall etkisi ölçümleri yapmışlardır.  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  ve  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_x$  filmleri için sıcaklık karakteristiklerinin, akım yoğunluğu bağımlılığının zayıf olduğunu ve katkısız  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_x$  filmlerin, yüksek akım yoğunluğu ile çivilemenin azaldığı durumlarda, tersinir Hall etkisi göstermediğini ama Hall iletkenliğine negatif yönde bir katkı oluştuğunu bildirdiler.

Rössler ve arkadaşları (2001) c-ekseninde yönlendirilmiş  $SrTiO_3$  (001) ve benzer MgO altlıklar üzerine,  $Bi_2Sr_2Ca_{n-1}Cu_nO_{2(n+2)+\delta}$  ( $n=1, 2, 3$ ) ince filmleri üretmek için atımlı lazer yığılma tekniğini kullandılar. Tek fazlı  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$  ince filmlerinin, yüzey morfolojisinin, yapısının, lazer ve tavlama koşullarına güçlü bir şekilde bağlı olduğunu bildirdiler.  $SrTiO_3$  (001) altlıklar üzerine c- ekseninde büyütülmüş Bi-2212 filmleri için 60 K' de kritik akım yoğunluğu değerini  $J_c = 2 \times 10^6$  A/cm<sup>2</sup> ve kritik geçiş sıcaklığını  $T_c = 82$  K olarak bulmuşlardır.

Wada ve arkadaşları (2002) dört farklı kalınlığa sahip Bi-2212 ince film ile iki farklı Bi-2212 tek kristal üzerinde, c-eksenine paralel alanda D.C. manyetizasyon ölçümleri yapmışlardır. Tersinmez alanın (kalıcı alanın) benzer sıcaklıklarda, kalınlığın azalması ile düştüğünü gözlemleyerek bu sonucun, araştırılan bu iki boyutlu süperiletkenlerin kalınlığından daha uzun boyutlar boyunca akı çizgilerinin oldukça güçlü bir şekilde çiftlenmesinden kaynaklanabileceğini önermişlerdir. Kalınlık bağımlılığını akı sürüklenme-akma modeli ile teorik olarak açıklamışlardır. İnce film ve tek kristal arasındaki, kritik akım özelliklerini analiz ederek, akı çizgilerinin çiftlenimi için kritik bir kalınlık değeri bulmuşlardır.

Murakami ve arkadaşları (2002) c-ekseninde yönlendirilmiş  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$  ince filmi için optik karşılık ölçümleri yaptılar. Uyarılmış elektromanyetik dalga ışınımı özelliklerini araştırmak için, süperiletken durumdaki papyon anten şeklindeki BSCCO tabanlı köprü üzerinde, 0.12 THz merkez frekans civarında ölçümler yaptılar. Maksimum ~0.5 THz frekansının, YBCO süperiletkende gözlenen 2 THz frekansından daha düşük olduğunu ayrıca BSCCO tabanlı malzemede lazerle

uyarılmış taşıyıcıların, YBCO tabanlı malzemeden birkaç kat fazla olduğunu tespit ettiler. Bu durumun, BSCCO malzemede dengesiz süperiletken durumların sonucu olduğunu bildirdiler.

Ishii ve arkadaşları (2002) ultra düzgün  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  (2212) ince filmleri geliştirmek için atımlı lazer aşındırma ve sonrasında tavlama tekniğini kullandılar. Ürettikleri filmler üzerinde, XRD, AFM ve sıcaklık bağımlı manyetizasyon ölçümleri yaptılar. MgO altlık ve (2212) filmlerinin düzlem ilişkilerinin, tavlama işleminden sonra değiştiğini tespit ettiler. X-ışını analizlerinde, düşük altlık sıcaklıklarında, kaplan filmlerde  $[100]_{2212}/[110]_{\text{MgO}}$  epitaksiyel ilişkisini gözlemlədiler. Tavlama sonrasında (2212) filmlerinin a-b düzleminin,  $[100]_{\text{MgO}}$  altlık ekseninde  $\pm 12^\circ$  döndüğünü tespit ettiler. Atomik kuvvet mikroskop ölçümlerinde, (2212) filmlerinin yüzey morfolojisinin, temiz bir basamak-iz yapısına sahip olduğunu ve bitişik izler arasındaki yüksekliğin, (2212) fazının c-ekseninin yarısına eşit olduğunu ayrıca düz yüzeylerin genişliğinin 500-1000 nm civarında olduğunu buldular. Manyetizasyon ölçümlerinde, süperiletken geçiş sıcaklığının yaklaşık 80 K olduğunu bildirdiler.

Kaneko ve arkadaşları (2002) Nd-YAG atımlı lazer kullanarak, MgO (100) altlıklar üzerine  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  (Bi-2212) süperiletkenini epitaksiyel olarak büyüttüler. Bi-2212 filmlerini kaplamak için 10 Hz ve 2 Hz atım frekanslarını kullandılar. Pülüm eksenin, lazer ışını isabet açısındaki değişim ile ilişkili olduğunu tespit ettiler. 2 Hz frekansında, Bi-2212 filmlerinin epitaksiyel olarak büyüttüklerini bildirdiler.

Kaide ve Kambe (2002)  $\text{SrTiO}_3$  altlıklar üzerine, lazer aşındırma tekniğini kullanarak [001] yönelimli  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Y}_x\text{Cu}_2\text{O}_y$  ile kapladılar ve sonrasında üzerine  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$  filmlerini ürettiler. Aşındırma süresince, optimum oksijen basıncının 0.3 Pa olduğunu buldular. Büyütülen  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$  filmlerinin daha küçük c-ekseni uzunluğuna ve  $\text{SrTiO}_3$  x-ışını pikinden daha büyük yarı genişliğe sahip olduğunu bu durumun,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$  ile  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Y}_x\text{Cu}_2\text{O}_y$  tabakalarının karışmış olmasından ve bir tabaka gradyenti oluşmasından kaynaklanabileceğini önerdiler.

Blaugher ve arkadaşları (2003) PIT tekniği ile üretilen Bi-2223 tabanlı yüksek sıcaklık süperiletken şeritlerin yeterli uzunluklarda elde edilmesiyle, elektrik

gücü elemanlarında kullanılabileceğini ve bu ürünlerin ticarileşerek, prototip üretiminin, daha ucuz yüksek sıcaklık süperiletken malzeme üretimine bağlı olduğunu bildirdiler. Çalışmalarında Bi-2223 süperiletken ile bu malzemeye alternatif olan Bi-2212 süperiletkenlerinin özelliklerini, bazı önceki çalışmaları kullanarak tartıştılar.

Yavuz ve arkadaşları (2003) atımlı lazer aşındırma tekniğini kullanarak, MgO altlıklar üzerine ürettikleri BSCCO-2212 ince filmleri için, aşındırma ve tavlama şartları etkilerini rapor ettiler.

Kume ve arkadaşları (2004) PLD tekniği ve sonrasında tavlama işlemi ile MgO altlık üzerine  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  (Bi-2212) ince filmlerini, 400-630 °C altlık sıcaklığında ve 100 mTorr oksijen basıncında büyüttüler. Ürettikleri filmlerin kalınlığının yaklaşık 200 nm olduğunu ve 430 °C altındaki sıcaklıklarda kaplanan filmlerin amorf yapıda olduğunu tespit ettiler. 550 °C üzerinde kaplanan filmlerin, c-ekseninde yönelimli olarak kristalize olduğunu, ayrıca sıcaklık artışı ile Bi konsantrasyonunun düştüğünü gözlemlediler. Kaplama sonrasında, tavlama işlemi 860-880 °C aralığında, argon ile oksijen gazı karışımında (Ar:O<sub>2</sub>= 93:7, 1 atm, 0.21 litre/dk ) 3 saat süresince uyguladılar. Bi konsantrasyonunun, 870 °C tavlama sıcaklığına kadar, sıcaklık artışı ile düşmediğini buldular. Ürettikleri filmlerde 78 K' de süperiletken geçiş gözlemlediler.

Baştürk (2005) 600-840 °C aralığında tavlama işlemi ile birlikte MgO tek kristaller üzerine, senkronize Bi, Cu, CaF<sub>2</sub> ve SrF<sub>2</sub> çökeltilmeleriyle,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ince filmleri üretti. Florini yapıdan uzaklaştırmak için öncelikle su ve oksijen, sonrasında kuru oksijen ortamında filmleri tavladı. XRD sonuçlarına göre, altlık yüzeyine dik c-ekseni doğrultusunda kristal büyüme gözlemledi. Farklı kaynaklardan, yapılardaki elementlerin buharlaştırılması ile sıvı azot sıcaklığı üzerinde kritik sıcaklığa sahip olan filmler için, 77-300 K sıcaklık aralığında DC direnç ölçümleri yaparak süperiletken geçiş sıcaklığının 79 K olduğunu bildirdi.

Imaizumi ve arkadaşları (2005)  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  (Bi-2212) ve bilinen süperiletken elektrot (Nb, Pb veya Pb-In) tabanlı eğimli köprü tipi eklemelerin üretim aşamalarını araştırdılar. Ürettikleri bir eklemde Bi-2212 ve Nb (ya da Pb, Pb-In) arasına altın film kapladılar. Filmlerin çoğunu PLD tekniği ile hazırladılar. Tavlama

şartlarını Bi-2212 tabanlı eklem üretimi için optimize ettiler. 300-400 °C arasında ısıtılarak altın (Au) ile kaplanan filmlerin 4.2 K' de  $1\mu\Omega\text{cm}$  direnç gösterdiğini tespit ettiler. Bi-2212/Au eklemlerinin homojen bir iletkenliğe sahip olduğunu bildirdiler.

Iwasaki ve arkadaşları (2005) metal-organik ayrıştırma (MOD) tekniğini kullanarak  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x(\text{BSCCO})/\text{SrTiO}_3(\text{STO})/\text{BSCCO}$  üçlü yapıdaki filmleri ürettiler. Bu çalışmalarında, tavlama şartlarının kaplanan filmler üzerindeki etkilerini gözlemlediler. STO(001) altlık üzerine kaplanan, 100 % oksijen ile 2 saat 870 °C tavlanan ve sonrasında 10% oksijen ile 885 °C' de 2 saat tavlanan filmlerinin 84 K' de kritik sıcaklığa sahip olduğunu buldular. Epitaksiyel olarak büyütülen BSCCO/STO/BSCCO filminin, 77 K kritik sıcaklığa sahip olduğunu bildirdiler.

Endo ve arkadaşları (2006) yüksek kalitede oksit ince filmler üretmek için, atomik cinslerin, doyumluk ve taşınmaları üzerine çalışmalar yaptılar. MOCVD metodunu kullanarak, açık-kapalı buhar kaplama döngülerini içeren, sabit sıcaklık ve atmosferik ortamda, HTS ince filmler kapladılar. MOCVD metodunun PLD tekniği gibi ada-tipi büyümeleri önlediğini tespit ettiler. Bu yaklaşımlarında, MOCVD metodu ile yüksek kalitede, düz yüzeyli ve yarı c-ekseninden daha az pürüzlü Bi-2223 ince filmleri ürettiler. Hazırladıkları filmler ile Bi-2223 ve Bi-2212/Bi-2223 SIS-tipi Josephson eklemleri ürettiler.

Manahan ve Sarmago (2006) kombine çökerti-kaplama ile sıvı faz sinterleme ve tavlama teknikleri ile MgO altlıklar üzerine, yüksek oranda c-ekseninde yönelimli  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  (Bi-2212) ince filmleri büyüttüler. Isıl işlem esnasında erime noktası altında, kısmi eritme ve sonrasında hızlı soğutma işlemleri kullandılar. Taramalı elektron mikroskobu ölçümlerinde, filmlerin pürüzsüz yüzeylere sahip olduğunu ve tanecik sınırlarının gözlenemediğini tespit ettiler. Ürettikleri filmlerin 67-81 K aralığında kritik sıcaklıklara sahip olduğunu bildirdiler.

Cancellieri ve arkadaşları (2007) farklı tavlama koşulları altında, PLD tekniği ile büyütülen La katkılı Bi-2201 ince filmleri için, XRD, XPS ve AC alınganlık ölçümleri yaptılar. La katyonlarının, Sr bölgesine taşınmasıyla, kristal uyumunu geliştirdiğini, bu durumun istenen hole katkısının meydana geldiğini açıkladılar. Argon ortamındaki kısa süreli tavlamanın, BiO tabakaları arasındaki oksijenleri yapıdan uzaklaştırarak, efektif hole katkısını iyileştirdiğini tespit ettiler.

Çalışmalarında, Kritik geçiş sıcaklığını arttırdıklarını ve uzun tavlama işleminin, tavlama esnasında Bi kaybına yol açarak, Bi-1201 fazına yol açtığını bildirdiler.

Benzi ve arkadaşları (2007) hazırladıkları basit düzenekler yardımıyla florinsiz metal-organik bileşiklerini kullanarak, Metal-organik kaplama tekniği ile farklı altlıklar üzerine  $YBa_2Cu_3O_x$  (Y-123) ve  $Bi_2Sr_2Ca_1Cu_2O_x$  (Bi-2212) ince filmlerini hazırladılar. Hazırladıkları filmleri hava ortamında hızlıca erittiler ve Y-123 filmini oksijen ortamında, Bi-2212 filmini hava ortamında tavladılar. Ürettikleri filmler için, XRD, R(T) ve AC alınganlık ölçümleri yaptılar. Mikro yapı ve son katyonik formasyon analizi için SEM ve EDS ölçümleri yaptılar. Bi-2212 filmleri için, kritik geçiş sıcaklığını  $T_{c(onset)} = 90$  K olarak buldular.

Mua ve arkadaşları (2008) PLD tekniği ile MgO (100) tek kristal altlıklar üzerine ürettikleri Ag katkılı Bi-2212 ince filmlerini  $845$  °C' de farklı sürelerde tavladılar. X-ışını kırınım ölçümleri ile tüm filmlerin c-ekseninde yöneldiğini, direnç ölçümlerinde,  $T_{c(onset)}$  değerini  $95$  K,  $T_{c(zer0)}$  değerini  $75$  K olarak tespit ettiler. Manyetik ölçümler sonucunda,  $5$  K' de ve  $0.5$  Tesla alan altında katkısız film için kritik akım yoğunluğunu  $J_c = 6.3 \times 10^6$  Acm<sup>-2</sup> olarak hesapladılar. Katkısız filmlerle karşılaştırıldığında, gümüş katkısının, daha keskin süperiletken geçiş gösterdiğini ve zayıf bağları geliştirdiğini, dolayısıyla kritik akım yoğunluğunu iyileştirdiğini buldular. Gümüş katkılı filmler arasında, %5 katkılı filmin,  $5$  K' de  $0.5$  Tesla alanda  $J_c = 7.5 \times 10^6$  Acm<sup>-2</sup> değeriyle en büyük kritik akım yoğunluğu gösterdiğini ve katkısız filmin kritik sıcaklık civarında çift Hall etkisi değişikliği verdiğini bildirdiler.

Kaneko ve arkadaşları (2008)  $Bi_2Sr_2Ca_1Cu_2O_x$  (Bi-2212) filmleri üzerinde, x-ışını çift taraflı uzay haritalandırması (XRSM) ölçümleriyle, süper hücre (SC) olarak anılan yapısal modülasyondan kaynaklanan, uydu piklerinin, asimetrik yoğunluk dağılımlarını inceleyerek, birim hücrelerin nasıl süper hücrelere bozunduğunu araştırdılar. Basit kristal modelini kullanarak yaptıkları simülasyon sonuçlarını, PLD tekniği ile hazırladıkları ince filmlerin deneysel sonuçlarıyla karşılaştırdılar.

Jannah ve arkadaşları (2009) Nd-YAG atımlı lazer aşındırma tekniği ile MgO (100) altlıklar üzerine Bi(Pb)-Sr-Ca-Cu-O ince filmlerini ürettiler. XRD sonuçlarına göre, kaplanan BSCCO filmlerinin amorf yapıya sahip olduğunu, yüksek sıcaklıkta oksijen ortamında tavlama işleminden sonra ise BSCCO (Bi-2212) epitaksiyel



büyüme gösterdiğini bildirdiler. Tavlama sonrasında ortaya çıkan sonucu, film morfolojisinin ve oksijen konsantrasyonunun iyileşmesi ve filmlerin faz formasyonunun değişmesi ile açıkladılar. X-ışını kırınım ölçümlerinde, 850 °C' de 1 saat tavlanan filmin c- ekseninde yönlendiğini ve 860 °C' de tavlanan filmin ana faz olarak düşük sıcaklık fazını içerdiğini gözlemlediler. Tavlama sıcaklığının 870 °C ve 880 °C' ye yükseltilmesiyle düşük sıcaklık faz yoğunluğunun arttığını ve yarı iletken faz gözlemlendiğini tespit ettiler. 870 °C' de tavlanan filmin en yüksek kritik sıcaklığa sahip olduğunu ve yüksek kalitede ince filmler üretmek için kaplama sonrasında tavlama işleminin gerekli olduğunu bildirdiler.

Haruta ve arkadaşları (2009) atımlı lazer kaplama tekniği ile 500 °C altlık sıcaklığında kapladıkları  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmleri ile Josephson eklemleri hazırladılar. Ürettikleri filmleri 884-890 °C arasında tavladılar ve stokiometrik kompozisyonu başarılı bir şekilde elde ettiler. 888 °C' de tavlanan filmin büyük kristal taneciklere sahip olduğunu, elde edilen bu düz yüzeylerin birkaç 10 µm uzunluk ile standart Josephson eklem mesa ebatlarından büyük olduğunu tespit ettiler. Ürettikleri mesalar için 25 K' de I-V ölçümleri yaptılar.

Jannah ve arkadaşları (2009) PLD tekniği ile Bi-2223 hedef kullanarak, MgO(100) altlıklar üzerine Bi(Pb)-Sr-Ca-Cu-O ince filmlerini, c-ekseninde epitaksiyel olarak büyüttüler. Kaplama esnasında altlık sıcaklığının 500 °C ve oksijen basıncının yaklaşık  $2 \times 10^{-3}$  mbar olduğunu bildirdiler. Ürettikleri filmleri daha sonra oksijen ortamında tavladılar ve bu filmler için, XRD, SEM, AFM ve dört kontak direnç ölçümleri yaptılar. Yüksek sıcaklık tavlama işleminin, süperiletken geçiş için önemli bir parametre olduğunu bildirdiler.

Vero ve arkadaşları (2010) 1064 nm kızılötesi dalga boylu atımlı lazer kullanarak MgO (100) altlıklar üzerine,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  (Bi-2212) ince filmlerini büyüttüler. Hedeften aşındırılan malzemenin, altlık yüzeyine küresel biçimde yapıştığını, tavlama sonrasında ise düzgün, homojen ve yüksek oranda c-ekseninde yönelmiş bir yapı elde ettiklerini, ayrıca aşındırıcı olarak kızılötesi lazer kullanmanın, hedef malzemedeki stokiometriyi film üzerinde sağladığını bildirdiler.

Haruta ve Sakai (2010) gümüş katmanlarıyla kaplanmış,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  (Bi-2212) ince filmlerini, PLD tekniği ile büyüttüler. Gümüş kaplı taneciklerin 60-90

µm boyutlarında olduğunu ve bu ölçülerin bilinen filmlerdekenden üç kat büyük olduğunu bildirdiler. Gümüş kaplı filmler için optimum tavlama sıcaklığının, kaplanmamış filmlere göre 15 °C düşük olduğunu tespit ettiler. Bu tekniği, Josephson eklemi üretmek için kullandıklarını ve ürettikleri mesa yapısını, 60 nm incelikte gümüş katmana sahip 876 °C' de tavllanmış Bi-2212 filmleriyle hazırladıklarını bildirdiler. Mesa üzerinde I-V ölçümlerinde, temiz çoklu dallanmalar gözlemlenildi

Vero ve arkadaşları (2010) kızılötesi (1064 nm) atımlı lazer kullanarak MgO (100) altlıklar üzerine,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Y}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$  (Bi-22Y2)( $0.2 \leq x \leq 0.49$ ) ince filmleri kapladılar ve sonrasında filmlere ısıl işlem uyguladılar. Kaplanan filmlerin yüzeyde küresel şekillere sahip olduğunu, buna rağmen hedef malzemedeki sitokiyometrinin korunduğunu tespit ettiler. Isıl işlem sonrasında filmlerin düzgün yüzeylere sahip olduğunu ve tanecik sınırlarının Y katkısı ile daha da belirginleştiğini gözlemlenildi. Filmlerin yüksek oranda c-ekseninde yönelmiş olduğunu buldular. Direnç ölçümlerinde, süperiletken geçiş sıcaklığının Y katkısı ile 85 K' den 90.5 K' e yükseldiğini, sonrasında katkının daha fazla artmasıyla 87 K' ne düştüğünü belirlediler. %28 Y katkılı film için kritik akım yoğunluğu değerini, 70 K' de 723.14 A/cm<sup>2</sup> olduğunu bildirdiler.

Elsabawy ve Newehy (2011) Nd-lazer kullanarak, üç farklı enerji yoğunluğunda (15W/cm<sup>2</sup>, 60 dk, 30W/cm<sup>2</sup>, 120 dk, 45W/cm<sup>2</sup>, 240 dk) lütesyum ve toryum katkılı  $\text{Bi}_{2-x-y}\text{Lu}_x\text{Th}_y\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_8$  ince filmleri hazırladılar. Lu ve Th katkılı 2212-BSCCO filmlerin mikro yapısı, süperiletken ve yapısal özelliklerinin, enerji yoğunluğu bağımlılığını incelediler. Her enerji yoğunluğu için yüzey katmanlarındaki değişimi AFM ve SEM ölçümleri ile araştırdılar. Ayrıca üretilen filmler için yüzey ve külçe direnci ölçümleri yaptılar.

Yu ve arkadaşları (2011) sol-gel döner boyama tekniği ile SrTiO<sub>3</sub> (100) altlıklar üzerine  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  (Bi-2212) ince filmleri kapladılar. Ürettikleri filmler için, faz formasyonu ve yüzey morfolojisinin, ısıl işlem şartlarına ve boyama süresine bağımlılığını, termal analiz, optik mikroskop, x-ışını kırınımı ve taramalı elektron mikroskopu ölçümleri ile araştırdılar. 820 ile 840 °C tavlama sıcaklığı arasında karışık fazlar oluştuğunu ve 830 °C' de 3 saat tavlama sonrasında Bi-2212 tek fazı oluştuğunu tespit ettiler. C-ekseninde epitaksiyel büyütülen filmlerin, 600 °C

kurutma sıcaklığında, 5 defa boyama işlemiyle, düzgün yüzeylere sahip olduğunu bildirdiler.

Vitug ve arkadaşları (2012) PLD tekniği le Y (itriyum) katkılı,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Y}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ( $x=0, 0.30, 0.49$ ) filmleri MgO (100) altlıklar üzerine büyüttüler. Zaman bağımlı optik emisyon spektroskopisi ile plazma plümünün, nötr ve iyon içeriğini incelediler. SEM ölçümlerinde, altlık yüzeyinde, istenen sitokiyometrik yığılım oluştuğunu, bunun kızılötesi PLD tekniğinin tipik özelliği olduğunu bildirdiler.

Blanca ve arkadaşları (2012) kızılötesi lazer kaplama tekniği ile üretilen Bi-2212 filmler için Y (itriyum) katkısının, akı çivilenmesi özelliklerine etkisini, manyeto-direnç ölçümleri ile incelediler. Ürettikleri filmler için, maksimum manyeto-direnç  $\text{MR}_{\text{max}}$  ve kritik akım yoğunluğu  $J_c$  değerlerini buldular. Elde ettikleri sonuçlara göre, Ca yerine Y katkısının, vorteks hareketini önemli ölçüde baskıladığını tespit ettiler. %25 Y katkılı malzemede, 70 K' de, en küçük  $\text{MR}_{\text{max}}$  ve  $J_c$  değerinde %77 iyileşme kaydettiklerini bildirdiler.

### 3. MATERYAL VE METOD

#### 3.1. Giriş

Yüksek sıcaklık süperiletkende kullanılan malzeme hazırlama teknikleri, üretilen bu süperiletken malzemelerin yapısal ve süperiletken özelliklerini doğrudan etkilemektedir. Bu amaçla sentezlenen malzemenin ideal yapıda (geniş ve düzgün tabaka yapılı polikristal veya tek kristal) olması, yüksek saflık, tek faz ve üstün süperiletken özellikler göstermesi için değişik koşullar altında, çok farklı teknikler denenmektedir. Geleneksel sayılan katıhal tepkime ve eritme-dökme yöntemlerinin yanında son yıllarda, ıslak teknikler (wet routes) olarak adlandırılan sol-jel ve polimer yöntemleri de çok sık kullanılan yöntemlerdir. Bu bölümde, kullandığımız malzeme hazırlama yöntemleri ve koşulları hakkında bilgi verilecektir. Ayrıca kullandığımız ölçüm sistemleri tanıtılacaktır.

#### 3.2. Hedef Malzeme Hazırlama Teknikleri

##### 3.2.1. Katıhal Tepkime Yöntemi

Katı-hal tepkime yöntemi, kolaylığı ve ucuzluğu bakımından süperiletkenlik araştırma grupları tarafından en geniş kullanım alanına sahip olanıdır. Bu yöntemde bileşikler, oksit, karbonat, nitrat gibi başlangıç malzemeleri ile hazırlanır. Başlangıç malzemelerinin saflığı uygun sonuçlar elde edebilmek için şarttır. Başlangıç malzemeleri, uygun oranlarda karıştırılır ve ince tozlar haline getirebilmek için havanda öğütülür (amaç homojen bir karışım elde etmek ve parçacık boyutunu küçültmek). Öğütme işleminden sonra malzeme üzerindeki ilk ısıl işlem olan kalsinasyon aşamasına geçilir. Bu işlemin amacı öğütme sırasında toz karışım içerisine giren yabancı maddelerin, oksit ve karbondioksitlerin yüksek sıcaklık ile ayrışması ve esas yapıyı oluşturacak bazı ön fazların açığa çıkmasını sağlamaktır. Bu durum katıhal tepkime yönteminin temelini teşkil eder. Kalsinasyon için tozlar bir potaya konularak sıcaklığı ayarlanabilir fırın içerisinde belirli sıcaklıklarda belirli sürelerde tutulur. Daha sonra

fırından çıkarılan tozlar tekrar havan yardımıyla öğütülür (ara öğütme) ve bu işlem birkaç kez tekrarlanabilir. Kalsinasyondan sonra sinterleme öncesi şekil vermek ve tanecikler arası mesafeyi yakınlaştırarak iyonik difüzyon mekanizmasını kolaylaştırmak için toz malzeme preslenir. Presleme için BSCCO yapısında genellikle 300-500 N/mm<sup>2</sup> arası basınç uygulanarak tozlar tabletler haline getirilir. Son aşama ise süperiletken fazı elde etmek, karışımı oluşturan atomlar arası bağlantıları kuvvetlendirmek, polikristalleri meydana getirmek, süperiletkenliğe geçiş sıcaklığını yükseltmek ve bazı örgü kusurlarını ortadan kaldırmak için oksijen ya da hava ortamında yüksek sıcaklıkta belirli sürelerde tabletleri sinterlemektir. Bu sinterleme işlemi, numunenin sıcaklığının oda sıcaklığından belirlenen sıcaklığa kadar artırılması ve belirli süre bekledikten sonra yavaşça ya da hızla oda sıcaklığına soğutulmasını içermektedir. Katı-hal tepkime yönteminde ara öğütme (Sing, 1998), optimum tavlama süresi ve sıcaklığı (Asada vd., 1988) ile soğutma oranları çok önemlidir (Kase vd., 1990). Dikkat edilmesi gereken başka bir noktada kalsinasyon yapılan kabının doğru seçilmesidir. Çünkü yüksek sıcaklıklarda yapılan ısıtma işlemleri süresince kabın yapıldığı materyalden süperiletken malzeme içerisine sızmalar olabilir. Bu yöntemde numunenin öğütülme, kalsinasyon ve sinterleme süresi ve sıcaklığı süperiletken malzemenin cinsine göre değişmektedir. Kalsinasyon sıcaklığı BSCCO aileleri için 750 – 800 °C arasında olabilmektedir.

### 3.2.2. Polimer Yöntemi

Polimer yöntemi, Katıhal gibi geleneksel metotlar kadar yaygın olmayan ve son yıllarda geleneksel seramik süperiletken hazırlama yöntemlerine alternatif olarak ortaya çıkmış bir metottur. Bu yöntemde, başlangıç malzemeleri, sulu asetat ve ya nitrat şeklinde kullanılmaktadır. Hazırlanmak istenilen malzeme miktarına göre, başlangıç malzemeleri tartılır, sonra yeter miktarda asetik asit ve saf su karışımı ile birleştirilir. Elde edilen bu çözeltiye, uygun miktarda Polietilenin çözeltisi (PEI) eklenir. Tüm bu karışım ısıtıcı döner buharlaştırıcıya alınarak yaklaşık %80 hacmini kaybedene kadar bekletilir. Son durumda elde edilen çamurumsu yapı daha yüksek sıcaklıklarda yapısal bozunma için ısıtılır. Sonra oluşan katı yapı öğütülerek, başlangıç tozları asetat bağlarından kurtarılmış ve ısıl işlem ile reaksiyona girmeye

hazır bir şekilde sentezlenmiş olur. Bu yöntemde amaç oluşturulan çözeltiyle istenen malzemeyi saf, homojen ve küçük tanecik boyutlu sentezlemektir.

### 3.3. Hedef Malzemelerin Hazırlanma Koşulları

Katıhal tepkime yöntemiyle hazırlanan  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  hedef malzemeyi hazırlamak için ilk olarak % 99 saflıktaki  $\text{Bi}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SrCO}_3$ ,  $\text{CaO}$  ve  $\text{CuO}$  başlangıç tozları 15 gram, 2212 yapısına uygun stokiometrik oranlarda hassas terazi ile tartıldı ve  $\text{SiO}_2$  tabanlı agat havan içine dökülerek iyice karıştırıldı. Oluşturulan toz karışım kroze kaba alınarak  $750\text{ }^\circ\text{C}$  de 24 saat kalsine edilmek için fırına koyuldu. Kalsinasyondan çıkan tozlar tekrar agat havanda dövülerek,  $800\text{ }^\circ\text{C}$  de 24 saat tekrar kalsinasyona alındı. İkinci kalsinasyondan çıkan tozlar tekrar agatda dövüldü ve 3-4 gram hassas terazide tartılarak 1 inçlik pelete 14 ton basınçta basıldı.  $820\text{ }^\circ\text{C}$  sıcaklığa bırakılan pelet 24 saat boyunca sinterlendi. Çıkarılan pelet agat havanda iyice dövülerek tekrar toz haline getirildi ve sonrasında tekrar 14 ton basınçla 1 inçlik pelet haline getirildi.  $820\text{ }^\circ\text{C}$  sıcaklıkta 24 saat ikinci kez sinterlendi. İkinci sinterlemeden alınan pelet agat havanda iyice dövülerek toz haline getirildi. Sonra son kez 1 inçlik pelete 14 ton basınçta preslendi. Bu ana kadar her ısıl işlemde sıcaklık  $5\text{ }^\circ\text{C/dakika}$  hızla arttırılarak, quench etkisiyle aniden oda sıcaklığına alınarak düşürüldü. Son olarak 1 inçlik pelet tavlama işlemine tabi tutuldu. Sıcaklık,  $5\text{ }^\circ\text{C/dakika}$  ile  $800\text{ }^\circ\text{C}$  ye oradan  $1\text{ }^\circ\text{C/dakika}$  hızla  $860\text{ }^\circ\text{C}$  ye çıkarıldı. 60 saat  $860\text{ }^\circ\text{C}$  de beklemeden sonra  $1\text{ }^\circ\text{C/dakika}$  ile  $800\text{ }^\circ\text{C}$  ye soğutuldu ve burada da 12 saat bekletilerek quench yapıldı. Üretilen bu pelet daha sonra PLD sisteminde hedef malzeme olarak kullanıldı.

Polimer yöntemiyle hazırlanan  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  hedef malzemeyi hazırlamak için,  $\text{Bi}(\text{CH}_3\text{COO})_2$  ( $\geq 99.99\%$ , Aldrich),  $\text{Sr}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O}$  (99%, Panreac),  $\text{Ca}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  (98%, Alfa Aesar) ve  $\text{Cu}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$  (98%, Panreac) başlangıç tozları uygun oranlarda tartılarak, asetik asit ve saf su ile karıştırıldı ve içerisine % 50 seyreltik PEI çözeltisi eklendi. Elde edilen çözelti manyetik karıştırıcıda  $100\text{ }^\circ\text{C}$  de % 80 hacmini kaybedene kadar karıştırıldı. Oluşan çamur

tekrar 350 °C de bekletilerek kurutuldu. Daha sonra iyice öğütülerek toz haline gelen malzeme 750 ve 800 °C de 12 saat kalsine edildi.

Tozlar 1 inçlik pelete 14 ton basınçta preslendi. Son olarak 1 inçlik pelet tavlama işlemine tabi tutuldu. Sıcaklık, 5 °C/dakika ile 800 °C ye oradan 1 °C/dakika hızla 860 °C ye çıkarıldı. 60 saat 860 °C de beklemeden sonra 1 °C/dakika ile 800 °C ye soğutuldu ve burada da 12 saat bekletilerek quench yapıldı. Üretilen bu pelet daha sonra PLD sisteminde hedef malzeme olarak kullanıldı.

### 3.4. İnce Filmlerin Tavllanması

$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  hedef malzeme kullanarak PLD tekniği ile MgO (100) tek kristal altlıklar üzerine kaplanan filmler, kristal büyütme işlemi için ex-situ tavlama işlemine tabi tutulmuştur. Tavlama işlemi, tüp fırın içerisine yerleştirilen ve oksijen ile argon gaz bağlantıları yapılmış, kuvarz boru içerisinde yapılmaktadır. Oksijen ve argon gazı için kalibre edilmiş debimetreler yardımıyla, ısı işlem esnasında ortam atmosferi, % 7 oksijen ve % 93 argon olacak şekilde ayarlanmıştır. Optimum tavlama sıcaklığı araştırmasında, tavlama için kuvarz boru içerisine yerleştirilen ince filmler 20 °C/dakika hızla 800, 820, 840, 860 ve 880 °C tavlama sıcaklıklarına çıkarılarak burada 10 dakika bekletilmiştir ve sonrasında 500 °C sıcaklığına kadar soğuması beklenerek, oda sıcaklığına alınmıştır. Oksijen ve argon akışı sıcaklık 500 °C yükseldiğinde açılarak, sıcaklık tekrar 500 °C ye düştüğünde kapatılmaktadır.

Optimum tavlama süresi araştırmasında, tavlama için kuvarz boru içerisine yerleştirilen ince filmler 20 °C/dakika hızla 860 °C sıcaklığına çıkarılarak burada 10, 30 ve 60 dakika bekletilmiştir. Sonra filmlerin 500 °C sıcaklığına kadar soğuması beklenerek, oda sıcaklığına alınmıştır. Oksijen ve argon akışı sıcaklık 500 °C yükseldiğinde açılarak, sıcaklık tekrar 500 °C ye düştüğünde kapatılmaktadır.

### 3.5. X-Işını Toz Kırınım (XRD) Ölçümleri

PLD tekniği ile kaplanarak, tavlanan ince filmlerin ve  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  hedef malzemelerin kristalografik analizleri x-ışını kırınım yöntemi ile Rigaku

MiniFlex bilgisayar kontrollü  $\text{CuK}\alpha$  ( $\lambda = 1.5405 \text{ \AA}$ ) x-ışını difraktometresi kullanılarak yapılmıştır. Üretilen filmler özel cam örnek tutucular kullanılarak ölçüm için difraktometrenin içine yerleştirilmiştir. Ölçümler, tarama hızı tüm örnekler için standart  $1^\circ/\text{dk}$  olacak şekilde  $2\Theta = 10^\circ$ 'den  $70^\circ$ 'ye kadar alınmıştır. Elde edilen verilerin analizleri, XRD cihazının PDF katalogları ve Xpowder programı ile yapılmıştır. Bu analizler ile elde edilen ince filmlerde yabancı fazlar kontrolü, kristal örgü parametreleri ve düzlem analizleri yapılmıştır.

### 3.6. DC Manyetik Duygunluk (VSM) Ölçümleri

Tez kapsamında üretilen bulk ve ince film süperiletken malzemelerin manyetik alan altındaki, süperiletken davranışlarını karakterize etmek için laboratuvarımızda bulunan 7304 model LakeShore VSM titreşimli örnek manyetometresi kullanılmıştır. Bu VSM sistemi 8-300 K sıcaklık ve 0-1 Tesla manyetik alan aralığında, sıcaklık ve alan bağımlı manyetik duygunluk ölçümleri yapabilmektedir. Bulk ve ince film malzemelerin kritik süperiletken geçiş sıcaklıklarını belirlemek için sıfır alan soğutmalı (ZFC) modda 50 Oe alan altında sıcaklık bağımlı manyetik duygunluk  $M(T)$  ölçümleri yapılmıştır. Yine örneklerin manyetik alan altındaki davranışlarını gözlemleyebilmek için bulk örnekleri 0-1 Tesla, alan bağımlılığı yüksek ince filmlerde eğriler daraldığı için 0-0.5 Tesla aralığında alan bağımlı manyetik duygunluk (Histerisiz) ölçümleri yapılmıştır. Bulk örnekler için histerisiz ölçümleri 10, 15, 20 ve 25 K de, ince filmler için 10, 15 ve 20 K de yapılmıştır.

### 3.7. Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) ve Enerji Dağılımlı X-ışını (EDX) Ölçümleri

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



$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  yapısına uygun atomik sitokiyometri araştırmasında üretilen filmlerin yüzey morfolojisi ve elementel analizleri İnönü Üniversitesi IBTAM merkez laboratuvarında bulunan LeO Evo-40xVP marka taramalı elektron mikroskobu ve Quantax marka Bruker 125 eV detektörlü enerji dağılımlı x-ışını EDX spektrometresi kullanılarak yapılmıştır. Nihai filmlerle yapılan, optimum tavlama sıcaklığı ve süresi araştırmasında elde edilen filmlerin yüzey morfolojisi ve elementel analizleri İzmir Yüksek Teknoloji Enstitüsü IYTEMAM merkez araştırma laboratuvarı bünyesindeki QUANTA 250 FEG marka çift detektörlü SEM ve EDX cihazında yapılmıştır.

### 3.8. Sıcaklık Bağımlı Direnç (R-T) Ölçümleri

Sıcaklık bağımlı direnç ölçümleri süperiletken malzemelerin kritik geçiş sıcaklığını belirlemede yaygın olarak kullanılan bir yöntemdir ve genel olarak dört kontak tekniği ile yapılmaktadır. Gümüş pasta yardımı ile örnek üzerine tutturulan iletim telleri yardımıyla, örneğin sabit bir akım değerine karşılık voltaj değerleri ölçülür. Sonra  $V/I$  değerinden direnç değerleri hesaplanarak, sıcaklık bağımlı direnç değerleri ölçülmüş olur. Tez kapsamında yapılan R-T ölçümleri İzmir Yüksek Teknoloji Enstitüsü Fizik bölümünde bulunan sıvı helyum kapalı sistem soğutmalı direnç ölçüm sisteminde yapılmıştır. Teknis firması tarafından kurulan bu sistem 5-300 K sıcaklık aralığında çalışabilen kapalı sistem sıvı helyum kompresörüne, LakeShore sıcaklık kontrol ünitesine ve KEITHLY 2400 marka nanovoltmetreye sahiptir. İnce film R-T ölçümleri örnek minimum sıcaklığa soğutulup tekrar ısıtılırken 10  $\mu\text{A}$  sabit akım değerinde yapılmıştır.

### 3.9. Atomik Kuvvet Mikroskobu (AFM) Ölçümleri

Bu metot numune yüzeyi hakkında üç boyutlu görüntü elde edilmesine olanak sağlamaktadır. Bu metotta bir uç (tip) numune yüzeyi ile temas halinde olacak şekilde konumlandırılmakta ve bu tip yardımıyla numune yüzeyi sistematik olarak taramaktadır. Tarama esnasında uç, yüzey üzerinde bir değişime rastlarsa ideal

konumundan sapmakta ve ucun arkasına odaklanan bir lazer demeti bu yükselti farkını fotodiyota (üzerine düşen ışığın şiddeti ile iletkenliği değişen bir yarıiletken devre elemanı) göndermektedir. Elde edilen veriler bir yazılım yardımıyla yüzey görüntüsü olarak çizdirilmektedir. Tez kapsamındaki AFM ölçümleri, Üniversitemiz fizik bölümü bünyesinde bulunan ince film laboratuvarında bulunan AFM cihazı ile yapılmıştır.



## 4. ARAŞTIRMA VE BULGULAR

### 4.1. Giriş

Bu bölümde ilk olarak Atımlı Lazer Yığılımı (PLD) tekniği ile MgO altlıklar üzerine kaplanacak  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmler için en uygun  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  hedef üretim tekniği araştırmasının XRD, SEM, M-T ve M-H sonuçları paylaşılacak. İkinci olarak en iyi hedef ile farklı PLD koşullarında kaplanan ve sonrasında ısıtılma işlemi gören ince filmlerin SEM, EDX ve XRD sonuçları verilecektir. Son olarak optimum üretim koşulları tespit edilerek hazırlanan ince filmler üzerinde tavlama sıcaklığı ve tavlama süresi etkilerine ait XRD, SEM, EDX, R-T, M-T ve M-H ölçüm sonuçları verilerek tartışılacaktır.

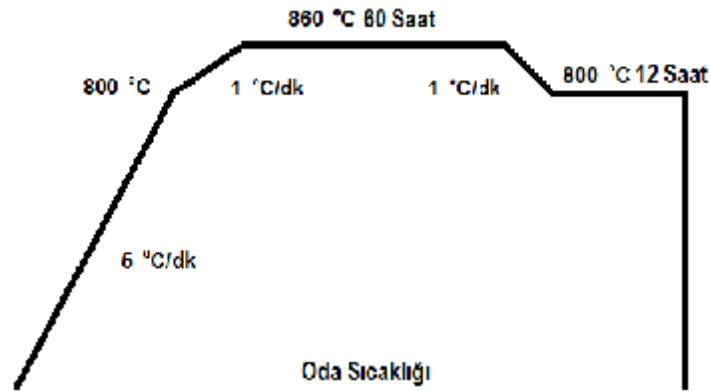
### 4.2. Uygun $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ Hedef için Üretim Teknikleri Araştırması

PLD tekniğinin avantajlarından en önemlisi sitokiyometrik transfer yapılabilmesidir. Bu sebepten dolayı hedef malzemenin sitokiyometrik oranının (Bi:2, Sr:2, Ca:1, Cu:2, O:8+x) ve homojen yapısının önemi büyüktür. Bu fikirden yola çıkarak  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  fazını en iyi şekilde elde edebilmek için katıhal tepkime yöntemi ile farklı ısıtılma ve mekanik işlemlerin, malzemenin süperiletken özellikleri üzerindeki etkisi araştırıldı. Kullanılan üç farklı teknikte üretilen malzemeler, karakterize edildi. Sonuçlar değerlendirilerek en uygun teknik seçildi ve bu teknik kullanılarak  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  hedef malzeme hazırlandı. Bu üç farklı teknik ile hazırlanan örnekler A, B ve C olarak isimlendirildi. Bu teknikler Çizelge 4.1. de özetlenmiştir.

Çizelge 4.1. A, B ve C örnekleri için hazırlama teknikleri.

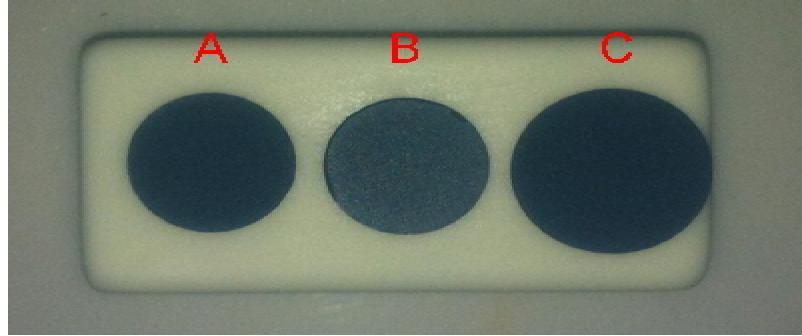
A Örneği	B Örneği	C Örneği
<i>Başlangıç tozlarını karıştırma (<math>Bi_2O_3</math>, <math>SrCO_3</math>, <math>CaCO_3</math>, <math>CuO</math>)</i>	<i>Başlangıç tozlarını karıştırma (<math>Bi_2O_3</math>, <math>SrCO_3</math>, <math>CaCO_3</math>, <math>CuO</math>)</i>	<i>Başlangıç tozlarını karıştırma (<math>Bi_2O_3</math>, <math>SrCO_3</math>, <math>CaCO_3</math>, <math>CuO</math>)</i>
<i>750 °C de 24 saat kalsinasyon</i>	<i>750 °C de 24 saat kalsinasyon</i>	<i>750 °C de 24 saat kalsinasyon</i>
<i>Öğütme</i>	<i>Öğütme</i>	<i>Öğütme</i>
<i>800 °C de 24 saat kalsinasyon</i>	<i>800 °C de 24 saat kalsinasyon</i>	<i>800 °C de 24 saat kalsinasyon</i>
<i>Öğütme ve pelet olarak presleme</i>	<i>Öğütme ve pelet olarak presleme</i>	<i>Öğütme ve pelet olarak presleme</i>
<i>820 °C de 24 saat sinterleme</i>	<i>820 °C de 24 saat sinterleme</i>	<i>Tavlama</i>
<i>Öğütme ve pelet olarak presleme</i>	<i>Öğütme ve pelet olarak presleme</i>	
<i>820 °C de 24 saat sinterleme</i>	<i>820 °C de 24 saat sinterleme</i>	
<i>Öğütme ve pelet olarak presleme</i>	<i>Tavlama</i>	
<i>Tavlama</i>		

A, B ve C örnekleri tavlama işlemi süresince 860 °C de 60 saat tutulduktan sonra oksijen yoğunluğunu düzenlemek için 800 °C de 12 saat tutulmuş (Sotelo et al) ve sonrasında oda sıcaklığına alınarak quench etkisi yapılmıştır. Tavlama işlemi Şekil 4. 1 de şematize edilmiştir.



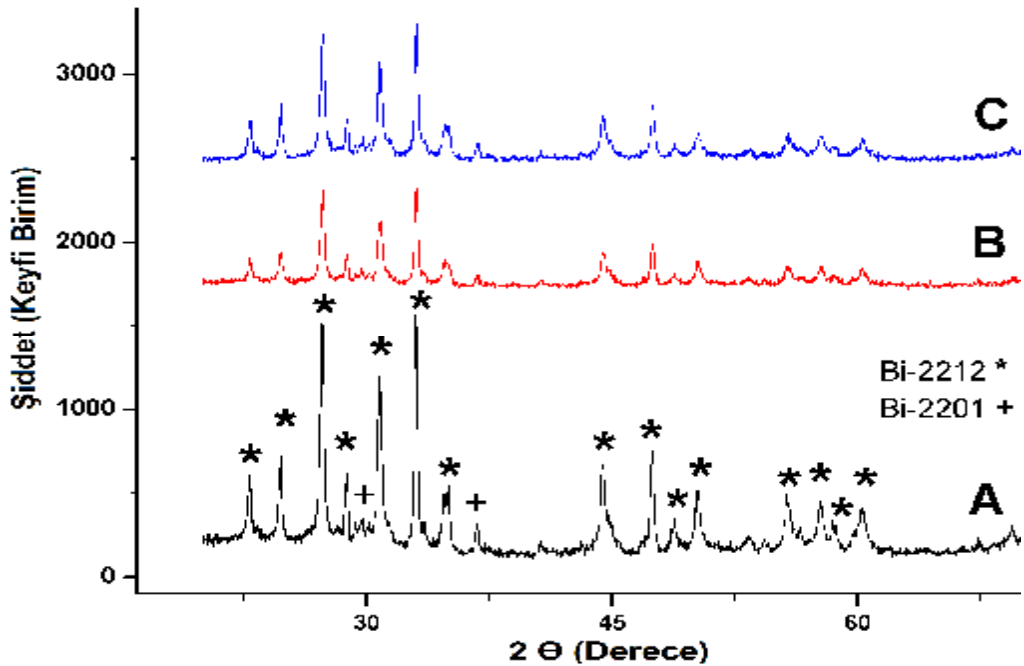
Şekil 4.1. A, B ve C örnekleri için Tavlama işlemi.

Tavlama işleminden sonra örneklerin yapısal farklılıkları gözle dahi görülebilmektedir. Tüm malzemeler 13 mm çapında peletler halinde preslenmişti fakat ısıtılma işlem sonrasında malzeme içi difüzyon ve kristal büyümelerden dolayı örnek ölçüleri Şekil 4.2 de görüldüğü gibi değişmiştir.



Şekil 4.2. Tavlama işlemi sonrasında A, B ve C örneklerinin fotoğrafı.

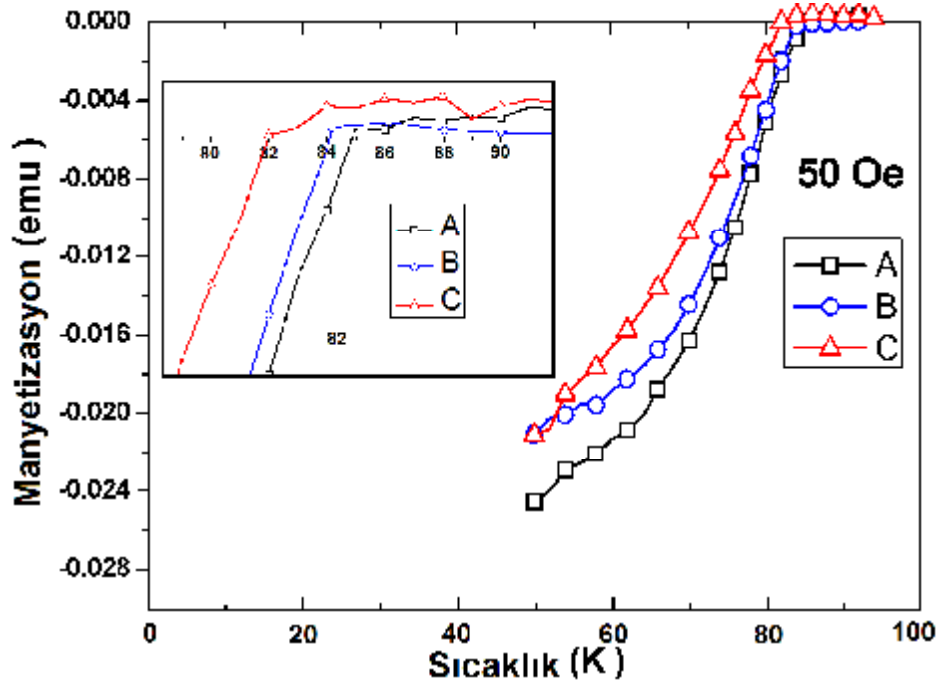
Üretilen örneklerin kristal yapısını incelemek için örnekler üzerinde x-ışını kırınım ölçümleri yapıldı ve bu sonuçları kullanarak farklı kristal fazların tespiti için de XRD sisteminin PDF katalogları kullanıldı. A, B ve C örneklerine ait XRD sonuçları Şekil 4.3 de verilmektedir.



Şekil 4.3. A, B ve C bulk örneklerinin x-ışını kırınım desenleri.

XRD sonuçlarından görülebileceği gibi göreceli karşılaştırmada A numunesi maksimum pik şiddetlerine ve ana fazları incelendiğinde B ve C örneklerine göre daha küçük maksimum yarı genişliğe yani daha keskin kristalizasyon piklerine sahiptir. Katalog eşleştirme işlemine göre tüm ana fazlar (2212) fazına aittir, buna rağmen çok küçük oranlarda düşük sıcaklık fazı (2201) fazına ait piklerde tespit edilmiştir. A örneğinin B ve C örneklerine göre göreceli olarak daha iyi kristalleşmesi, her işlem sonrasında öğütme işleminin, daha homojen bir yapı sağlaması ve böylece difüzyon mekanizmasına katkıda bulunmasıyla açıklanabilir.

Üretilen örneklerin süperiletken geçiş sıcaklıklarını tespit edebilmek için DC manyetizasyon ölçümleri yapıldı. A, B ve C örneklerine ait sıcaklık bağımlı manyetizasyon (M-T) ölçümleri Şekil 4.4 de verilmiştir.

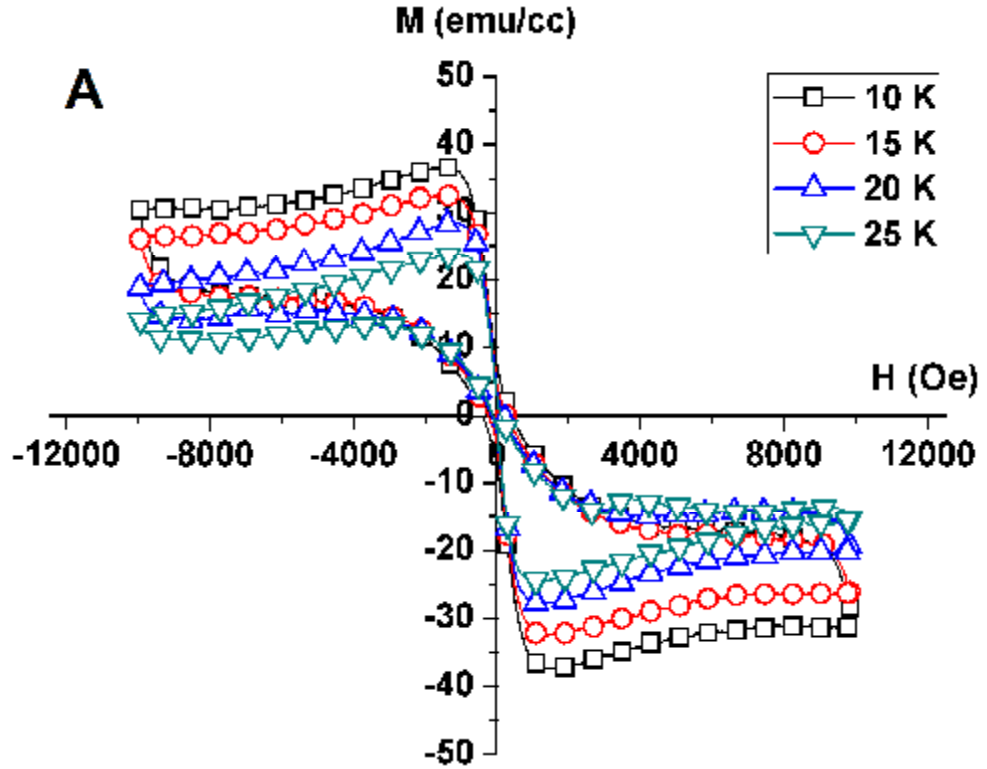


Şekil 4.4. A, B ve C bulk örneklerinin sıcaklık bağımlı manyetizasyon eğrileri.

M(T) sonuçlarına göre A, B ve C örnekleri sırasıyla 82 K, 84 K ve 85 K süperiletken geçiş sıcaklığı değerlerine sahiptir.

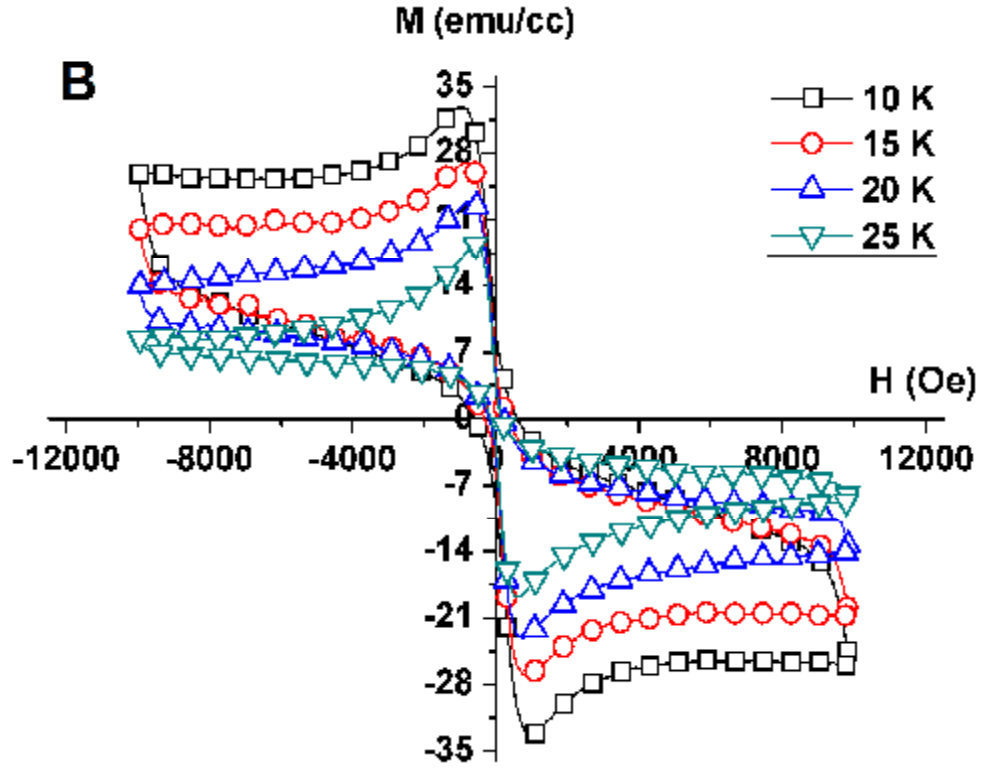
Üretilen A, B ve C örneklerinin dış manyetik alan bağımlılığını incelemek için farklı sıcaklıklarda histerisiz M(H) ölçümleri yapıldı. Bu histerisiz eğrilerini kullanarak Bean Modeline göre örneklerin kritik akım yoğunluğu değerleri

hesaplandı. A, B ve C örneklerine ait histerisiz ölçümleri Şekil 4.5, Şekil 4.6 ve Şekil 4.7 de verilmiştir. Örneklere ait kritik akım yoğunlukları Şekil 4.8, Şekil 4.9 ve Şekil 4.10 da verilmektedir. Ayrıca karşılaştırmalı histerisiz ve kritik akım yoğunluğu grafikleri Şekil 4.11 ve Şekil 4.12 de verilmektedir.

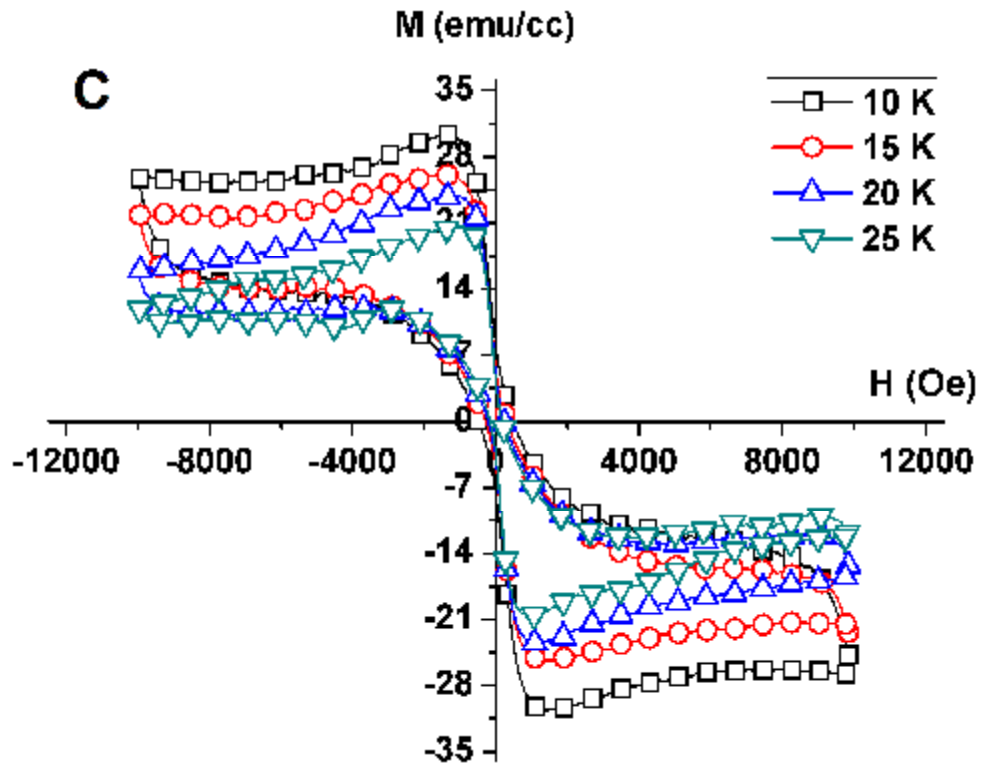


Şekil 4.5. A örneğine ait farklı sıcaklıklarda histerisiz eğrileri.

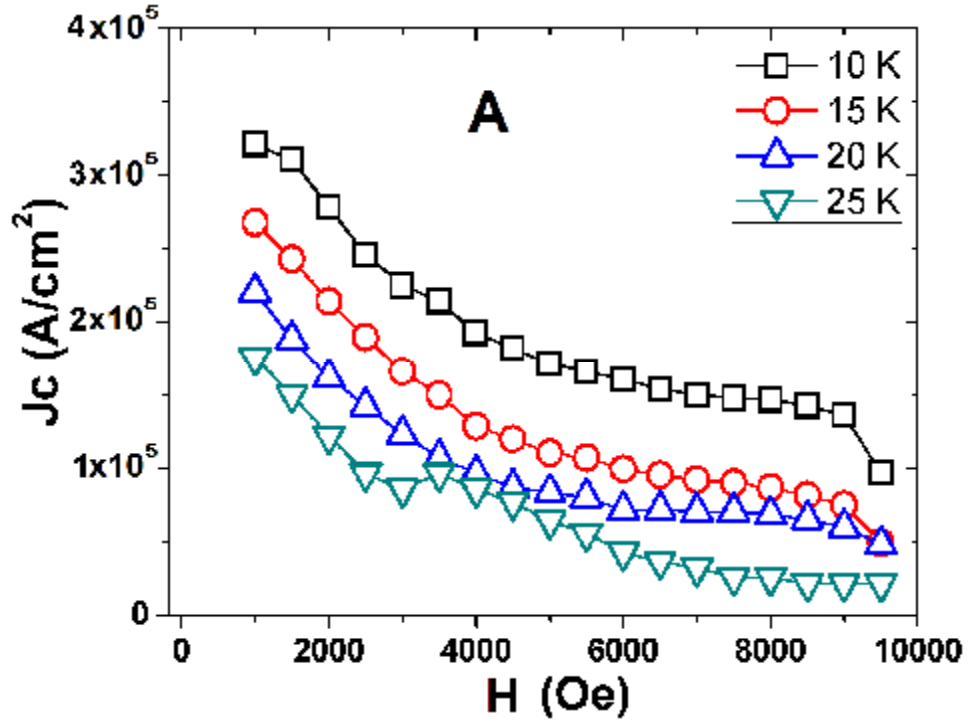




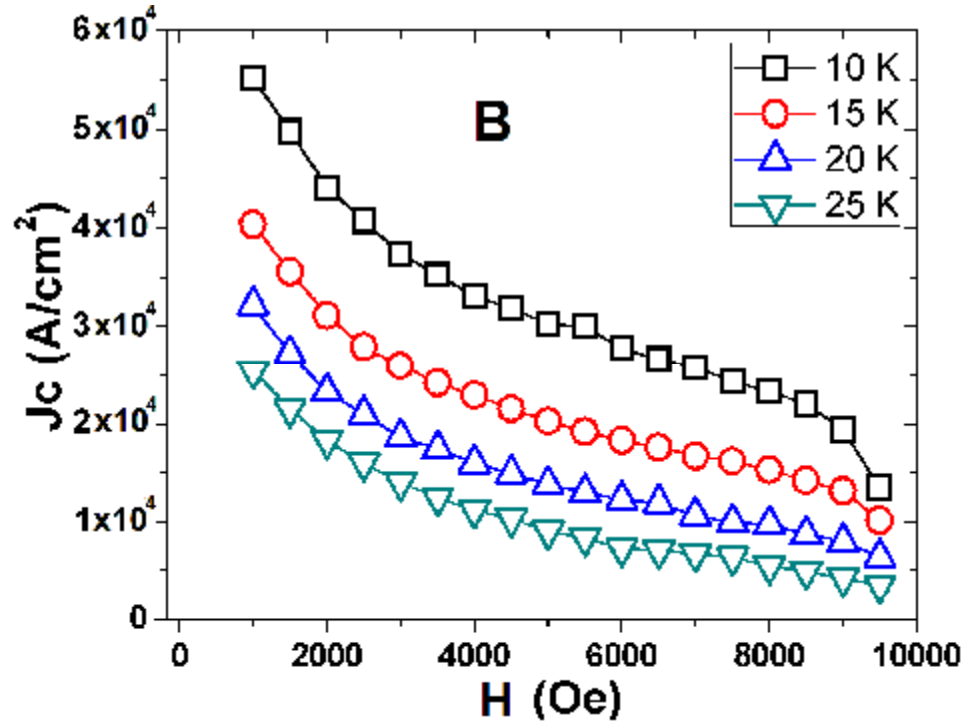
Şekil 4.6. B örneğine ait farklı sıcaklıklarda histerisiz eğrileri.



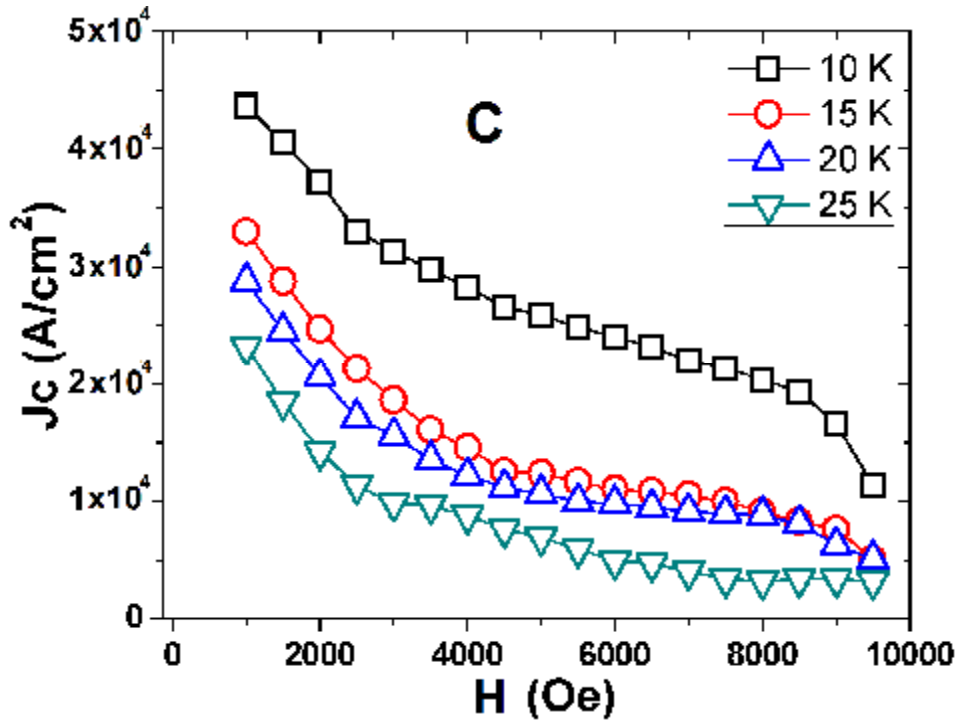
Şekil 4.7. C örneğine ait farklı sıcaklıklarda histerisiz eğrileri.



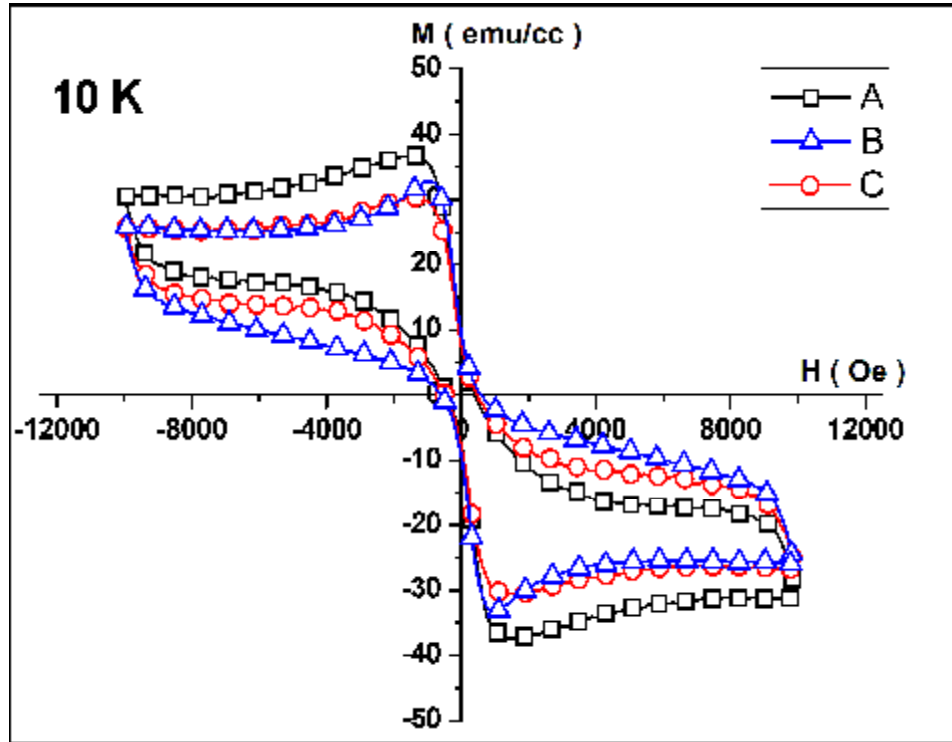
Şekil 4.8. A örneğine ait farklı sıcaklıklarda alan bağımlı kritik akım yoğunluğu değerleri.



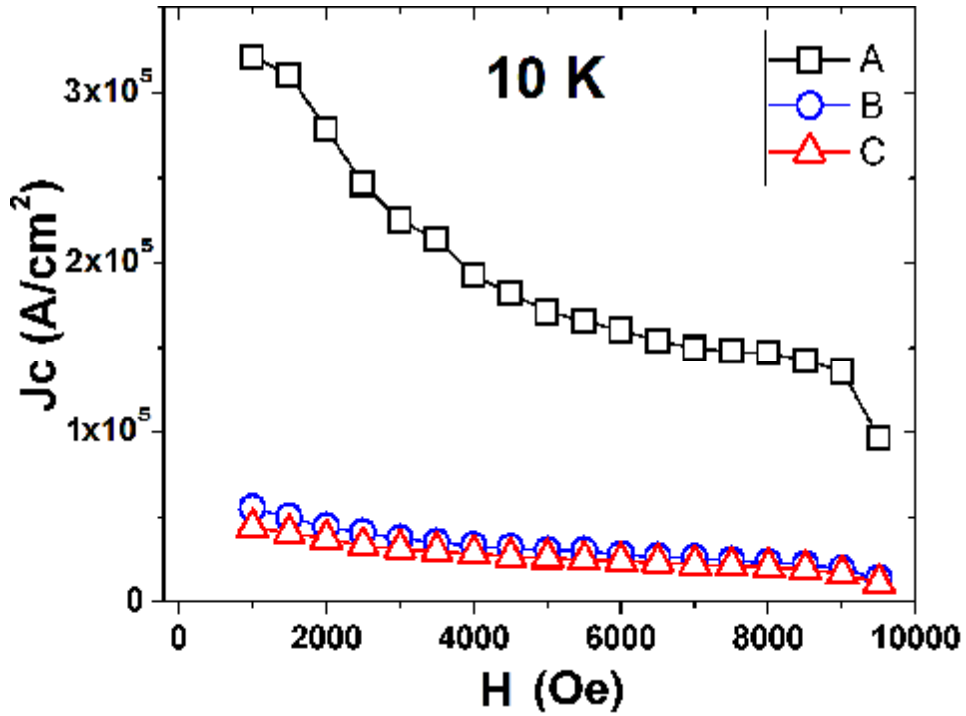
Şekil 4.9. B örneğine ait farklı sıcaklıklarda alan bağımlı kritik akım yoğunluğu değerleri.



Şekil 4.10. C örneğine ait farklı sıcaklıklarda alan bağımlı kritik akım yoğunluğu değerleri.



Şekil 4.11. A, B ve C örneklerine ait 10 K sıcaklığında histerisiz eğrileri.



Şekil 4.12. A, B ve C örneklerine ait 10 K sıcaklığında kritik akım yoğunluğu değerleri.

10 K de karşılaştırmalı histerisiz ve kritik akım yoğunlu grafikleri incelendiğinde, histerisiz grafiklerinde, sıfır alanda örnekler benzer kalıcılık değerlerine sahipken meissner ve girdap bölgelerinde A numunesi, B ve C örneklerine kıyasla daha geniş mıknatıslanma eğrilerine sahiptir. A örneği B ve C örneklerine göre daha yüksek  $H_{c1}$  kritik alan değerine sahiptir. Bu durum A numunesinin B ve C numunelerine kıyasla daha iyi yönelmiş kristal yapısına ve geniş tanecik boyutlarına sahip olmasından kaynaklanmaktadır. 10 K de karşılaştırmalı kritik akım yoğunluğu sonuçlarına göre B ve C örnekleri benzer akım yoğunluklarına sahip iken A örneği 4-5 kat daha büyük kritik akım yoğunluğu değerine sahiptir. II. Tip süperiletken malzemelerde örnek içerisine Abrikosov girdapları şeklinde sızan manyetik alan, süperiletken taşıyıcı yoğunluğunu, artan manyetik alanla birlikte oluşan girdap hareketiyle, düşürür ve alan değeri arttıkça eriyen ve içi içe geçen girdaplar, örnek içerisinde direnç oluşmasına sebep olarak, süperiletken durumu bozmaktadır. A örneği diğer örneklere kıyasla daha iyi bir mikro yapıya sahip olduğu için girdap çivileme mekanizması diğer örneklere göre kıyasla daha üstün özelliklere sahiptir. Tüm bu ölçümler sonucunda, A örneğinin

daha iyi süperiletken parametrelere sahip olduğu tespit edildi ve böylece PLD tekniğinde kullanılmak üzere  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  hedef malzemesini üretmek için A örneğine ait üretim tekniği tercih edildi. Üretilen 1 inçlik (3-4 gram) hedef malzeme ile PLD tekniği ile farklı kaplama parametreleri için ince filmler hazırlandı. Bu çalışmadaki amacımız kaplama sonrasında  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  fazını elde etmeye yetecek stokiometrik konsantrasyonu doğru oranda elde etmeye çalışmaktı.

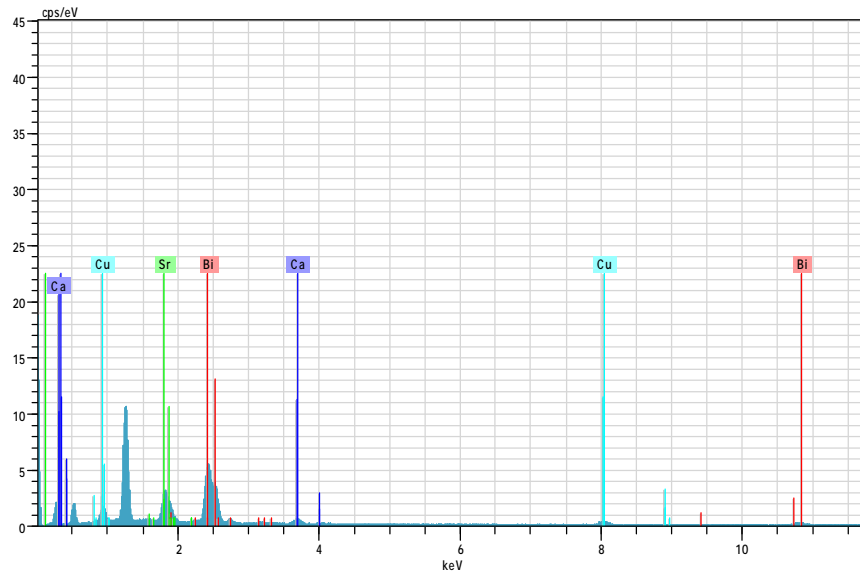
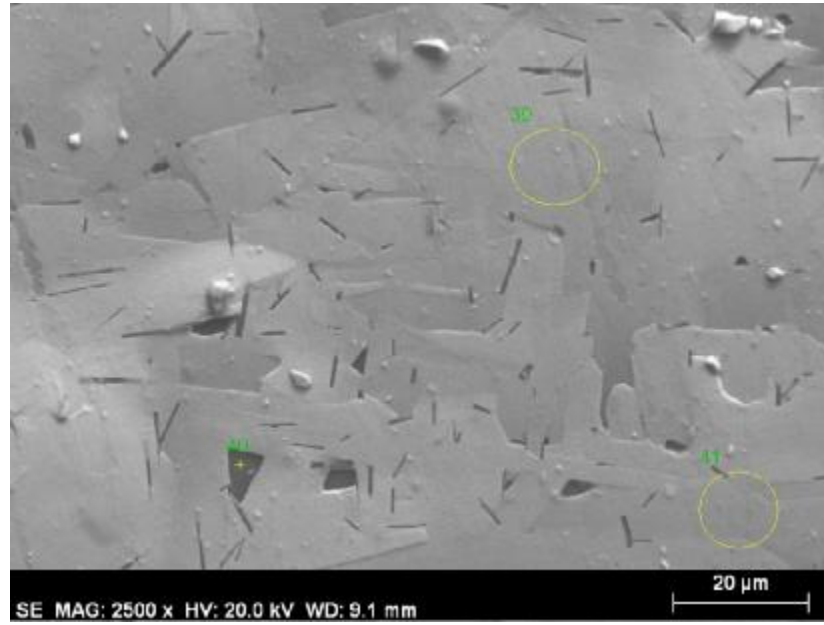
### 4.3. Farklı PLD Parametreleri ile Üretilen İnce Film Sonuçları

PLD tekniğinin diğer üretim tekniklerine göre pek çok avantajı bulunmaktadır. PLD tekniği, filmlerin kaplanma ve büyütülmesi aşamalarında rol oynayan birçok parametreyi kontrol etme imkânı sağlamaktadır. Lazer-hedef, plüm-altlık gibi etkileşimleri çeşitli varyasyonlar ile kontrol etmek mümkündür. Kontrol edilebilen başlıca parametreler; Lazer gücü, enerji yoğunluğu, atım sayısı, atım frekansı, lazer ışını açısı, hedef dönme hareketi, altlık dönme hareketi, hedef-altlık mesafesi, altlık konumu, altlık sıcaklığı, ortam gaz tipi ve basıncı gibi değişkenlerdir. Bu parametrelerin önemi, elde edilmek istenen filmin atomik stokiometrisini, kalınlığını, mikro yapısını ve yüzey özelliklerini etkileyebilmesidir. Etkin özelliklere sahip BSCCO ince filmlerini üretmek için ex-situ yani üretim habitatı dışında filmlerin kaplama sonrasında ısıl işleme alınmasının, bu filmlerin yapısal ve süperiletkenlik özelliklerini geliştirdiği yaygın bir görüştür (Kaide, 2002-Ishii, 2002-Kume, 2004-Mua, 2008). O halde amaç kaplanan filmlerde, istenen faza ait atomik stokiometriyi, optimum PLD parametreleriyle elde etmektir. Bu amaçla, farklı bazı varyasyonlar deneyerek,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  fazı için uygun stokiometriyi (Bi:2, Sr:2, Ca:1, Cu:2, O:8+x) elde etmeye çalıştık. Bu çalışmaya ait üretim parametreleri, SEM ve EDX sonuçları aşağıda sırasıyla verilmektedir.

<b>1 Nolu Deneme</b>	
Altlık Konumu	OFF-AXIS
Altlık Devri	30 derece/saniye
Hedef Devri	40 derece/saniye
Hedef Tarama	-10, +10 derece
Lazer Enerji Yoğunluğu	1.51 j/cm <sup>2</sup>
Lazer Gücü	13 kV
Lazer Spot Boyutu	3 mm <sup>2</sup>
Başlangıç Vakumu	2.1x10 <sup>-7</sup> Torr
Hedef-Altlık Mesafesi	4.5 cm



Şekil 4.13. 1 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.



39 Date:08/03/2012 16:44:58 HV:20.0kV Puls th.:5.95kcps

El	AN	Series	unn. [wt.%]	C norm. [wt.%]	C Atom. [at.%]	Error [%]
Ca	20	K-series	2.63	3.08	10.34	0.1
Cu	29	K-series	7.80	9.15	19.36	0.3
Sr	38	L-series	13.22	15.50	23.79	0.7
Bi	83	L-series	61.65	72.27	46.51	2.3
Total:			85.30	100.00	100.00	

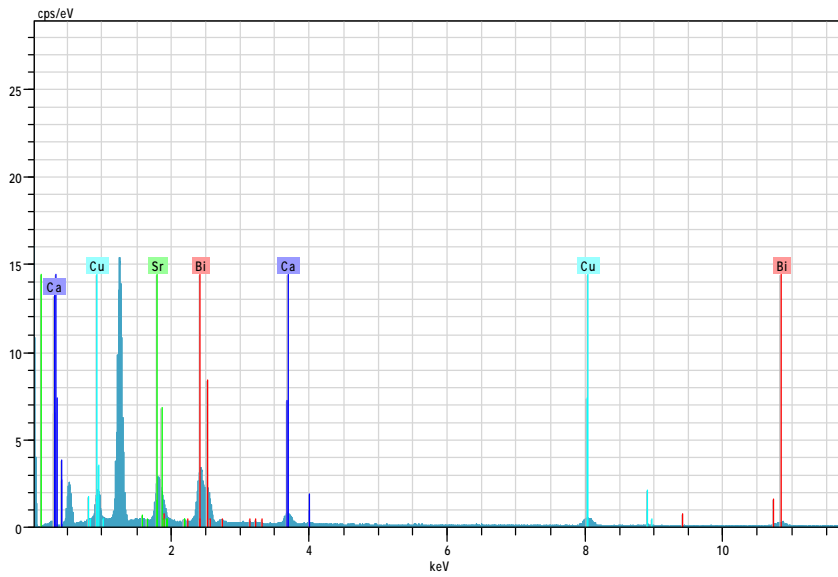
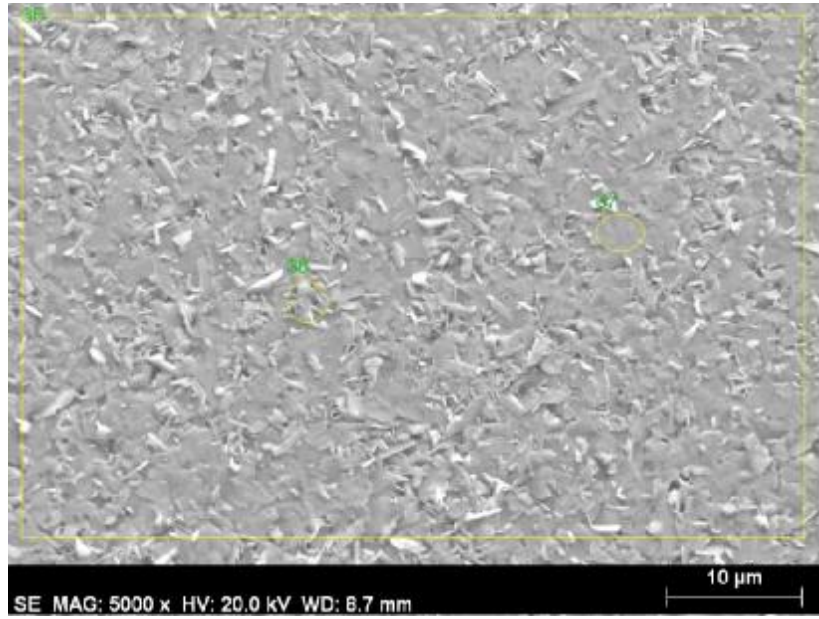
Şekil 4.14. 1 nolu deneme örneğine ait EDX sonuçları.

<b>2 Nolu Deneme</b>	
Altlık Konumu	OFF-AXIS
Altlık Devri	30 derece/saniye
Hedef Devri	40 derece/saniye
Hedef Tarama	-10, +10 derece
Lazer Enerji Yoğunluğu	1.52 j/cm <sup>2</sup>
Lazer Gücü	13 kV
Lazer Spot Boyutu	3 mm <sup>2</sup>
Başlangıç Vakumu	2.6x10 <sup>-6</sup> Torr
Hedef-Altılık Mesafesi	4.5 cm



Şekil 4.15. 2 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.





36 Date:08/03/2012 16:39:27 HV:20.0kV Puls th.:5.30kcps

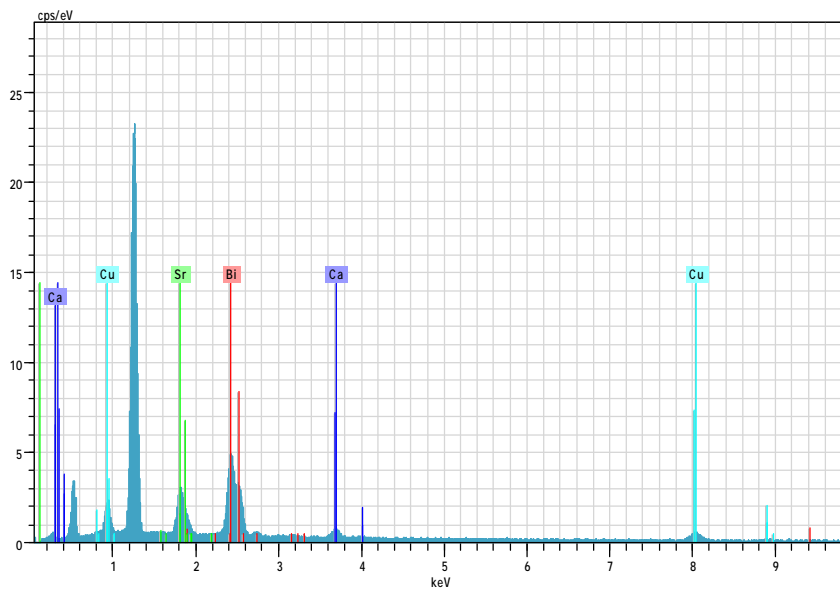
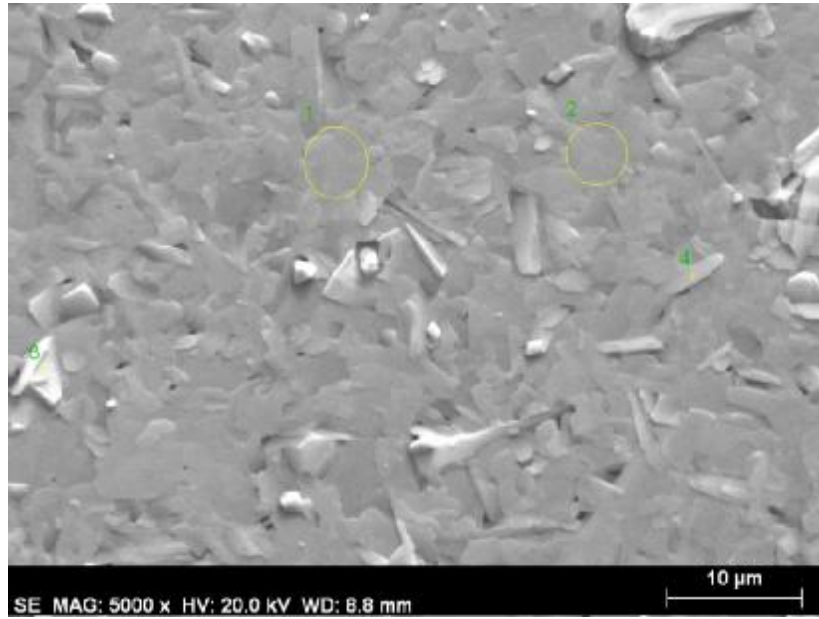
El	AN	Series	unn. [wt.%]	C norm. [wt.%]	C Atom. [at.%]	C Error [%]
Ca	20	K-series	4.36	4.32	13.38	0.2
Cu	29	K-series	13.40	13.29	25.95	0.5
Sr	38	L-series	14.43	14.31	20.26	0.8
Bi	83	L-series	68.65	68.07	40.41	2.6
Total:			100.85	100.00	100.00	

Şekil 4.16. 2 nolu deneme örneğine ait EDX sonuçları.

<b>3 Nolu Deneme</b>	
Altık Konumu	OFF-AXIS
Altık Devri	30 derece/saniye
Hedef Devri	40 derece/saniye
Hedef Tarama	-10, +10 derece
Lazer Enerji Yoğunluğu	1.52 j/cm <sup>2</sup>
Lazer Gücü	14 kV
Lazer Spot Boyutu	3 mm <sup>2</sup>
Başlangıç Vakumu	5x10 <sup>-6</sup> Torr
Hedef-Altık Mesafesi	4.5 cm



Şekil 4.17. 3 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.



1 Date:08/03/2012 13:54:31 HV:20.0kV Puls th.:7.09kcps

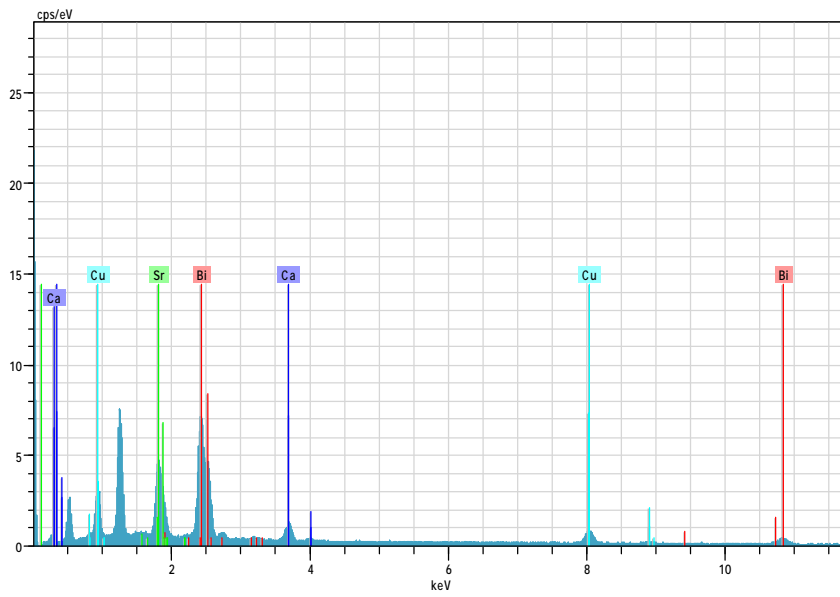
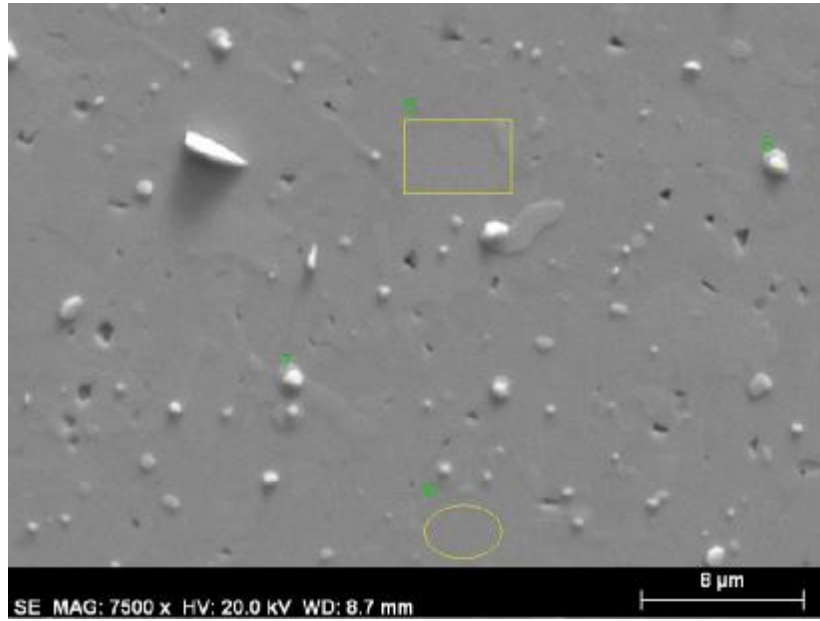
El	AN	Series	unn. [wt.%]	C norm. [wt.%]	C Atom. [at.%]	C Error [%]
Ca	20	K-series	2.65	2.94	9.88	0.1
Cu	29	K-series	9.65	10.73	22.71	0.4
Sr	38	L-series	11.95	13.28	20.39	0.7
Bi	83	L-series	65.72	73.05	47.02	2.4
Total:			89.96	100.00	100.00	

Şekil 4.18. 3 nolu deneme örneğine ait EDX sonuçları.

<b>4 Nolu Deneme</b>	
Altılık Konumu	1 tane OFF-AXIS 1 tane ON-AXIS
Altılık Devri	30 derece/saniye
Hedef Devri	40 derece/saniye
Hedef Tarama	-10, +10 derece
Lazer Enerji Yoğunluğu	1.52 j/cm <sup>2</sup>
Lazer Gücü	14.08 kV
Lazer Spot Boyutu	3 mm <sup>2</sup>
Başlangıç Vakumu	2.1x10 <sup>-7</sup> Torr
Hedef-Altılık Mesafesi	4.5 cm



Şekil 4.19. 4 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.

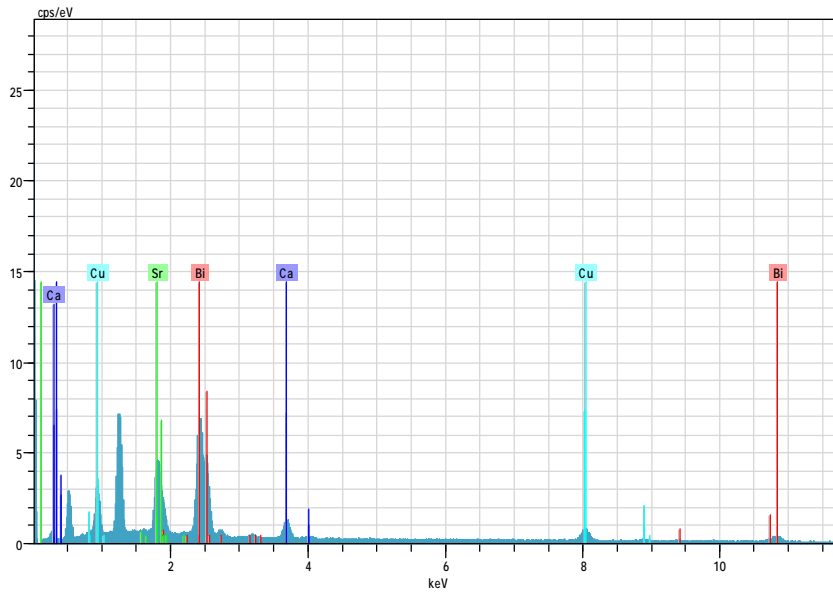
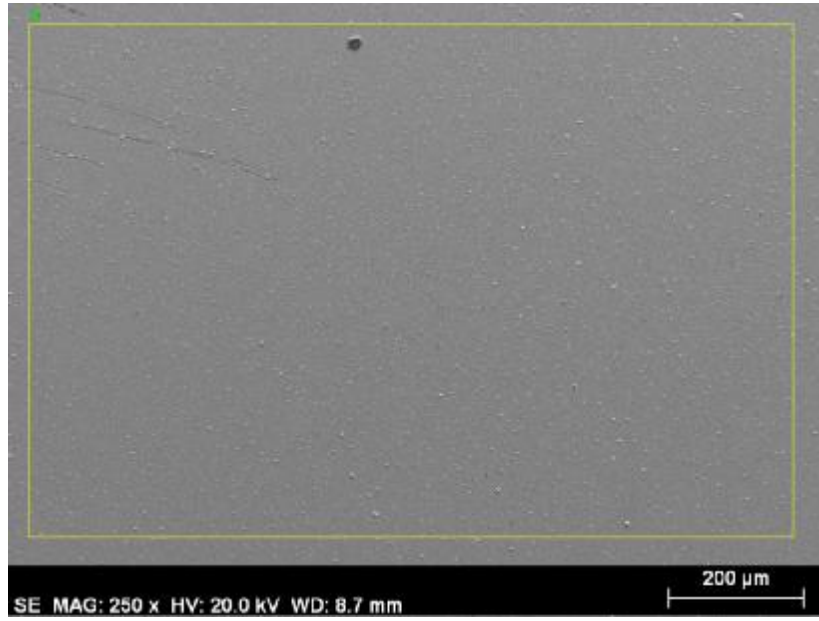


5 Date:08/03/2012 14:01:27 HV:20.0kV Puls th.:7.11kps

El	AN	Series	unn. C [wt.%]	norm. C [wt.%]	Atom. C [at.%]	Error [%]
Ca	20	K-series	4.11	5.02	14.51	0.2
Cu	29	K-series	12.49	15.25	27.78	0.4
Sr	38	L-series	14.46	17.66	23.33	0.7
Bi	83	L-series	50.83	62.07	34.38	1.9

Total: 81.89 100.00 100.00

Şekil 4.20. 4 nolu off-axis deneme örneğine ait EDX sonuçları.

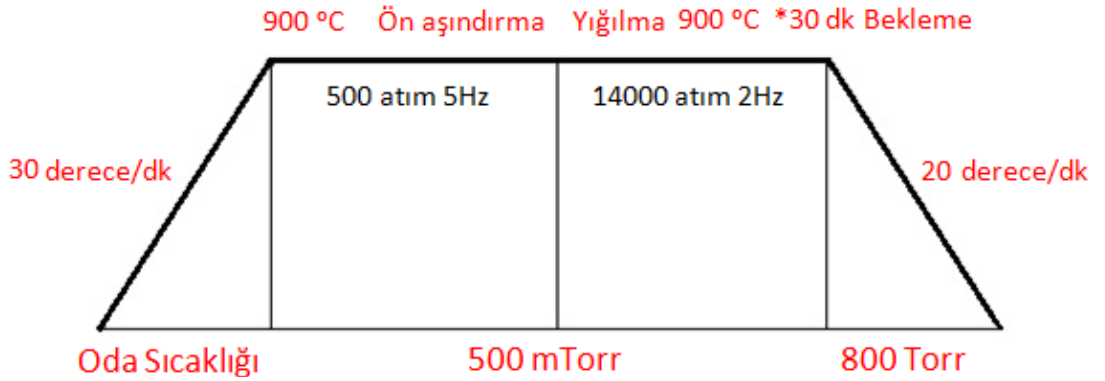


9 Date:08/03/2012 14:05:36 HV:20.0kV Puls th.:7.00kcps

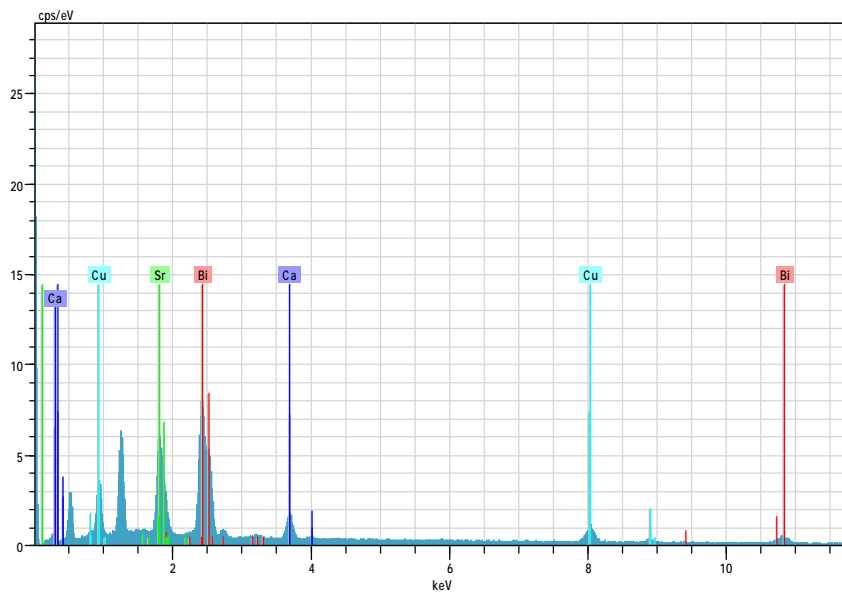
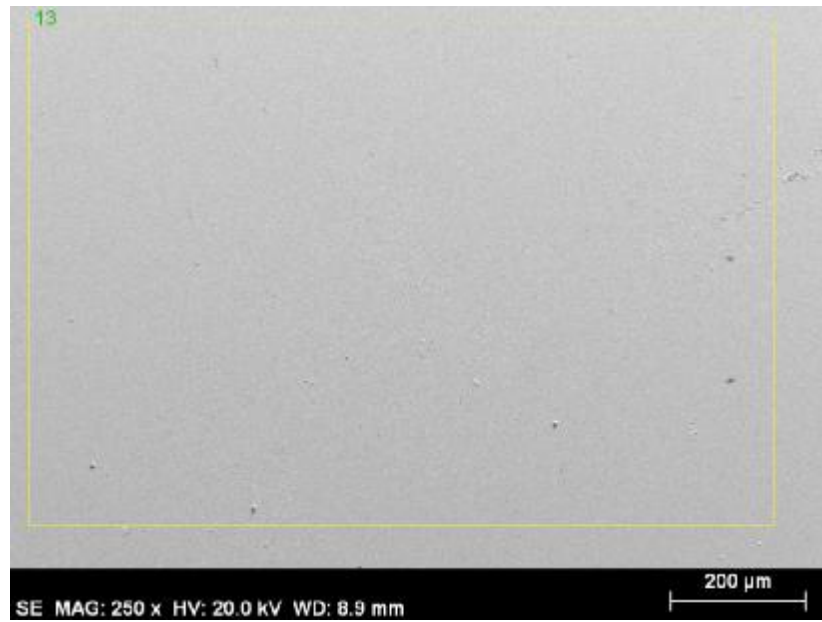
El	AN	Series	unn. C [wt.%]	norm. C [wt.%]	Atom. C [at.%]	Error [%]
Ca	20	K-series	4.14	4.88	14.54	0.2
Cu	29	K-series	11.09	13.07	24.54	0.4
Sr	38	L-series	15.10	17.80	24.24	0.8
Bi	83	L-series	54.49	64.24	36.68	2.0
Total:			84.82	100.00	100.00	

Şekil 4.21. 4 nolu on axis deneme örneğine ait EDX sonuçları.

<b>5 Nolu Deneme</b>	
Altlık Konumu	OFF-AXIS
Altlık Devri	30 derece/saniye
Hedef Devri	40 derece/saniye
Hedef Tarama	-10, +10 derece
Lazer Enerji Yoğunluğu	1.50 j/cm <sup>2</sup>
Lazer Gücü	14.5 kV
Lazer Spot Boyutu	3 mm <sup>2</sup>
Başlangıç Vakumu	7.1x10 <sup>-7</sup> Torr
Hedef-Altlık Mesafesi	4.5 cm



Şekil 4.22. 5 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.



13 Date:08/03/2012 14:13:42 HV:20.0kV Puls th.:8.04kcps

El	AN	Series	unn. C [wt.%]	norm. C [wt.%]	Atom. C [at.%]	Error [%]
Ca	20	K-series	4.66	5.52	15.53	0.2
Cu	29	K-series	13.20	15.64	27.75	0.4
Sr	38	L-series	16.00	18.96	24.40	0.8
Bi	83	L-series	50.55	59.88	32.32	1.8
Total:			84.41	100.00	100.00	

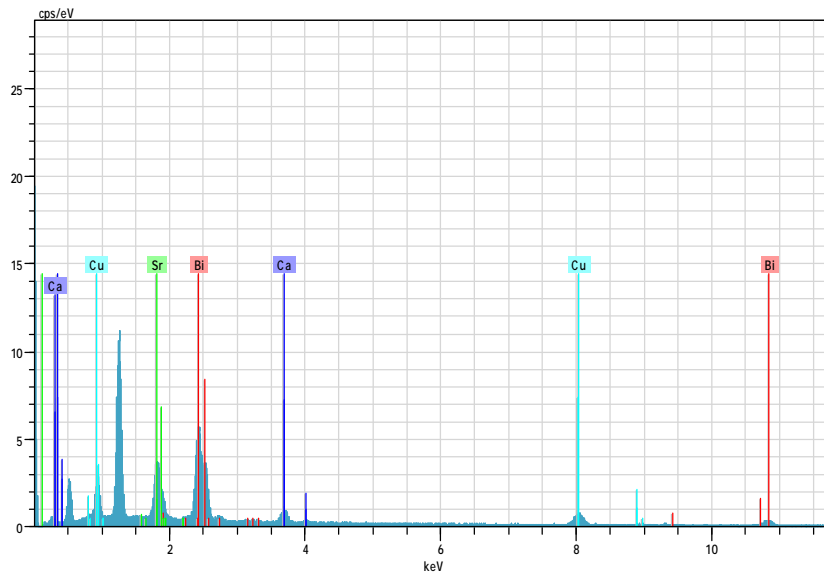
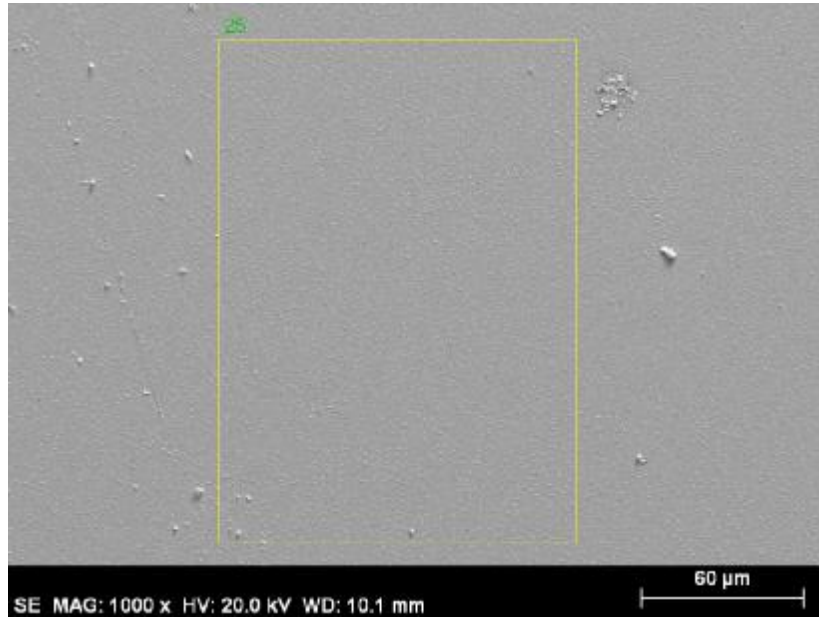
Şekil 4.23. 5 nolu deneme örneğine ait EDX sonuçları.



<b>6 Nolu Deneme</b>	
Altlık Konumu	OFF-AXIS
Altlık Devri	50 derece/saniye
Hedef Devri	40 derece/saniye
Hedef Tarama	-10, +10 derece
Lazer Enerji Yoğunluğu	1.59 j/cm <sup>2</sup>
Lazer Gücü	13kV
Lazer Spot Boyutu	3 mm <sup>2</sup>
Başlangıç Vakumu	6.5x10 <sup>-7</sup> Torr
Hedef-Altlık Mesafesi	4 cm



Şekil 4.24. 6 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.



25 Date:08/03/2012 14:39:34 HV:20.0kV Puls th.:6.34kcps

El	AN	Series	unn. [wt.%]	C norm. [wt.%]	C Atom. [at.%]	C Error [%]
Ca	20	K-series	3.62	3.86	11.81	0.2
Cu	29	K-series	13.11	13.97	27.00	0.5
Sr	38	L-series	14.88	15.85	22.21	0.8
Bi	83	L-series	62.26	66.33	38.98	2.3

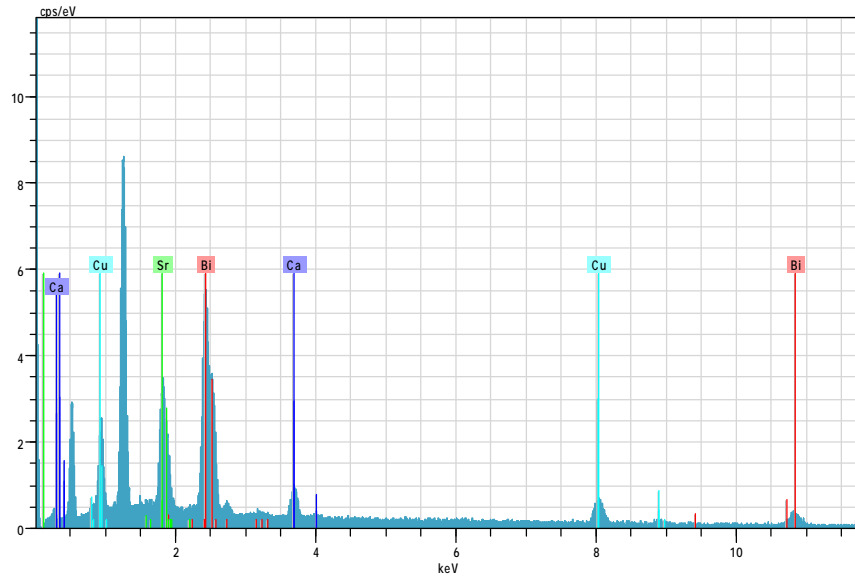
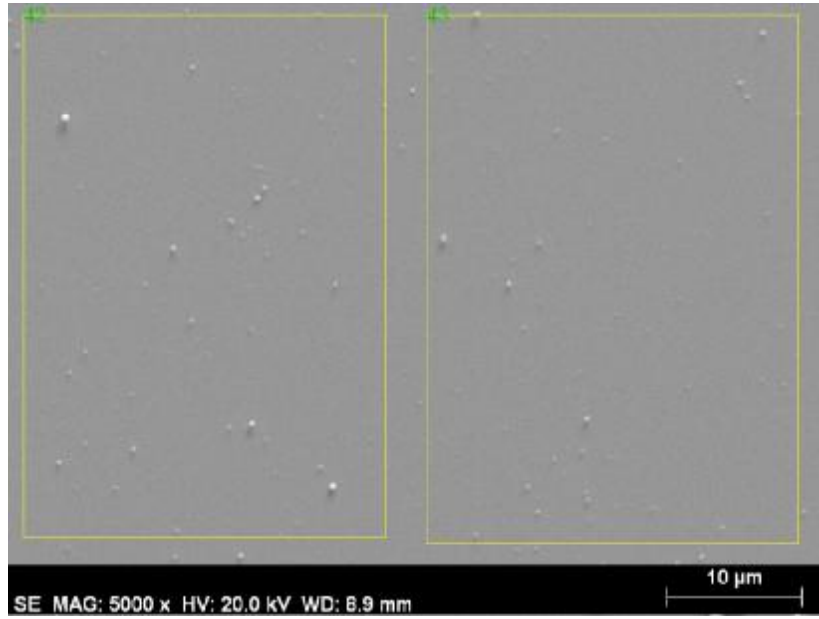
Total: 93.87 100.00 100.00

Şekil 4.25. 6 nolu deneme örneğine ait EDX sonuçları.

<b>7 Nolu Deneme</b>	
Altlık Konumu	ON-AXIS
Altlık Devri	50 derece/saniye
Hedef Devri	40 derece/saniye
Hedef Tarama	-10, +10 derece
Lazer Enerji Yoğunluğu	1.67 j/cm <sup>2</sup>
Lazer Gücü	15 kV
Lazer Spot Boyutu	3 mm <sup>2</sup>
Başlangıç Vakumu	1.4x10 <sup>-7</sup> Torr
Hedef-Altlık Mesafesi	4 cm



Şekil 4.26. 7 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.



42 Date:08/03/2012 16:50:05 HV:20.0kV Puls th.:5.90kcps

El	AN	Series	unn. C [wt.%]	norm. C [wt.%]	Atom. C [at.%]	Error [%]
Ca	20	K-series	3.80	4.45	13.62	0.2
Cu	29	K-series	11.65	13.66	26.33	0.4
Sr	38	L-series	12.66	14.84	20.74	0.7
Bi	83	L-series	57.22	67.05	39.31	2.1

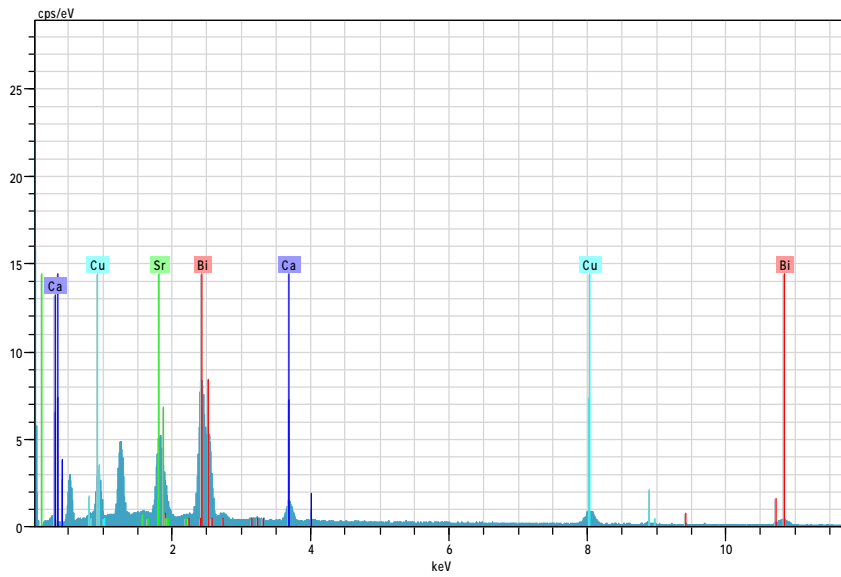
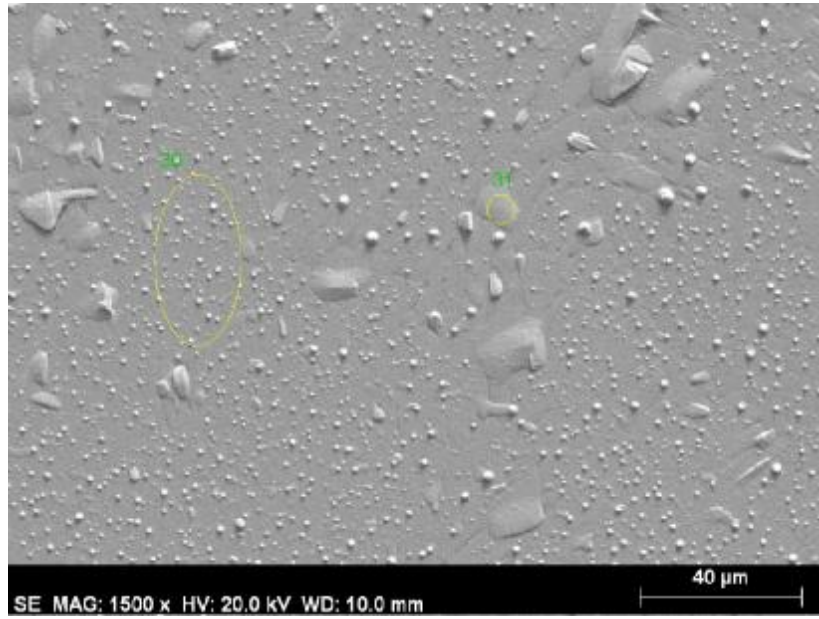
Total: 85.34 100.00 100.00

Şekil 4.27. 7 nolu deneme örneğine ait EDX sonuçları.

<b>8 Nolu Deneme</b>	
Altlık Konumu	ON-AXIS
Altlık Devri	57 derece/saniye
Hedef Devri	40 derece/saniye
Hedef Tarama	-10, +10 derece
Lazer Enerji Yoğunluğu	1.5 j/cm <sup>2</sup>
Lazer Gücü	14 kV
Lazer Spot Boyutu	3 mm <sup>2</sup>
Başlangıç Vakumu	9.1x10 <sup>-7</sup> Torr
Hedef-Altlık Mesafesi	3.5 cm



Şekil 4.28. 8 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.



30 Date:08/03/2012 14:47:08 HV:20.0kV Puls th.:7.44kcps

El AN Series un. C norm. C Atom. C Error  
[wt. %] [wt. %] [at. %] [%]

Ca	20	K-series	3.51	4.34	12.44	0.1
Cu	29	K-series	10.90	13.48	24.37	0.4
Sr	38	L-series	19.10	23.61	30.97	0.9
Bi	83	L-series	47.37	58.57	32.21	1.7

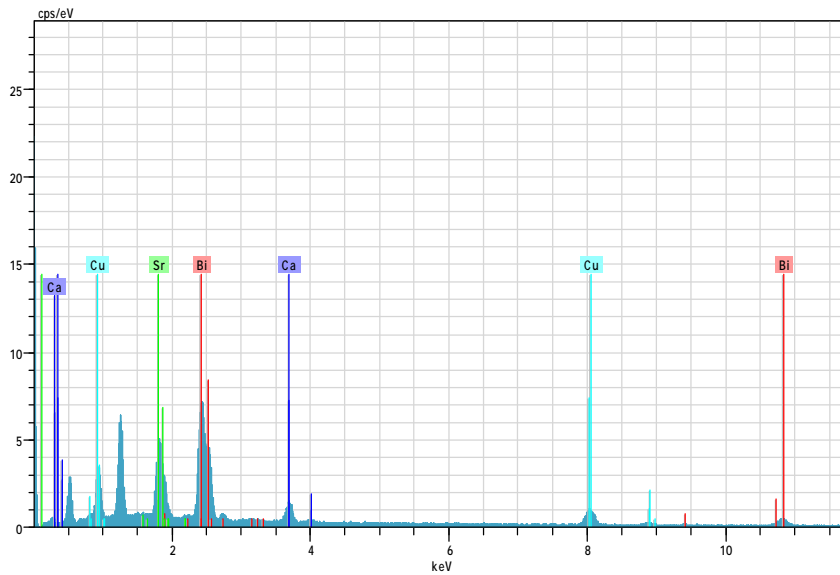
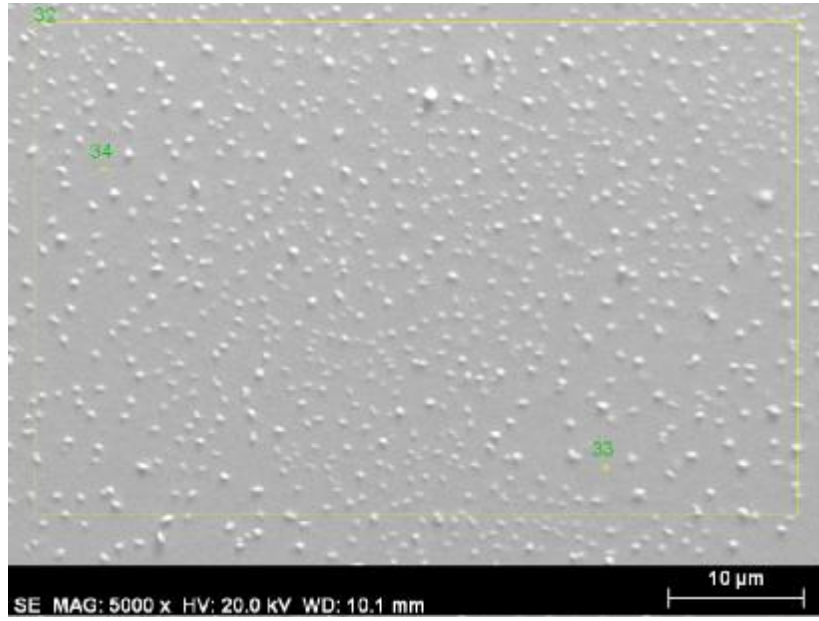
Total: 80.87 100.00 100.00

Şekil 4.29. 8 nolu deneme örneğine ait EDX sonuçları.

<b>9 Nolu Deneme</b>	
Altlık Konumu	OFF-AXIS
Altlık Devri	57 derece/saniye
Hedef Devri	40 derece/saniye
Hedef Tarama	-10, +10 derece
Lazer Enerji Yoğunluğu	1.3 j/cm <sup>2</sup>
Lazer Gücü	14 kV
Lazer Spot Boyutu	3 mm <sup>2</sup>
Başlangıç Vakumu	2x10 <sup>-6</sup> Torr
Hedef-Altlık Mesafesi	4 cm



Şekil 4.30. 9 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.



32 Date:08/03/2012 14:51:16 HV:20.0kV Puls th.:7.22kcps

El	AN	Series	unn. [wt.%]	C norm. [wt.%]	C Atom. [at.%]	C Error [%]
Ca	20	K-series	4.28	4.43	12.57	0.2
Cu	29	K-series	14.32	14.84	26.55	0.5
Sr	38	L-series	21.71	22.49	29.19	1.1
Bi	83	L-series	56.21	58.24	31.69	2.0
Total:			96.52	100.00	100.00	

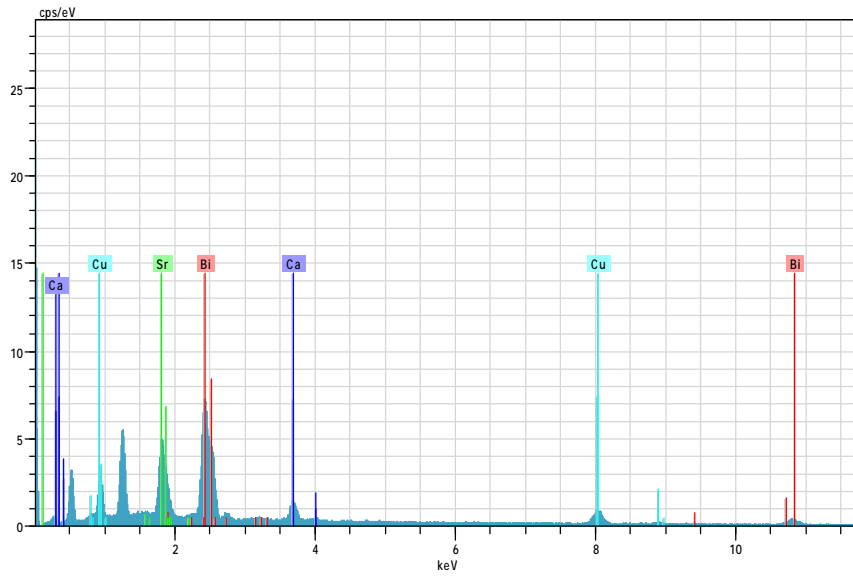
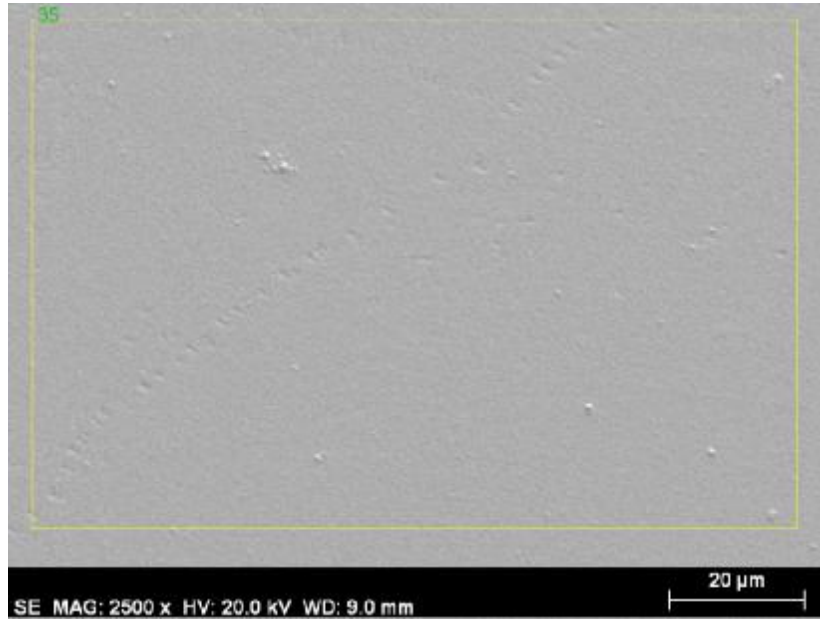
Şekil 4.31. 9 nolu deneme örneğine ait EDX sonuçları.



<b>10 Nolu Deneme</b>	
Altlık Konumu	OFF-AXIS
Altlık Devri	57 derece/saniye
Hedef Devri	40 derece/saniye
Hedef Tarama	-10, +10 derece
Lazer Enerji Yoğunluğu	1.3 j/cm <sup>2</sup>
Lazer Gücü	14 kV
Lazer Spot Boyutu	3 mm <sup>2</sup>
Başlangıç Vakumu	2.5x10 <sup>-6</sup> Torr
Hedef-Altlık Mesafesi	3.5 cm



Şekil 4.32. 10 nolu deneme örneğine ait PLD parametreleri.



35 Date:08/03/2012 14:56:36 HV:20.0kV Puls th.:7.03kcps

El	AN	Series	unn. [wt.%]	C norm. [wt.%]	C Atom. [at.%]	Error [%]
Ca	20	K-series	3.83	4.47	12.53	0.2
Cu	29	K-series	13.04	15.22	26.95	0.4
Sr	38	L-series	19.87	23.19	29.77	1.0
Bi	83	L-series	48.94	57.12	30.75	1.8

Total: 85.68 100.00 100.00

Şekil 4.33. 10 nolu deneme örneğine ait EDX sonuçları.

PLD parametreleri ve EDX sonuçları değerlendirildiğinde, 8 ve 10 nolu örneklerinin,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  fazına ait atomik sitokiyometriye yakın konsantrasyonlara sahip olduğu görülmektedir. Tüm denemeleri incelendiğinde 250 mTorr yığılma basıncının diğer basınç değerlerine göre daha uygun sonuçlar verdiği tespit edildi. Yığılma işlemi öncesinde altlık sıcaklığını  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  ye yükseltme işleminin, altlık yüzeyini yığılma işlemine hazırladığını (istenmeyen safsızlıkları uzaklaştırarak) düşünmek makul bir yaklaşım olacaktır. Düşük altlık sıcaklık değerlerinde yüzey yapısında partükülasyonlar açık bir şekilde görülmektedir ve genel yapı amorf özellik göstermektedir. Yüksek altlık sıcaklık değerlerinde ise daha geniş parçacık büyüklükleri ve küçük açılı yapılanmış, tabakalı yapılar gözlenmektedir. Zira  $900\text{ }^\circ\text{C}$  ve üzeri sıcaklıklar, BSCCO ailesinde kristalizasyon için yeter, hatta aşırı sıcaklıklardır. Genel olarak EDX sonuçlarında Bi elementinin yüksek yoğunlukta olması, Bi elementinin diğer elementlere kıyasla daha yüksek mobiliteye ve düşük erime noktasına sahip olması böylece yüzeyde yoğunlaşması ile açıklanabilir. Bu durumun aksi olduğu koşullarda ise ana yapıdan Bi elementinin kaçtığı düşünülmektedir. Tüm değerlendirmeler ışığında, 10 nolu denemenin en uygun sonuçlara sahip olduğu tespit edilerek, nihai  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmlerini üretmek için bu denemeye ait PLD parametreleri kullanıldı.

#### **4.4. Tavlama Sıcaklığının PLD Tekniği ile Üretilen $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ İnce Filmler Üzerindeki Etkisi**

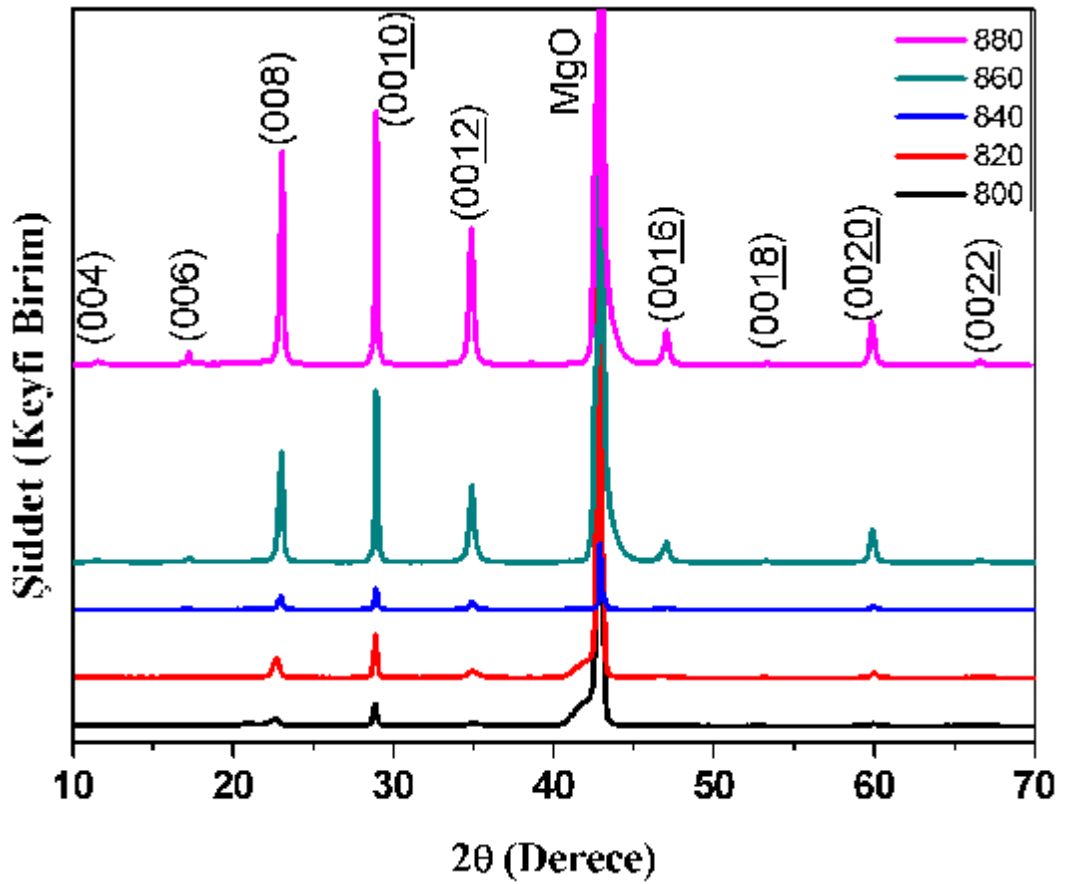
##### **4.4.1 Giriş**

Bu bölümde,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  hedef malzemesi kullanılarak Atımlı Lazer Yığılması (PLD) tekniği ile MgO altlıklar üzerine kaplanan ince filmler üzerinde, argon ve oksijen atmosferinde ve farklı sıcaklıklarda, ex-situ tavlama işleminin etkisi araştırıldı. PLD tekniği kullanılarak, aynı şartlarda kaplanan ince filmler, Argon ve Oksijen gazları karıştırılarak elde edilen atmosfer ortamında (Ar:93, O<sub>2</sub>:7) quartz boru içerisinde  $800, 820, 840, 860$  ve  $880\text{ }^\circ\text{C}$  sıcaklıklarda tavlandı. Üretilen örnekler üzerinde XRD, SEM, EDX, M-T, M-H ve R-T ölçümleri yapılarak analiz edildi.

Analizler sonucunda MgO tek kristaller üzerine PLD tekniği ile kaplanan  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmler için optimum tavlama sıcaklığı tespit edildi.

#### 4.4.2. XRD Sonuçları

Üretilen ince filmlerin XRD ölçümleri yapılarak, filmlerin kristal yapısı ve faz analizleri yapıldı. Farklı sıcaklıklarda tavllanmış, MgO (100) tek kristal altlıklar üzerine kaplanan filmlere ait x-ışını kırınım desenleri Şekil. 4.34 de verilmektedir.



Şekil 4.34. MgO altlık üzerine, farklı sıcaklıklarda büyütülen filmlerin XRD deseni.

XRD sonuçları incelendiğinde, tavlama sıcaklığının  $800^\circ\text{C}$  den  $880^\circ\text{C}$  ye kadar artırılmasıyla, ana faz karşılaştırmalı şiddetlerinin yükseldiği yani kristallizasyonun arttığı görülmektedir. Sıcaklık artışı ile kristal büyümenin artması beklenen bir durum olmakla beraber, (2212) ana faz yapısı,  $880^\circ\text{C}$  de az miktarda

materyal kaybına rağmen bozunmamıştır. 820 °C ve üzeri tavlama sıcaklıkları için ince filmlerde, (2212) tek faz olarak elde edilmiştir ve yine bu tavlama sıcaklığı değerleri için safsızlık ya da düşük sıcaklık fazları tespit edilememiştir. 800 °C de tavlanan ince filmin XRD ölçümlerinde, az miktarda (2201) düşük sıcaklık fazı görülmektedir. Tüm kristal düzlem piklerinin (001) indis sistemine ait olduğu yani kristal büyümenin, sadece MgO (100) düzleminde (2212) [100]/MgO [100] paralel yapısında ve c-ekseni yönelimli gerçekleştiği tespit edilmiştir. Kristal simetrisinin sözde tetragonal olduğu varsayımı ile farklı sıcaklıklarda tavlanan ince filmler için a, b ve c kristal örgü parametreleri hesaplanarak Çizelge 4.2. de özetlenmiştir. Üretilen filmler için Scherrer formülünü kullanarak kristal büyüklükler hesaplanmış (B. D. Cullity, 1978) ve Çizelge 4.4.1 de verilmiştir.

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

Burada L; kristal büyüklüğünü,  $\lambda$  ; kullanılan x-ışınının kaynağının dalga boyunu ( $Cu\lambda = 1,5405 \text{ \AA}$ ), FWHM; x-ışını piklerinin yarı maksimumdaki genişliğini ve  $\theta$ ; x-ışını piklerinin açı değerini temsil etmektedir.

Çizelge 4.2. Farklı sıcaklıklarda tavlanan ince filmlerin kristal örgü parametreleri ve kristal büyüklükleri.

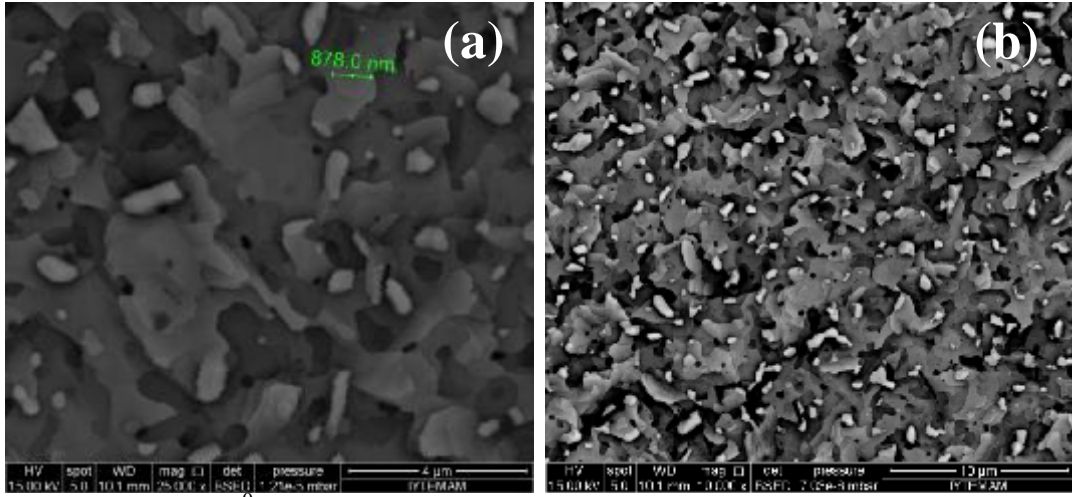
Tavlama Sıcaklığı	a≈b (Å)	c (Å)	Kristal Büyüklük L (Å)
880	5.4470	30.8681	589.64
860	5.4398	30.8696	565.03
840	5.4410	30.8896	461.48
820	5.4280	30.8672	430.45
800	5.4112	30.9101	388.44

Hesaplanan kristal büyüklükleri incelendiğinde, tavlama sıcaklığının artması ile kristal büyüklükleri artmaktadır. Oluşan maksimum kristal büyüklüğü, 880 °C

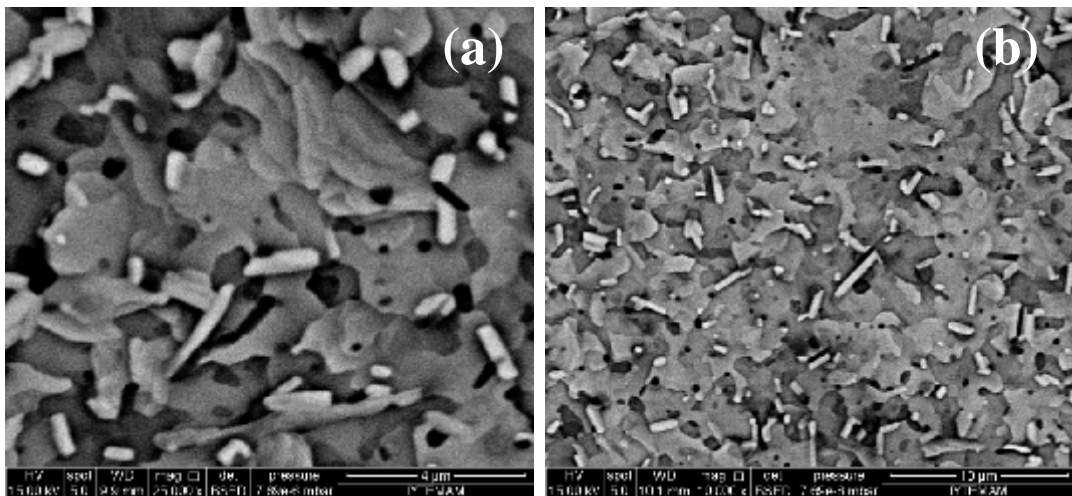
derece tavlama sıcaklığında büyütülen ince film için yaklaşık olarak 58,9 nm olarak hesaplanmıştır.

#### 4.4.3. SEM Sonuçları

Üretilen ince filmlerin taramalı elektron mikroskobu ölçümleri yapılarak, filmlerin, moleküler yapısı ve kristal büyüme mekanizmaları incelendi. 860 °C ve 880 °C de tavllanmış, MgO (100) tek kristal altlıklar üzerine büyütülen ince filmlere ait SEM fotoğrafları sırasıyla Şekil 4.35 ve Şekil 4.36 da verilmektedir.



Şekil 4.35. 860 °C de tavllanmış  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmine ait a) 25000 büyütmede ve b) 10000 büyütmede, SEM sonuçları.

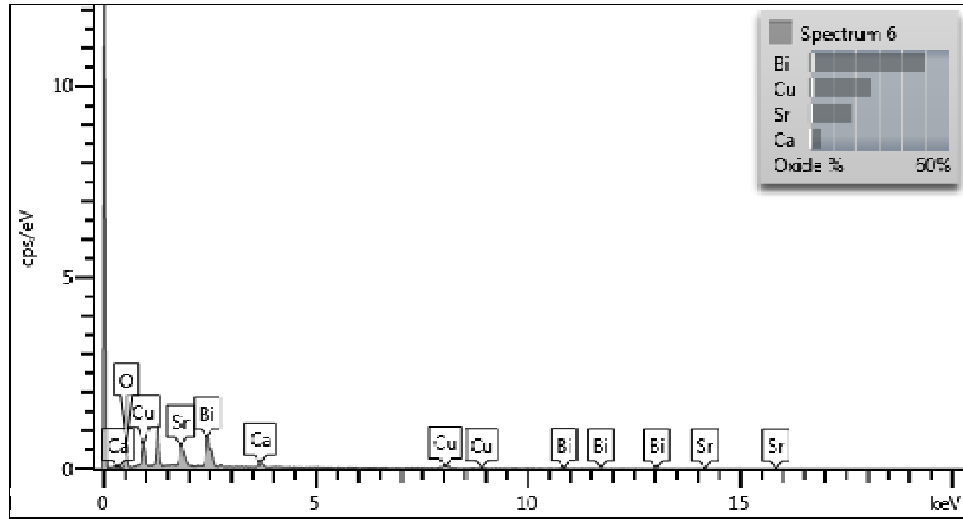
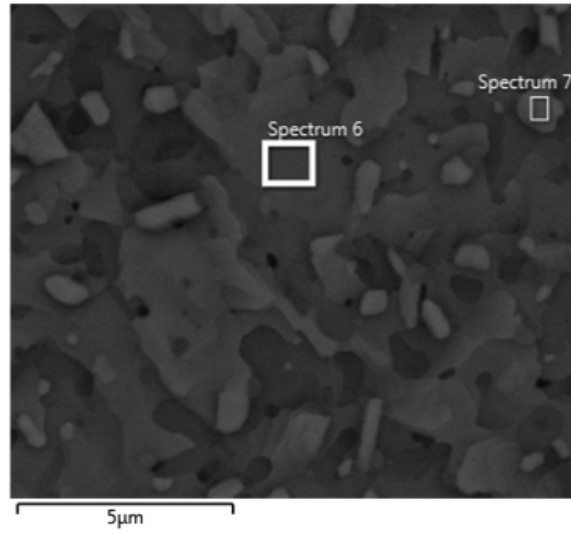


Şekil 4.36. 880 °C de tavllanmış  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmine ait a) 25000 büyütmede ve b) 10000 büyütmede, SEM sonuçları.

SEM görüntüleri incelendiğinde, ana fazların tabakalı bir yapıya sahip olduğu görülmektedir. Bu yapılanma BSCCO yüksek sıcaklık süperiletken ailesinin genel kristal büyüme şeklidir. Her iki sıcaklık değeri içinde ana matris geniş kristal tabakaları ve üst üste teras yapılanmalardan oluşmaktadır. Filmlerin yüzeyinde düzensiz tanecik sınırlarına sahip partükülasyon tarzında kristal büyüme ve poroziteler görülmektedir. VSM ölçümleri esnasında üretilen ince filmler helyum atmosferinde bulunmaktadır ve asal gazlar, malzeme öğütme ve yüzey aşındırma işlemlerinde kullanılabilir (U. F. Gianola, 1957). VSM ölçümlerinden çıkan ince filmlerin daha sonra SEM ölçümleri alınmıştır. Bu sebeple yüzeyin bir miktar deformasyona uğradığını düşünmekteyiz. 860 ve 880 °C de tavlanan ince filmlerin SEM fotoğrafları karşılaştırıldığında, tavlama sıcaklığının artması ile ana matristeki kristallerin daha da büyüyerek sıkı bir yapı oluşturduğu ve porozitenin azaldığı görülmektedir. Her iki tavlama sıcaklığı değerleri içinde ana matristeki genel kristal yapılanmanın, MgO (100) düzleminde ve (2212) [100]/MgO [100] paralel yapısında gerçekleştiği görülmektedir. Yine tavlama sıcaklığındaki artış ile birlikte c-ekseni yönünde oluşan teras yapılanmanın geliştiği görülmektedir.

#### 4.4.4. EDX Sonuçları

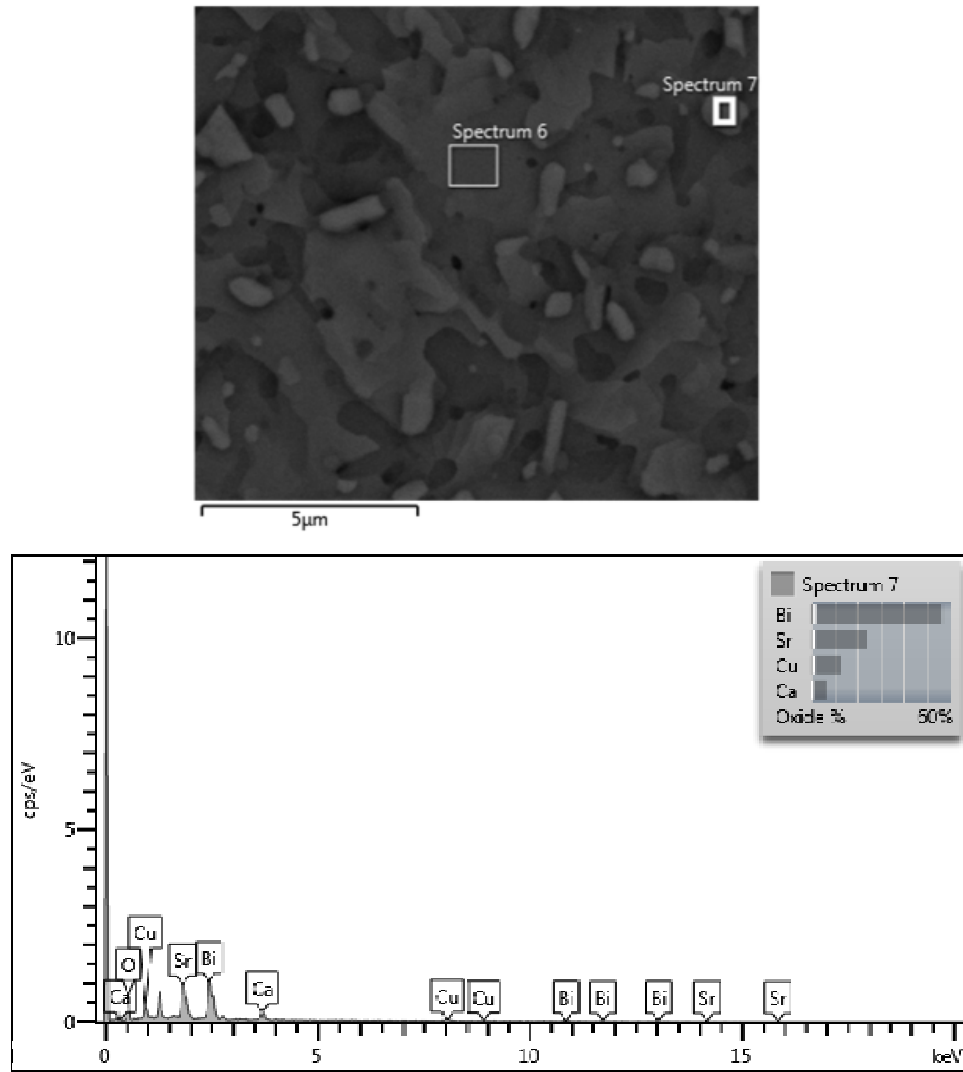
PLD tekniği ile MgO (100) altlıklar üzerine kaplanan ve tavlama işlemi öncesinde EDX ölçümleri yapılarak, başarılı bir stokiyometriye sahip olduğu tespit edilen filmler daha sonrasında farklı sıcaklıklarda tavlандılar. 860 °C de tavlanan ince filmin EDX ölçümü yapılarak, tavlama sonrasında oluşan yapının atomik yoğunluğu analiz edilerek sonuçlar, Şekil 4.37 ve Şekil 4.38 de verilmektedir.



Element	Wt%	Atomic %
O	14.76	53.10
Ca	3.54	5.08
Cu	21.35	19.34
Sr	15.38	10.10
Bi	44.96	12.38
Total:	100.00	100.00

Şekil 4.37. 860 °C de tavlınmış  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filminin spectrum 6 bölgesine ait EDX sonuçları.





Element	Wt%	Atomic %
O	14.02	53.73
Ca	4.89	7.49
Cu	10.22	9.86
Sr	20.04	14.02
Bi	50.83	14.91
Total:	100.00	100.00

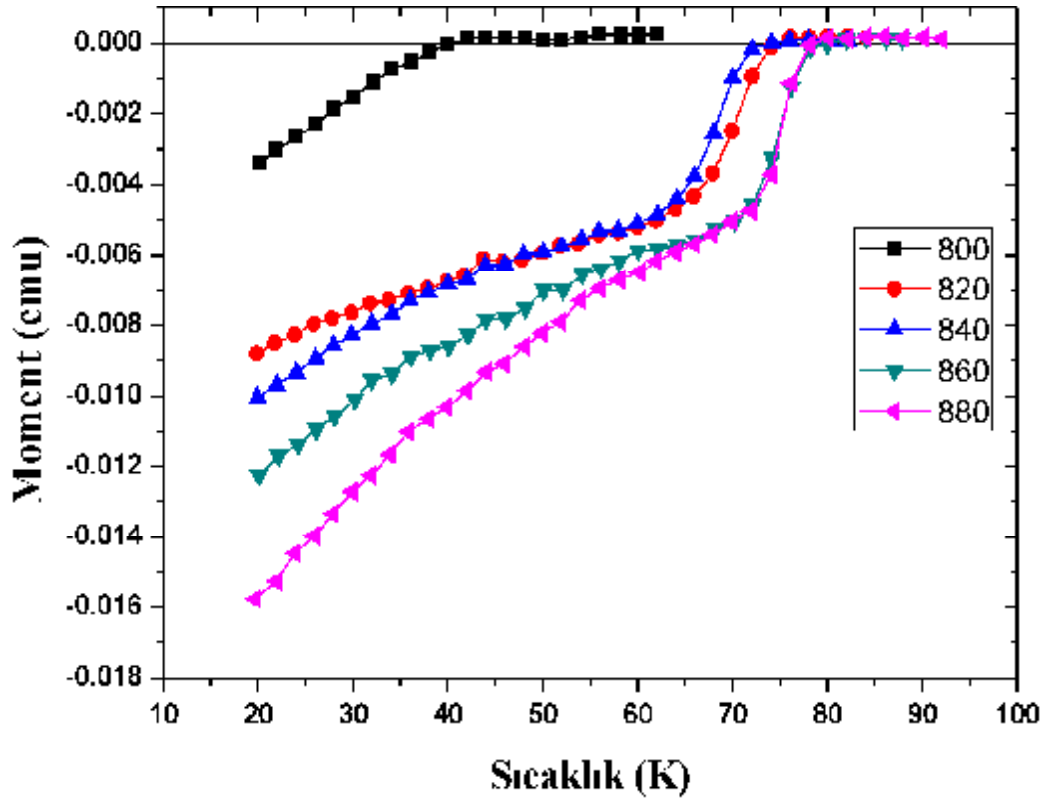
Şekil 4.38. 860 °C de tavllanmış  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filminin spectrum 7 bölgesine ait EDX sonuçları.

860 °C sıcaklığında tavlanan ince filmin EDX sonuçları incelendiğinde, spectrum 6 bölgesine ait atomik oranlarda Cu oranının bir miktar fazla ve O oranının bir miktar az olduğu görülmektedir. Spectrum 7 bölgesinin atomik oranları

incelendiğinde ise Cu ve O miktarlarının,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ideal yoğunluğuna göre bir miktar az olduğu görülmektedir. Yüksek sıcaklık süperiletken malzemelerde, özellikle YBCO ve BSCCO ailelerinde  $\text{O}_2$  yoğunluğu çok önemlidir. Zira a-b düzlemleri üzerine c-ekseni yönünde kristal yapının tamamlanabilmesi için yeter miktarda oksijene ihtiyaç duyulmaktadır. Bu sebeple ısı işlem esnasında özellikle YBCO ailesinde tavlama işlemini oksijen atmosferinde yapmak kristal büyümeyi ve dolayısıyla transport özelliklerin gelişmesine sebep olmaktadır. Genel olarak Cu-O tabakaları bu ailelerde iletimden esas sorumlu tabakalar olarak görülmektedir. Bu sebeple yapıda özellikle oksijen ve bakır yoğunlukları transport özellikler açısından önemlidir.

#### 4.4.5. M(T) DC Manyetizasyon Sonuçları

Süperiletken malzemeler, yeterince zayıf bir manyetik alan altında  $T_c$  kritik geçiş sıcaklığının altına kadar soğutulursa, Meissner durumuna geçerek, diyamanyetik özellik gösterir. Süperiletken duruma geçildiğinde, malzeme yüzeyinde nüfuz etme uzunluğu  $\lambda$  kadar derinlikte akan yüzey akımları sayesinde, uygulanan dış manyetik alana zıt yönde oluşan, negatif bir manyetik alan indüklenir. Böylece sıcaklık bağımlı manyetizasyon ölçümlerinde  $T_c$  kritik sıcaklık üzerinde zayıf paramanyetik bir sinyal gösteren süperiletken malzeme,  $T_c$  kritik sıcaklık değeri altında diyamanyetik davranış göstererek pozitif mıknatıslanma değerlerinden, negatif mıknatıslanma değerlerine geçiş yapar. Böylece zıt manyetizasyon değerine geçilen sıcaklık, kritik geçiş sıcaklığı olarak belirlenir ve süperiletken malzemenin genel faz yapısı hakkında bilgi verir. Bu sebeple M-T ölçümleri, diğer kritik sıcaklık belirleme yöntemlerine (R-T ve  $C_v$ -T) göre daha kabul gören bir ölçüm tekniğidir. Üretilen ince filmlerin sıcaklık bağımlı manyetizasyon ölçümleri VSM (Titreşimli Örnek Manyetometresi) ile yapılarak, süperiletken kritik geçiş sıcaklıkları tespit edildi. Farklı sıcaklıklarda tavllanmış, MgO (100) tek kristal altlıklar üzerine kaplanan filmlere ait M(T) eğrileri Şekil. 4.39 da verilmektedir.

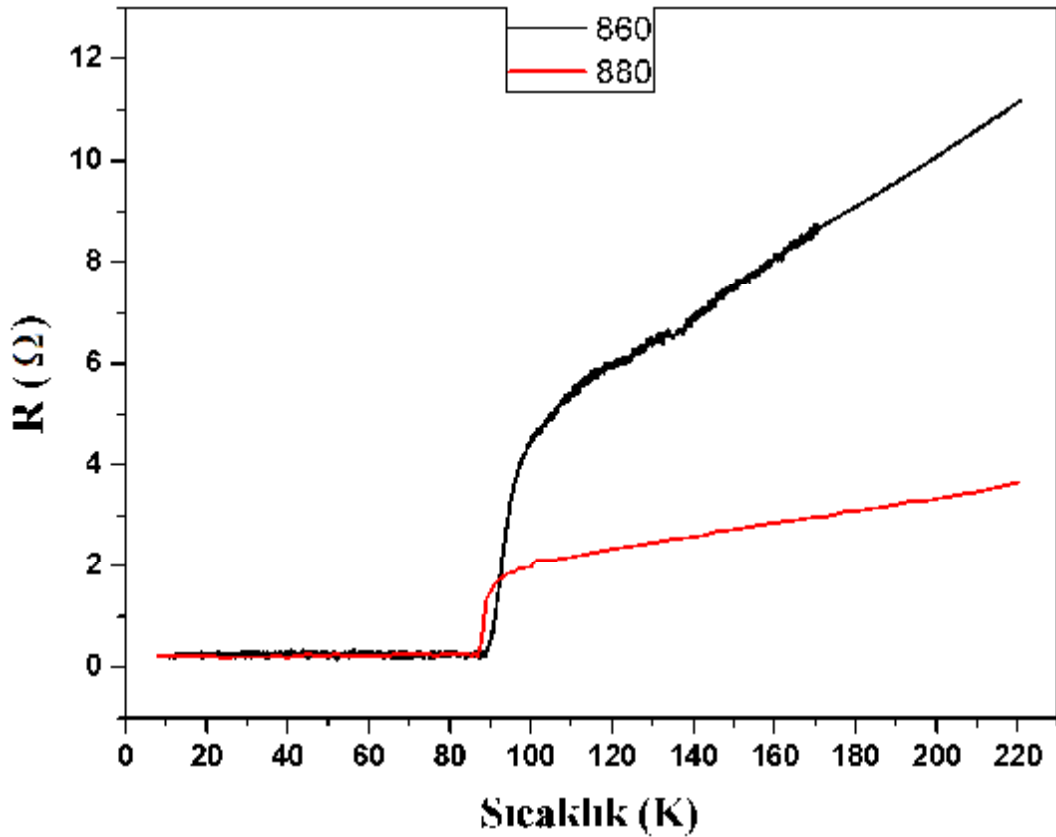


Şekil 4.39. MgO altlık üzerine, farklı sıcaklıklarda büyütülen filmlerin 50 Oe alan altında, sıcaklık bağımlı manyetizasyon eğrileri.

M(T) eğrileri incelendiğinde, 800, 820, 840, 860 ve 880 °C de tavlanan ince filmlere ait süperiletken geçiş sıcaklıkları sırasıyla 42, 75, 76, 82 ve 80 K olarak tespit edilmiştir. 800 °C üzerindeki tavlama sıcaklıkları için kritik geçiş sıcaklıkları civarında filmler keskin süperiletken geçişler göstermektedir. Keskin geçiş sıcaklıklarının altlık yüzey morfolojisi ve kalitesiyle doğrudan ilişkisi bulunmaktadır (Ishii, 2002). 800 °C de tavlanan filmin 42 K geçiş sıcaklığı ile düşük sıcaklık ana fazına sahip olduğu görülmektedir. 82 K süperiletken geçiş sıcaklığı ile 860 °C de tavlanan  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince film, hedef malzemenin 85 K geçiş sıcaklığından 3 K altında bir değere sahiptir.

#### 4.4.6. R(T) Direnç Sonuçları

Üretilen ince filmlerin sıcaklık bağımlı direnç ölçümleri yapılarak, filmlerin, sıfır direnç ( $R=0$ ) süperiletkenlik geçiş sıcaklıkları belirlendi.  $860^{\circ}\text{C}$  ve  $880^{\circ}\text{C}$  de tavllanmış, MgO (100) tek kristal altlıklar üzerine büyütülen ince filmlere ait R-T ölçümleri Şekil 4.40 da verilmektedir.



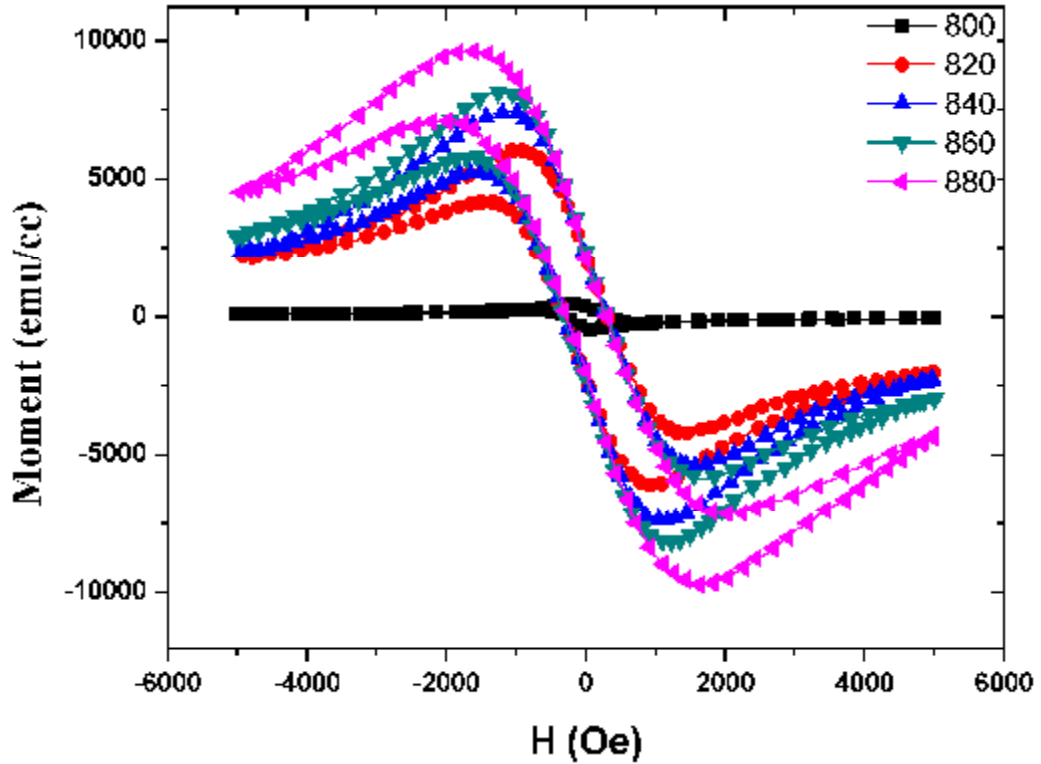
Şekil 4.40.  $860^{\circ}\text{C}$  ve  $880^{\circ}\text{C}$  de tavllanmış  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmine ait R-T sonuçları.

Sıcaklık bağımlı direnç ölçümleri incelendiğinde,  $860^{\circ}\text{C}$  de tavlanan  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmin  $89\text{ K}$ ,  $880^{\circ}\text{C}$  de tavlanan filmin ise  $87\text{ K}$  süperiletken sıfır direnç geçiş sıcaklığına sahip olduğu belirlenmiştir. Şekil 4.40 dan açık bir şekilde görüldüğü gibi her iki filmde net bir şekilde tek faz geçişi yapılmaktadır.  $T_c$  kritik sıcaklık üzerinde her iki film de metalik davranış göstermektedir. Transport ölçümlerde geçiş sıcaklık değerleri diğer ölçüm tekniklerine kıyasla daha yüksek

sıcaklık değerleri almaktadır. Bu sebeple bizim örneklerimiz için sıcaklık bağımlı direnç ölçümleri ile elde edilen geçiş sıcaklıkları, sıcaklık bağımlı manyetizasyon ölçümleri ile elde edilen geçiş sıcaklıklarından yaklaşık 7 K yukarıdadır. Bunun sebebi akımın ilk süperiletken duruma geçen yerel patikaları, yani dirençsiz bölgeleri tercih ederek, iyi yapılanmış bölgelere ait sinyalleri göstermesi ile açıklanabilir. 860 °C tavlanan filmin  $\Delta T = 6$  K süperiletken geçiş aralığına ve 880 °C de tavlanan filmin ise  $\Delta T = 5$  K geçiş aralığına sahip olduğu tespit edilmiştir. Süperiletken geçiş aniden olmayan uzun erimli bir faz geçişidir (Ginzburg et al.). Fakat  $\Delta T$  geçiş aralığı ne kadar dar ise süperiletkenlik özelliklerinin o nispette iyi ve malzemenin yeter miktarda oksitlenmiş olması beklenen bir olgudur.

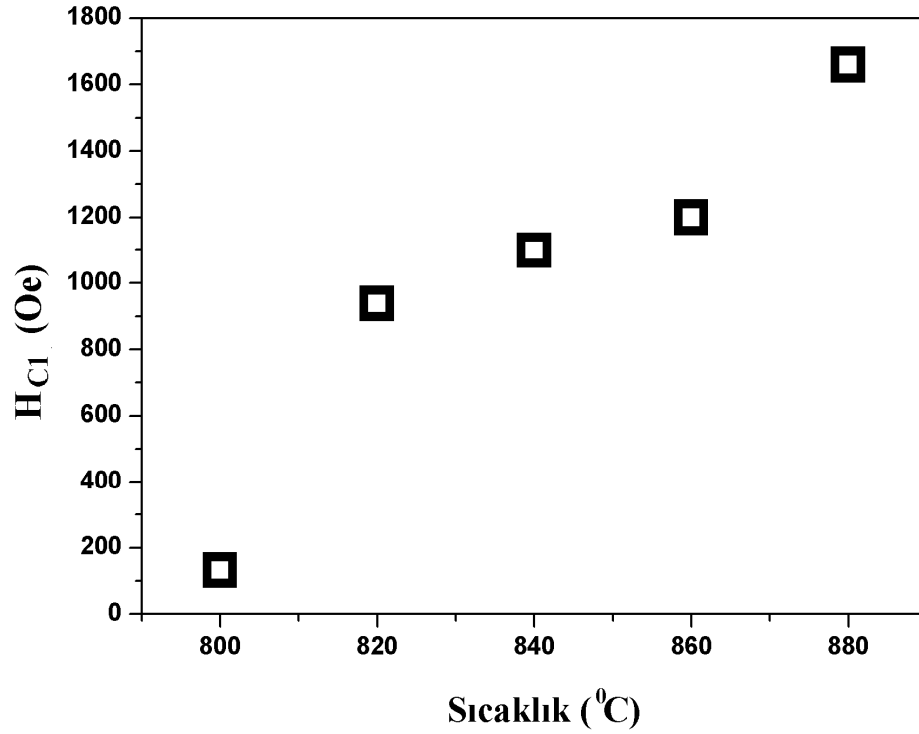
#### 4.4.7. M(H) DC Manyetizasyon Sonuçları

Süperiletken malzemelerin, uygulanan dış bir manyetik alan altındaki davranışları, bu malzemelerin süperiletken özelliklerinin anlaşılması ve karakterize edilmesi açısından çok önemlidir. Bu amaçla yapılan alan bağımlı manyetizasyon ölçümleri, üretilen malzemenin,  $T_c$  süperiletken kritik geçiş sıcaklığı,  $H_c$  kritik alan değeri ve bu ölçümlerden elde edilen veriler ile yarı ampirik formüllerle hesaplanabilen (Bean, 1962)  $J_c$  kritik akım yoğunluğu parametrelerini tespit etmek için kullanılır. Üretilen ince filmler için M(H) histerisiz ölçümleri yapılarak analiz edilmiştir. Burada manyetik alan film yüzeyine dik bir şekilde uygulanmıştır. Farklı sıcaklıklarda tavllanmış, MgO (100) tek kristal altlıklar üzerine büyütülen ince filmlere ait histerisiz ölçümleri Şekil 4.41 de verilmektedir.



Şekil 4.41. MgO altlık üzerine, farklı sıcaklıklarda büyütülen filmlerin 10 K de alan bağımlı manyetizasyon (Histerisiz) eğrileri.

10 K de yapılan histerisiz ölçümleri incelendiğinde, tavlama sıcaklığının, 800 °C den 880 °C ye kadar artmasıyla histerisiz eğrileri düzenli olarak genişlemektedir. Bu durum sıcaklık artışıyla artan, kristalizasyon etkisi ile daha geniş tanecik boyutlarına ulaşılması ve dolayısı ile tanecik sınırlarında oluşan zayıf bağ tipinin azalmasıyla açıklanmaktadır. Bu zayıf bağ (weak-link) etkisinin azalması taşıma kapasitesini arttırmakta, ayrıca girdap çivileme mekanizmasına katkıda bulunmaktadır. 800 °C de tavlanan ince filme ait histerisiz eğrisi tipik (2201) fazına ait bir davranış göstermektedir. Tüm örnekler klasik BSCCO II. Tip süperiletken davranışı göstermektedir. Yani kritik  $H_{c1}$  manyetik alanına kadar artan zıt manyetizasyon ve  $H_{c1}$  sonrasında, uygulanan alan arttıkça örnek içerisine girdaplar şeklinde akı sızması ile zıt manyetizasyonun azalması şeklinde bir karakteristik görülmektedir. Sıcaklık artışı ile birlikte  $H_{c1}$  kritik alan değeri de artmaktadır. Tavlama sıcaklığı bağımlı oluşan  $H_{c1}$  değerleri Şekil 4.42 de görülmektedir.

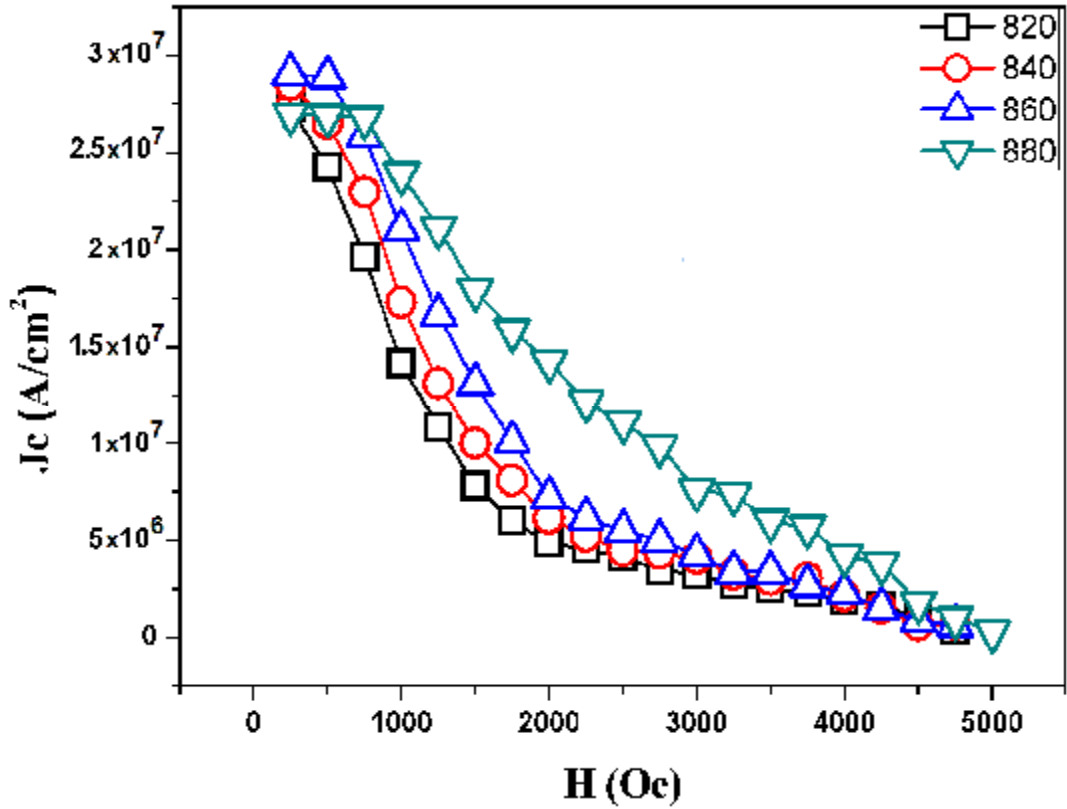


Şekil 4.42. MgO altlık üzerine, farklı sıcaklıklarda büyütülen filmlere ait 10 K sıcaklığında H<sub>C1</sub> kritik alan değerleri.

Farklı sıcaklıklarda tavlanan ince filmler için, histerisiz eğrileri kullanılarak,

$$J_c = \frac{60I |\chi_3|}{I(3I-1)} \quad (4.2.)$$

Bean modeline göre alan bağımlı J<sub>c</sub> kritik akım yoğunluğu değerleri hesaplandı, burada ΔM = M<sub>+</sub> – M<sub>-</sub> değeri histerisiz eğrisinden elde edilen (M<sub>+</sub> pozitif manyetizasyonu ve M<sub>-</sub> negatif manyetizasyonu gösterir) mıknatıslanma farkı değeri, a ve b ise ince filmlerin santimetre (cm) cinsinden boyutlarıdır. 820, 840, 860 ve 880 °C de tavlanan filmlerin, hesaplanan alan bağımlı J<sub>c</sub> kritik akım yoğunluğu değerleri Şekil 4.43 de görülmektedir.



Şekil 4.43. MgO altlık üzerine, farklı sıcaklıklarda büyütülen filmlere ait 10 K sıcaklığında kritik akım yoğunluğu değerleri.

Hesaplanan  $J_c$  kritik akım yoğunluğu sonuçları incelendiğinde en yüksek kritik akım yoğunluğu değerinin  $3 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup> ile 860 °C de tavlanan  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filme ait olduğu tespit edilmiştir. Tüm filmlerin artan alanla birlikte  $J_c$  kritik akım yoğunluğu değeri düşmektedir. 860 ile 880 °C de tavlanan örnekler karşılaştırıldığında, 860 °C de tavlanan örneğin düşük alanlarda daha yüksek kritik akım yoğunluğuna sahip olduğu görülmektedir. 860 °C üzerinde artan tavlama sıcaklığında yapısal bozunma etkisi ile kalıcı mıknatıslanma değerinin düşerek daha düşük taşıma yoğunluğuna sebep olduğu düşünülmektedir.



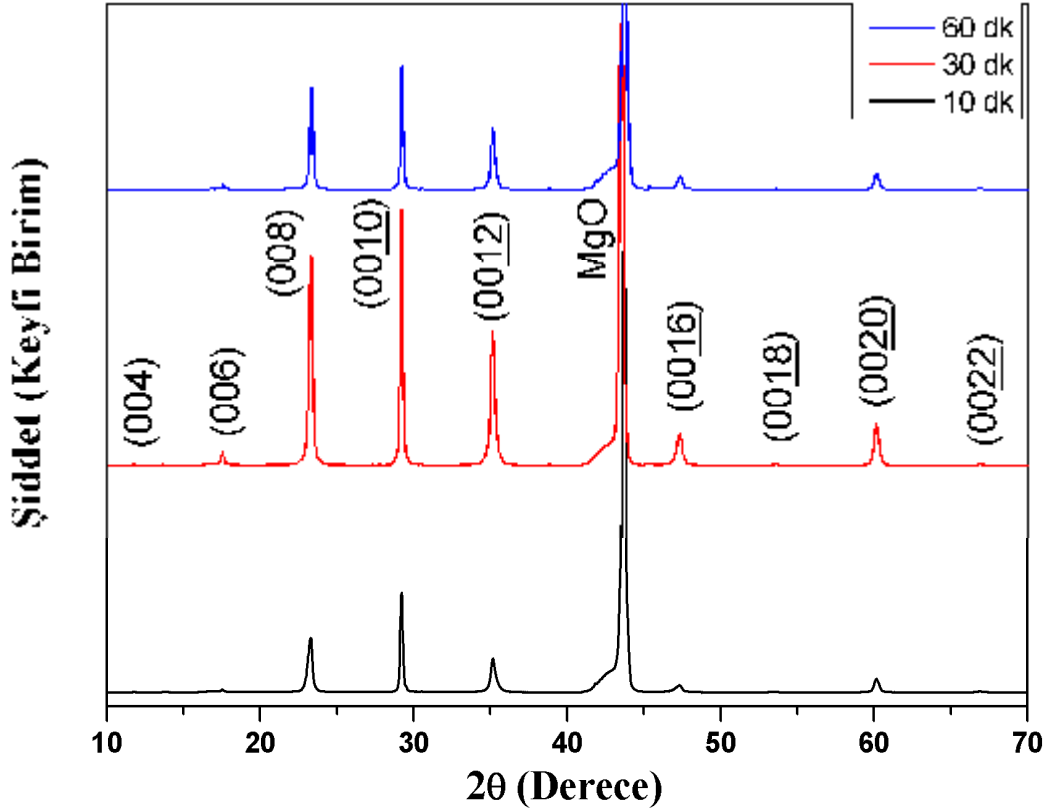
#### 4.5. Tavlama Süresinin PLD Tekniği ile Üretilen $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ İnce Filmler Üzerindeki Etkisi

##### 4.5.1. Giriş

Bölüm 4.4 de farklı tavlama sıcaklıkları için yapılan araştırma sonuçları değerlendirilerek, PLD tekniği ile üretilen  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmler için optimum tavlama sıcaklığı  $860\text{ }^\circ\text{C}$  olarak belirlendi. Bu bölümde, Polietilemin tekniği ile hazırlanan  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  hedef malzemesi kullanılarak Atımlı Lazer Yığılımı (PLD) tekniği ile MgO altlıklar üzerine kaplanan ince filmler üzerinde, argon-oksijen atmosferinde ve  $860\text{ }^\circ\text{C}$  de farklı süreler için, ex-situ tavlama işleminin etkisi araştırıldı. PLD tekniği kullanılarak, aynı şartlarda kaplanan ince filmler, Argon ve Oksijen gazları karıştırılarak elde edilen atmosfer ortamında ( $\text{Ar}:93, \text{O}_2:7$ ) quartz boru içerisinde  $860\text{ }^\circ\text{C}$  de 10, 30 ve 60 dakika süreyle tavlandı. Üretilen örnekler üzerinde XRD, SEM, M-T, M-H ve R-T ölçümleri yapılarak analiz edildi. Analizler sonucunda MgO tek kristaller üzerine PLD tekniği ile kaplanan  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmler için optimum tavlama süresi tespit edildi.

##### 4.5.2. XRD Sonuçları

Üretilen ince filmlerin XRD ölçümleri yapılarak, filmlerin kristal yapısı ve faz analizleri yapıldı.  $860\text{ }^\circ\text{C}$  de farklı sürelerde tavllanmış, MgO (100) tek kristal altlıklar üzerine kaplanan filmlere ait x-ışını kırınım desenleri Şekil. 4.44 de verilmektedir.



Şekil 4.44. MgO altlık üzerine, 860 °C de farklı sürelerde tavlanan filmlerin XRD deseni.

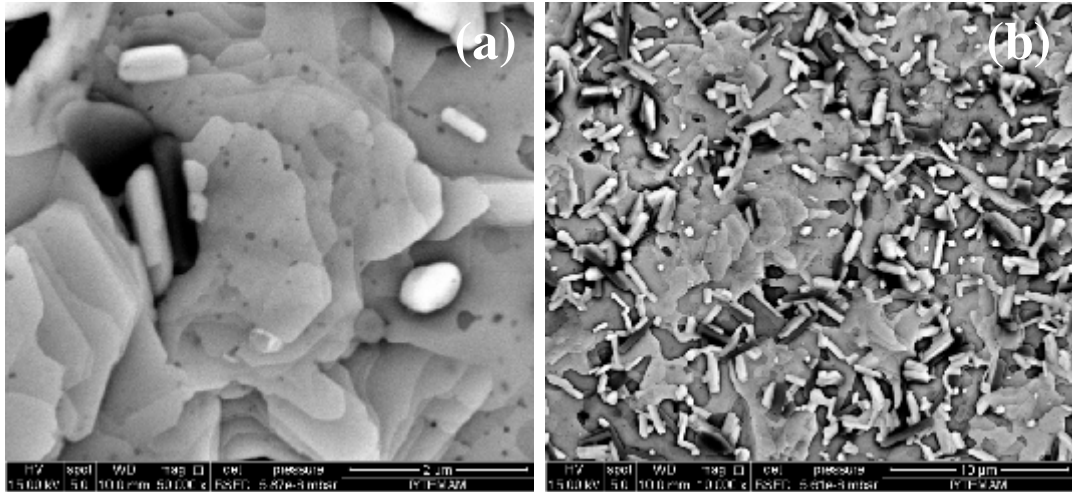
XRD sonuçları incelendiğinde, 860 °C de tavlama süresinin 10 dakikadan 30 dakikaya artması ile ana faz karşılaştırmalı kristal pik şiddetlerinin arttığı fakat 30 dakikadan 60 dakikaya yükseltildiğinde piklerin genişleyerek, şiddetlerinin azaldığı görülmektedir. Bu sebeple, 30 dakika tavlama süresi sonrasında kristal yapının oksijen kaybederek bozulduğunu düşünmekteyiz. 860 °C de tüm tavlama süreleri için ince filmlerde, (2212) ana faz olarak elde edilmiştir. Buna rağmen 10 ve 60 dakika tavlanan filmlerde çok zayıf dahi olsa düşük sıcaklık (2201) fazına ait piklerde tespit edilebilmektedir. 860 °C de 30 dk tavlanan filme ait tüm kristal düzlem piklerinin (00L) indis sistemine ait olduğu yani kristal büyümenin, sadece MgO (100) düzleminde (2212) [100]//MgO [100] paralel yapısında ve c-ekseni yönelimli gerçekleştiği tespit edilmiştir. Kristal simetrisinin sözde tetragonal olduğu varsayımı ile 860 °C de farklı sürelerde tavlanan ince filmler için a, b ve c kristal örgü parametreleri ve Scherrer formülünü (B. D. Cullity, 1978) kullanarak hesaplanan kristal büyüklükleri Çizelge 4.3 de verilmiştir.

Çizelge 4.3. Farklı sıcaklıklarda tavlanan ince filmlerin kristal örgü parametreleri ve kristal büyüklükleri.

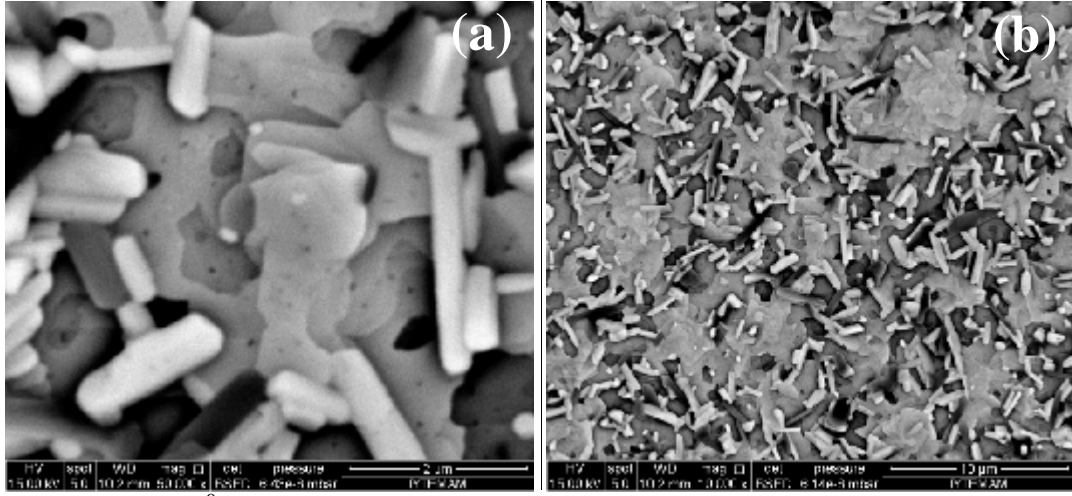
860 °C de Tavlama Süresi	a≈b (Å)	c (Å)	Kristal Büyüklük L (Å)
10 dakika	5.4069	30.9609	560.29
30 dakika	5.4169	30.8608	537.16
60 dakika	5.4250	30.8864	570.30

#### 4.5.3. SEM Sonuçları

Üretilen ince filmlerin taramalı elektron mikroskobu ölçümleri yapılarak, filmlerin, moleküler yapısı ve kristal büyüme mekanizmaları incelendi. 860 °C de 30 dakika ve 60 dakika süresince tavllanmış, MgO (100) tek kristal altlıklar üzerine büyütülen ince filmlere ait SEM fotoğrafları sırasıyla Şekil 4.45 ve Şekil 4.46 da verilmektedir.



Şekil 4.45. 860 °C de 30 dakika tavllanmış  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmine ait a) 50000 büyütmede ve b) 10000 büyütmede, SEM sonuçları.

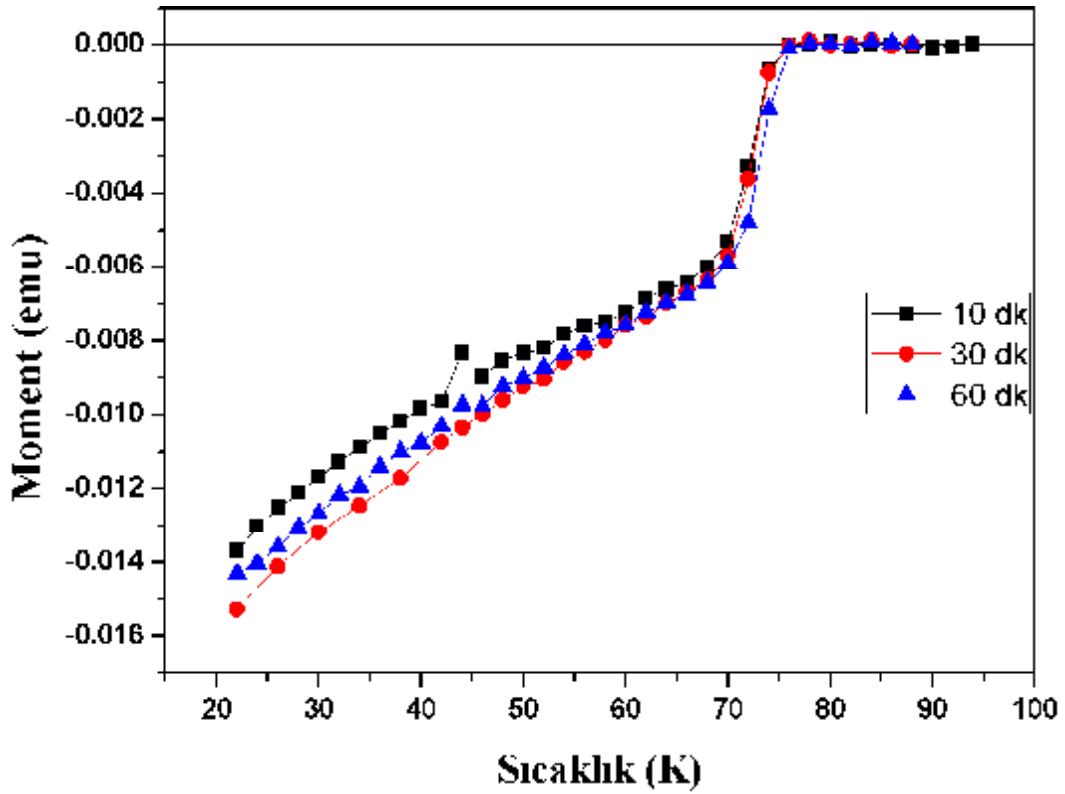


Şekil 4.46. 860 °C de 60 dakika tavllanmış  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmine ait a) 50000 büyütmede ve b) 10000 büyütmede, SEM sonuçları.

SEM görüntüleri incelendiğinde, ana fazların tabakalı bir yapıya sahip olduğu görülmektedir. Her iki tavlama süresi içinde ana matris geniş kristal tabakaları ve üst üste teras yapılanmalardan oluşmaktadır. Filmlerin yüzeyinde düzensiz tanecik sınırlarına sahip partükülasyon tarzında kristal büyüme ve poroziteler görülmektedir. VSM ölçümleri sebebiyle yüzeyin bir miktar deformasyona uğradığı belirlenmiştir. Ayrıca yüzeyde bazı tabakalar üzerinde görülen siyah noktaların XRD ölçümleri sonrasında oluşan x-ışını izleri olduğunu düşünülmektedir. 30 dakika ve 60 dakika tavlanan ince filmlerin SEM fotoğrafları karşılaştırıldığında, tavlama süresinin artması ile ana matriste kayda değer bir değişimin meydana gelmediği, hatta 30 dakika tavlanan örnekte daha iyi istiflenmiş teras yapılar oluştuğu görülmektedir. Her iki tavlama süresi içinde ana matristeki genel kristal yapılanmanın, MgO (100) düzleminde ve (2212) [100]/MgO [100] paralel yapısında gerçekleştiği görülmektedir.

#### 4.5.4. M(T) DC Manyetizasyon Sonuçları

Üretilen ince filmlerin sıcaklık bağımlı manyetizasyon ölçümleri VSM (Titreşimli Örnek Manyetometresi) ile yapılarak, süperiletken kritik geçiş sıcaklıkları tespit edildi. 860 °C farklı sürelerde tavllanmış, MgO (100) tek kristal altlıklar üzerine kaplanan filmlere ait M(T) eğrileri Şekil. 4.47 de verilmektedir.

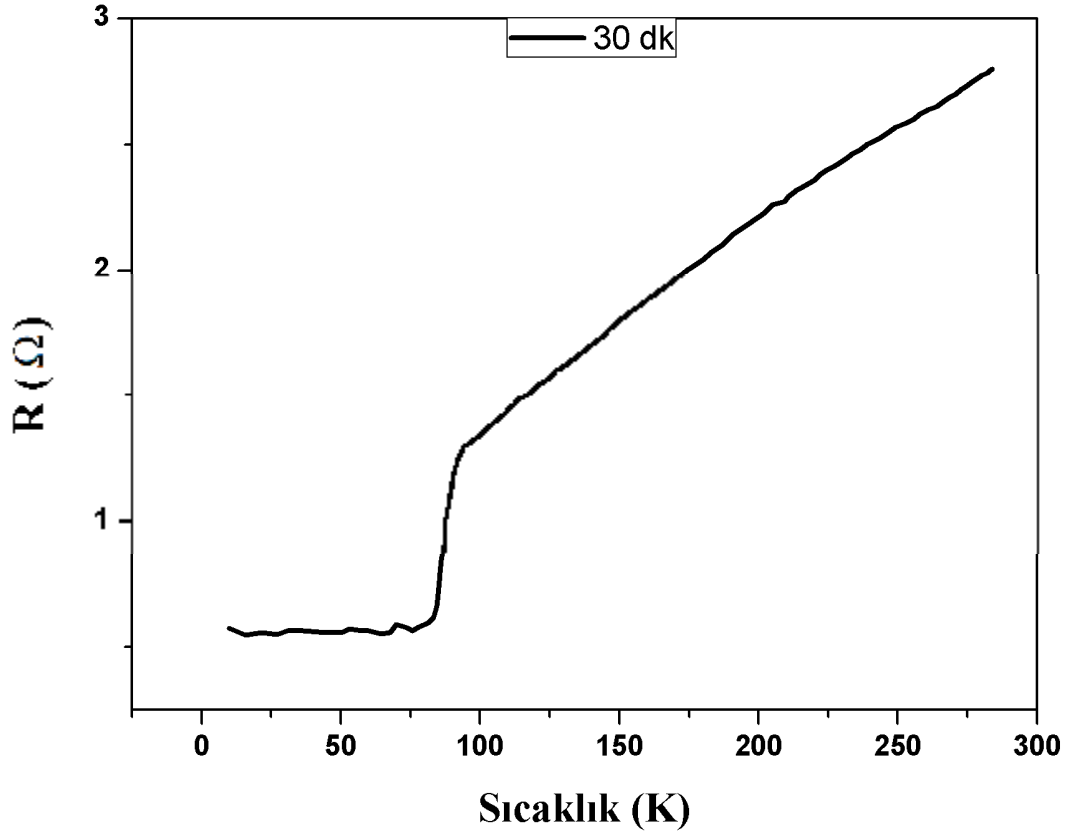


Şekil 4.47. MgO altlık üzerine, 860 °C de farklı sürelerde tavlanan filmlerin 50 Oe alan altında, sıcaklık bağımlı manyetizasyon eğrileri.

M(T) eğrileri incelendiğinde, 10 dakika, 30 dakika ve 60 dakika tavlanan ince filmlere ait süperiletken geçiş sıcaklıkları sırasıyla 77, 78 ve 78 K olarak tespit edilmiştir. 800 °C de tüm tavlama süreleri için kritik geçiş sıcaklıkları civarında filmler keskin süperiletken geçişler göstermektedir.

#### 4.5.5. R(T) Direnç Sonuçları

860 °C de 30 dakika tavlanan  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmin sıcaklık bağımlı direnç ölçümü yapılarak, sıfır direnç ( $R=0$ ) süperiletkenlik geçiş sıcaklığı belirlendi. 860 °C de 30 dakika tavlansak, MgO (100) tek kristal altlıklar üzerine büyütülen ince filmin ait R-T ölçümü Şekil 4.48 de verilmektedir.

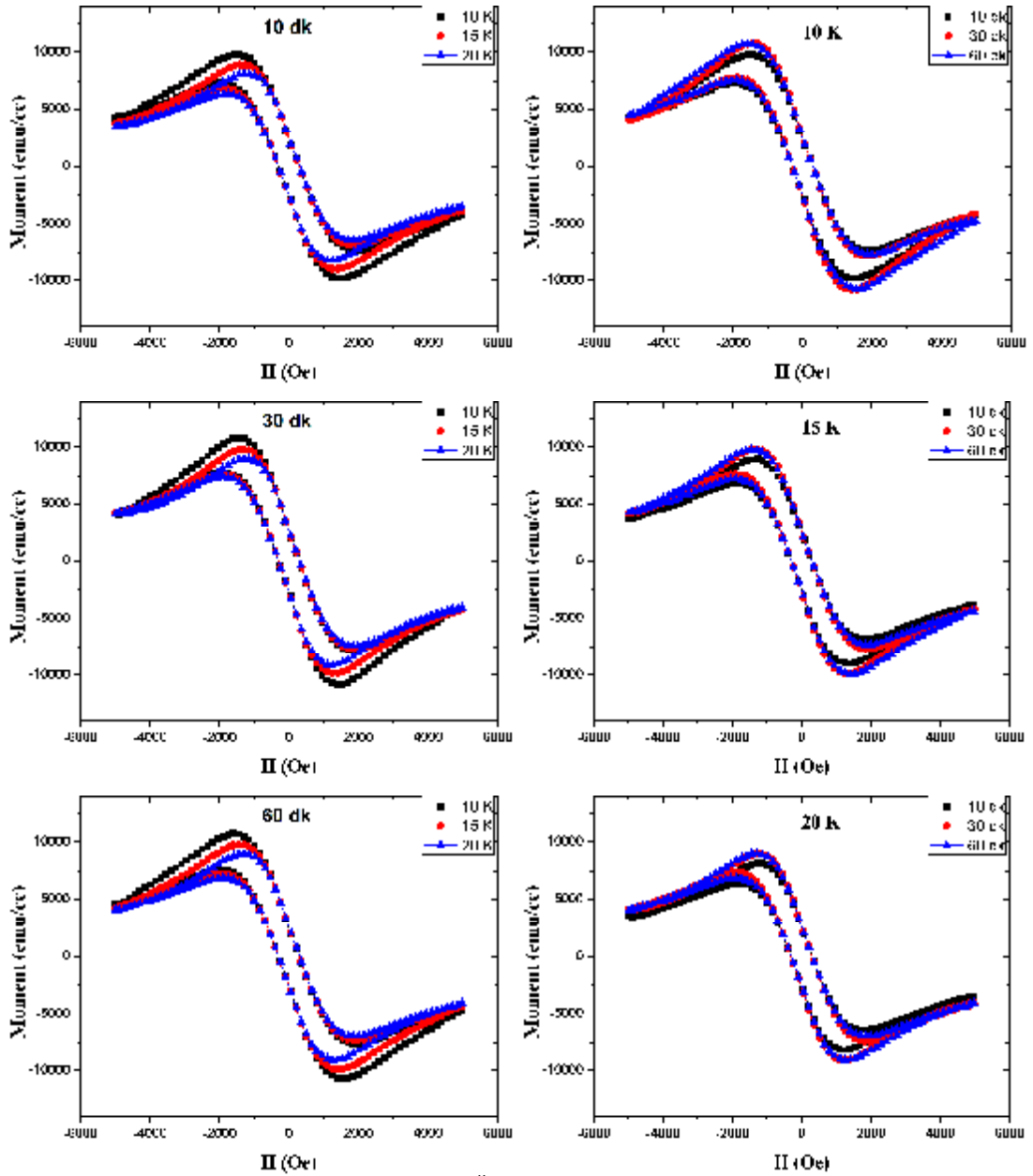


Şekil 4.48. 860 °C de 30 dk tavllanmış Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub> ince filmine ait R-T sonucu.

Sıcaklık bağımlı direnç ölçümü incelendiğinde, 860 °C de 30 dakika tavlanan Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub> ince filmin 82 K de sıfır direnç geçiş sıcaklığına sahip olduğu belirlenmiştir. Şekil 4.48 den açık bir şekilde görüldüğü gibi 30 dakikada tavlanan ince film net bir şekilde tek faz geçişi yapmaktadır. T<sub>c</sub> kritik sıcaklık üzerinde ise metalik davranış göstermektedir. Süperiletken geçiş aralığı  $\Delta T = 7$  K olarak belirlenmiştir.

#### 4.5.6. M(H) DC Manyetizasyon Sonuçları

Üretilen ince filmler için M(H) histerisiz ölçümleri yapılarak analiz edilmiştir. Burada manyetik alan film yüzeyine dik bir şekilde uygulanmıştır. 860 °C de farklı sürelerde tavlansak MgO (100) tek kristal altlıklar üzerine büyütülen ince filmlere ait histerisiz ölçümleri Şekil 4.49 da verilmektedir.

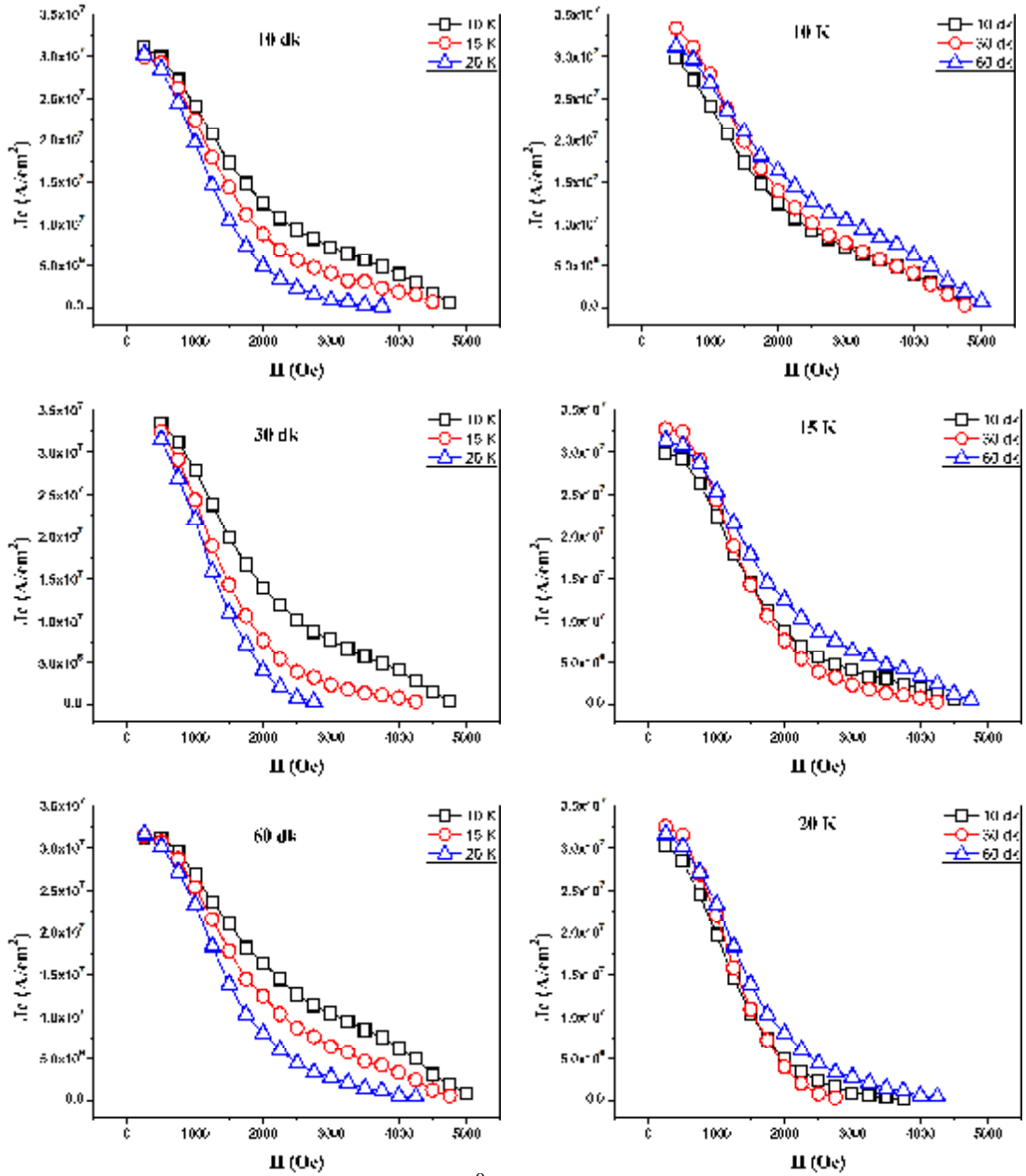


Şekil 4.49. MgO altlık üzerine, 860 °C de farklı sürelerde tavlansarak büyütülen filmlerin farklı sıcaklıklarda alan bağımlı manyetizasyon (Histerisiz) eğrileri.

10, 30 ve 60 dakika tavlansmış filmler için 10, 15 ve 20 K de yapılmış histerisiz ölçümleri incelendiğinde, tüm örneklerin histerisiz eğrilerinin, sıcaklık artışı ile birlikte daraldığı görülmektedir. Yüksek sıcaklık süperiletkenleri geleneksel olarak tanecikli yapılardan meydana gelirler. Küçük kristallerde yani tanecik yapılarda akım iyi bir şekilde akabilmektedir. Fakat tanecik sınırları yalıtkan gibi

davranmaktadır. Bu tanecik sınırları, zayıf bağ (weak-link) yapıları ile Josephson etkisi göstererek iletimi sürekli hale getirirler. Tanecik sınırlarındaki bu zayıf bağlar, poroziteler (boşluklar), kimyasal oksit eksiklikler veya safsızlık fazları gibi süperiletken tanecikler arasında sınır boyutları oluşmasını sağlayan etmenler ile meydana gelmektedir. Yüksek sıcaklık süperiletkenlerinde termal etkiler efektif bir rol oynayarak, girdap hareketi oluşturmaktadır. Girdap hareketi ise direnç oluşturan ve dolayısı ile akım yoğunluğunu düşüren istenmeyen bir etkidir. Bu sebeple, sıcaklık artışı ile histerisiz eğrileri küçülmektedir. Aynı sıcaklıkta, tavlama süresi karşılaştırmalı histerisiz eğrileri incelendiğinde, 30 dakika tavlanan filmin, 60 dakika tavlanan filme göre  $H_{c1}$  civarında daha geniş bir histerisize, fakat girdap durumunda ise daha dar bir eğriye sahip olduğu görülmektedir. Bu durumda 30 dakika tavlanan filmin, göreceli gelişmiş kristal yapısı sayesinde daha fazla akı tuzaklamasıyla açıklanabilir. 10, 30 ve 60 dakika tavlanan filmlerin 10 K deki,  $H_{c1}$  değerleri sırasıyla, 1455, 1518 ve 1630 Oe olarak belirlenmiştir. Histerisiz eğrileri kullanılarak Bean modeli ile  $J_c$  kritik akım yoğunluğu değerleri hesaplanarak, her tavlama süresi için farklı sıcaklıklarda ve aynı sıcaklıkta farklı tavlama süresi bağımlı olarak karşılaştırılmıştır. Hesaplanan  $J_c$  kritik akım yoğunluğu sonuçları Şekil 4.50 de verilmektedir.





Şekil 4.50. MgO altlık üzerine, 860 °C de farklı sürelerde tavlanarak büyütülen filmlerin farklı sıcaklıklarda alan bağımlı kritik akım yoğunluğu değerleri.

$J_c$  kritik akım yoğunluğu grafikleri incelendiğinde, 10 K sıcaklığında, 10, 30 ve 60 dakika tavlanan filmlere ait maksimum  $J_c$  kritik akım yoğunluğu değerleri sırasıyla,  $2.99 \times 10^7$ ,  $3.34 \times 10^7$  ve  $3.12 \times 10^7$   $A/cm^2$  olarak bulunmuştur. 30 dakika tavlanan film en yüksek kritik akım yoğunluğuna sahip olmasına rağmen, sıcaklık ve alan bağımlılığının diğer filmlere kıyasla daha fazla olduğu görülmektedir.

## 5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

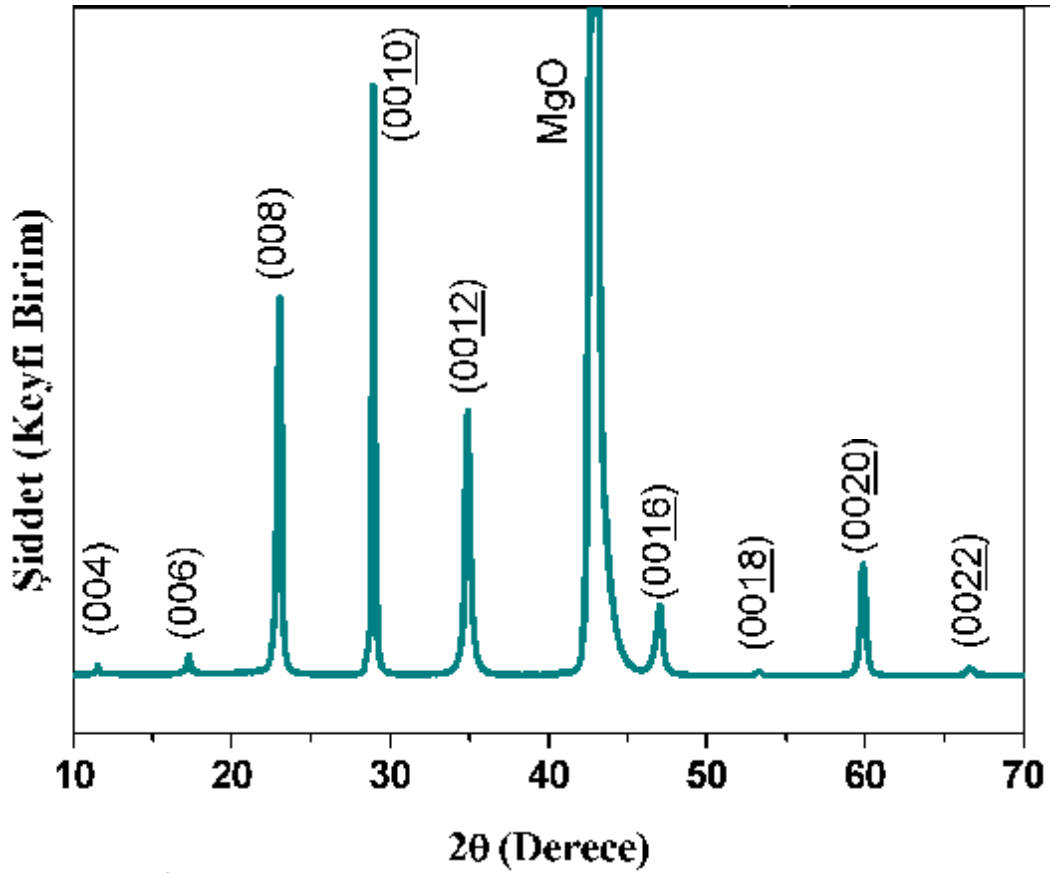
### 5.1. Sonuçlar

Bu doktora tezi kapsamında, Atımlı Lazer Yığılım (PLD) tekniği ile MgO (100) tek krital altlıklar üzerine  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  (2212) ince filmleri üretilmesi amaçlanmıştır. Tez kapsamında ilk olarak, en uygun  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  hedef malzemeyi, katıhal tepkime yöntemi ile üretebilmek için üretim teknikleri araştırması yapılmıştır. Elde edilen sonuçlar ışığında yaklaşık %97 (2212) hacimsel faz yoğunluğuna ve 85 K (M-T) de süperiletken geçiş sıcaklığına sahip olan bir hedef malzeme üretilmiştir.

İkinci aşamada, üretilen  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  hedef ile MgO (100) tek krital altlık üzerine PLD tekniği kullanılarak, farklı lazer parametreleri, oksijen basıncı ve altlık sıcaklıkları için ince film yapısında, (2212) fazı için uygun sitokiyometri araştırması yapılmıştır. Sonrasında uygun atomik yoğunluğun elde edildiği PLD parametreleri tercih edilerek, aynı koşullarda nihai ince filmler kaplanmıştır.

PLD tekniği ile tek kristal altlıklar üzerine büyütülen ince filmler zayıf süperiletken özellikler göstermekteydi (Pfuch, 1997-Marechal, 1998-Yavuz, 2003). Son yıllarda yapılan çalışmalarda, kaplama işlemi sonrasında ex-situ tavlama işleminin (2212) ince filmlerin süperiletken özelliklerini oldukça geliştirdiği görülmüştür (Kaide, 2002-Ishii, 2002- Kume, 2004-Mua, 2008). Bu sebeple PLD ile üretilen filmler, kaplama sonrasında Argon ve Oksijen (Ar:93, O<sub>2</sub>:7) atmosferinde farklı sıcaklıklarda 10 dakika tavlansarak,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmlerini üretmek için optimum ısı işlem sıcaklığı araştırması yapıldı. Üretilen ince filmlerin XRD, SEM, EDX, M-T, M-H ve R-T ölçümleri yapılarak, sonuçlar analiz edildi. Değerlendirmeler sonucunda,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmler için en uygun tavlama sıcaklığının 860 °C olduğu tespit edildi, zira bulk hedef malzeme içinde en uygun tavlama sıcaklığı 860 °C seçilmişti. 860 °C sıcaklıkta tavlanan ince filmin özellikleri aşağıda belirtilmiştir.

- Ø XRD analizlerine göre %99.9 oranında (Hacimsel faz oranı hesabı ile hesaplanmıştır, Chiu et al.), 2212 tek ana fazına ve MgO(100) düzleminde yüksek oranda c eksenine yönelime sahiptir. ( $FWHM \approx 0.16^\circ$ )
- Ø M(T) süperiletken geçiş sıcaklığı 82 K dir.
- Ø R(T) süperiletken sıfır direnç geçiş sıcaklığı 89 K dir.
- Ø Histerisiz ölçümlerine göre 10 K de  $H_{c1}$  kritik alan değeri 1.2 kOe dir.
- Ø Bean modeline göre histerisiz eğrilerinden hesaplanan, 10 K de maksimum kritik akım yoğunluğu değeri  $J_c = 3 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup> dir.



Şekil 5.1. 860 °C de tavlanan  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$  ince filmine ait XRD deseni.

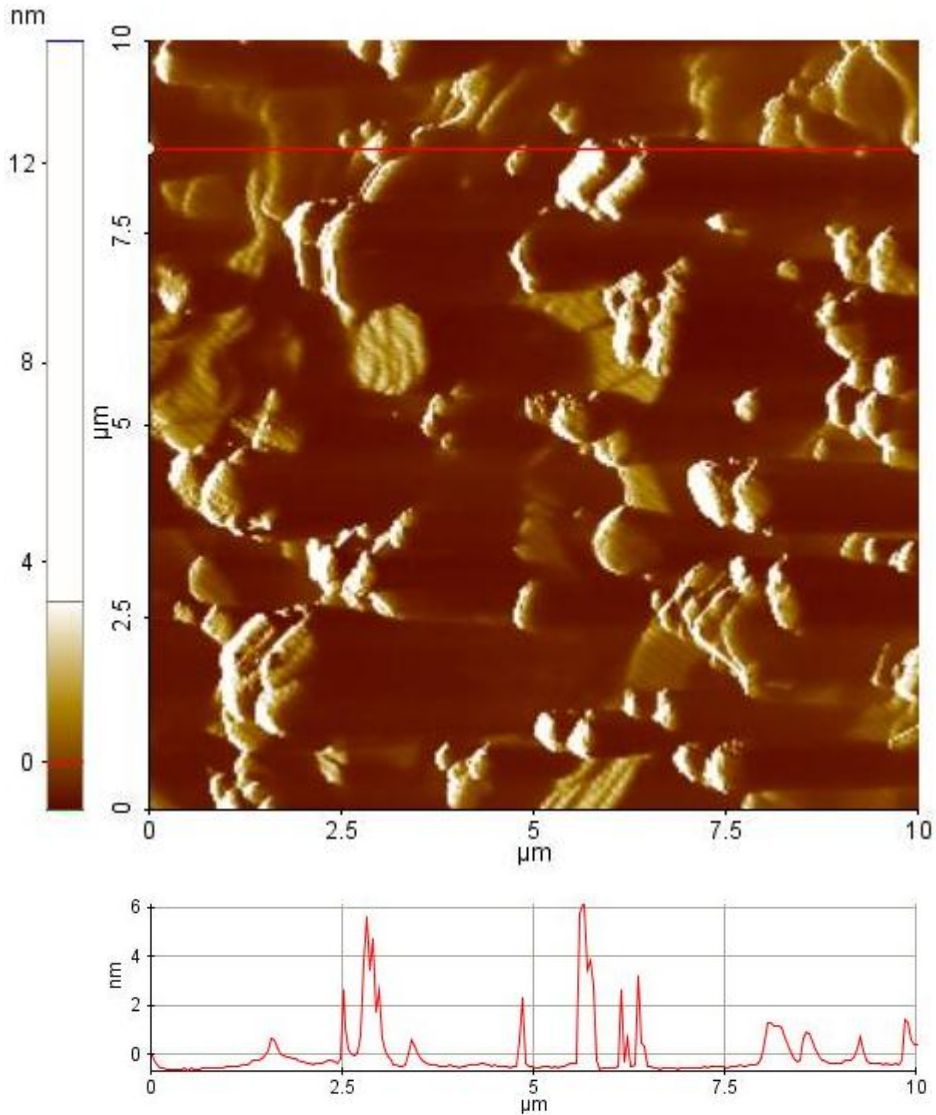
860 °C de tavlanan filmin XRD deseni incelendiğinde, yapının tamamen tek faz olduğu ve tüm piklerin (00l) indis sistemine ait olduğu görülmektedir. Bu sonuç, Şekil 4.35 de görülen SEM fotoğraflarında, ana matristeki genel kristal yapının, MgO (100) düzleminde, (2212) [100]//MgO [100] paralel yapısında

oluşması ve Şekil 4.40 da görülen R-T direnç ölçümlerindeki tek faz geçişi ile desteklenmektedir.

MgO (100) tek kristal altlıklar üzerine PLD tekniği ile kaplanan  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmler için optimum tavlama sıcaklığı belirlendikten sonra, (2212) faz gelişimi için optimum tavlama süresi araştırılması yapıldı. Bu çalışma için ise Polimer yöntemi ile üretilen  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  hedef malzemesi kullanıldı. PLD tekniği ile aynı koşullarda kaplanan filmler, 860 °C de 10, 30 ve 60 dakika boyunca tavlandı. Üretilen ince filmlerin XRD, SEM, M-T, M-H ve R-T ölçümleri yapılarak, sonuçlar analiz edildi. Değerlendirmeler sonucunda,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmler için 860 °C de optimum tavlama süresinin 30 dakika olduğu tespit edildi. 860 °C de 30 dakika tavlanan ince filmin özellikleri aşağıda belirtilmiştir.

- Ø XRD analizlerine göre %99 oranında (Hacimsel faz oranı hesabı ile hesaplanmıştır, Chiu et al.), 2212 tek ana fazına ve MgO(100) düzleminde yüksek oranda c eksenine yönünde yönelime sahiptir. (FWHM  $\approx 0.16^\circ$ )
- Ø M(T) süperiletken geçiş sıcaklığı 77 K dir.
- Ø R(T) süperiletken sıfır direnç geçiş sıcaklığı 82 K dir.
- Ø Histerisiz ölçümlerine göre 10 K de  $H_{c1}$  kritik alan değeri 1.52 kOe dir.
- Ø Bean modeline göre histerisiz eğrilerinden hesaplanan, 10 K de maksimum kritik akım yoğunluğu değeri  $J_c = 3.34 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup> dir.

Optimum tavlama sıcaklığı ve süresi tespit edildikten sonra katıhal tepkime yöntemi ile sentezlenmiş  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  hedef ile üretilen ince film 860 °C de 30 dakika boyunca tavlansak, AFM ölçümü yapılmıştır.



Şekil 5.2. Katıhal tepkime yöntemi ile sentezlenmiş  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  hedef kullanarak PLD tekniği ile üretilen ve  $860^\circ\text{C}$  de 30 dakika tavlanan ince filmine ait AFM profili.

AFM ölçümü incelendiğinde, BSCCO ailesine özgü geleneksel tabakalı yapı genel görüntüyü oluşturmaktadır. İyi istiflenmiş teras yapılar ana matrise yayılmıştır. Yükselti profili incelendiğinde, yüzey pürüzlülüğünün  $c/2$  katlarında ve maksimum yaklaşık  $2c$  mertebesinde olduğu görülmektedir ( $c \approx 30.86 \text{ \AA}$ ).

## 5.2. Öneriler

Bu doktora tezi kapsamında, MgO (100) tek kristal altlıklar üzerine Atımlı Lazer Yığılma tekniği ile kaplanarak sonrasında tavlama işlemi uygulanan  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ince filmler için optimum tavlama sıcaklığı ve süresi araştırılmıştır. Epitaksiyel olarak büyütülen filmler teknolojik açıdan, tek faz ve sıvı azot üstü  $T_c$  gibi uygulanabilir süperiletken parametrelere sahiptir. Fakat kristal yapısının ve dolayısıyla yüzey morfolojisinin geliştirilmesi gerektir. Bu geliştirme ile transport özelliklerinin daha da gelişmesi muhtemeldir. MgO altlıklar, (2212) ince film üretiminde, göreceli daha büyük örgü uyumsuzluğuna ve farklı epitaksiyel yapılanmalarına sebep olmalarına rağmen, ucuz oldukları için daha çok tercih edilmektedir. İnce filmlerde iyi bir kristal büyütme için altlığın kalitesi ve örgü uyumu çok önemlidir. Bu sebeple daha sonraki çalışmalarda MgO yerine farklı yapısal parametreler ve BSCCO yapısı ile uyumlu özelliklere sahip olan  $\text{SrTiO}_3$  veya  $\text{LaAlO}_3$  gibi altlıklar kullanılabilir ya da kristal büyütme, altlıklar üzerine kaplanan tampon katmanlar üzerine yapılabilir. Üretilen filmlerin yapısal ve kritik transport özellikleri hakkında daha detaylı bilgi almak için Geçirmeli Elektron Mikroskopu (TEM) ve I-V ölçümleri yapılabilir. Ayrıca manyetik alan altındaki iletim özelliklerini incelemek için Manyeto Direnç  $R(H)$  ölçümleri yapılabilir.

Son yıllarda yüksek sıcaklık süperiletkenlerinde, sürekli lazerler kullanılarak, üretilen malzemelerin kristal dizilimleri düzenlenmektedir (Texturing). Bu işlem sayesinde tanecik sınırları iyileştirilerek, iletim özelliklerinde kayda değer iyileştirmeler sağlanabilmektedir. Sonraki dönemlerde, yeter kalınlıkta filmler kaplanarak, bu sürekli lazer işlemine tabi tutulabilir ve lazer işleminin yapı üzerindeki etkileri araştırılabilir. Tüm bu benzer çalışmalar eşliğinde elde edilebilecek, uygun kalitede filmlerden eklem veya mesa yapıları üretilerek, Süperiletken tabanlı optik (Bolometre) ve elektromanyetik sensör (SQUID) yapımı için karakterize edilebilir.



## KAYNAKLAR

- ABRIKOSOV, A. A., 1957, Zh. Eksp. i Teor. Fiz., 32.
- AKIMITSU, J. , 2001, Symposium on Transition Metal Oxides, Sendai.
- ANGUREL, L. A., DÍEZ, J. C., DE LA FUENTE, G. F., GIMENO, F., LERA, F., LÓPEZ-GASCÓN, C., MARTÍNEZ, E., MORA, M., NAVARRO, R., SOTELO, A., ANDRÉS, N., RECUERO, S. ve ARROYO, M. P., Phys. Stat. Sol. (A) 203, No. 11, 2931–2937 (2006) / Doi 10.1002/Pssa.200667005.
- ASANO, N., SHINOHARA, K., MATSUNAMI, N. ve TAKAI, Y., 1999, Supercond. Sci. Technol. 12 (1999) 203–209.
- ATTANASIO, C., COCCORESE, C., MARITATO, L., SALLUZZO, M. ve SALVATO, M., 1997, Il Nuovo Cimento Vol. 19 D,N, 8-9.
- AVCI, I., ALGUL, B. P., AKRAM, R., BOZBEY, A., TEPE, M. ve ABUKAY, D., Sensors And Actuators A: Physical, Volume 153, Issue 1, 25 June 2009, Pages 84-88.
- AVCI, İ., 2007, Doktora Tezi, Ege Üniversitesi.
- BARDEEN, J., COOPER, L. N., ve SCHRIEFFER, J. R., 1957. Phys. Rev. 108 1175.
- BAŞTÜRK, N., 2005, Turk J Phys 29 (2005) 115-118.
- BAUERLE, D., 1998, Supercond. Sci. Technol. 11 (1998) 968–972.
- BEAN, C. P., Phys. Rev. Lett. 8, 250 (1962).
- BEDNORZ, J.G., MULLER, K.A., 1986, Z. Phys. B64 (2): 189–193.
- BENZI, P., BOTTIZZO, E., DEMARIA, C. ve RIZZI, N., 2007, J. Chem. Sci. Vol. 119, No. 6, pp. 631–635.
- BLANCA G. R. S., DE VERO J. C., GARCIA W. O., SARMAGO R. V., 2012, Physica C (2012) doi: 10.1016/j.physc.2012.03.045.
- BRECHT, E., LINKER, G., KRÖNER, T., SCHNEIDER, R., GEERK, J., MEYER, O., TRAEHOLT, C., 1997, Thin Solid Films 304 (1997) 212-221.
- CANCELLIERI, C., LIN, P. H., ARIOSIA, D. ve PAVUNA, D., 2007, J. Phys.: Condens. Matter 19 (2007) 246214 (8pp).



- CHEON, M. ve PARK, Y., 2003, Journal of the Korean Physical Society, Vol. 42, No. 1.
- COŞKUN, A., 2004, Doktora Tezi, Çukurova Üniversitesi.
- CULLITY, B.D., Elements of X-ray diffraction, Adison-Wesley Publishing Company INC., USA (1978) 102.
- DE VERO, J. C., BLANCA, G. R. S., VITUG, J. R., GARCIA, W. O., SARMAGO, R. V., 2011, Physica C 471 (2011) 378–383.
- DE VERO, J. C., GABAYNO, J. L. F., GARCIA, W. O., SARMAGO, R. V., 2010, Physica C 470 (2010) 149–154.
- EKİCİBİL, A., 2005, Doktora Tezi, Çukurova Üniversitesi.
- EKİCİBİL, A., ÇOŞKUN, A., ÖZÇELİK, B. VE KIYMAÇ, K., 2005, Modern Physics Letters B, Vol. 19, N. 6, 331-340.
- EKİCİBİL, A., ÖZKURT, B., ÖZÇELİK, B. VE KIYMAÇ, K., 2006, Journal Alloy and Compound, Vol. 151, N. 143.
- ELSABAWY, K. M., EL-NEWEHY, M. H., 2011, Applied Surface Science 258 (2011) 1345– 1352.
- ENDO, K., BADICA, P., SATO, H. ve AKOH, H., 2006, Supercond. Sci. Technol. 19 (2006) S221–S225.
- FOSSHEIM, K. VE SUDBO, A., “Superconductivity Physics and Applications”, John Wiley and Sons, Ltd., 2004.
- FUJINO, H., KUME, E., SUGIMATA, E., ZHAO, X., SAKAI, S., 2004, Physica C 412–414 (2004) 1410–1413.
- FURUKAWA, H., TOKUNAGA, S. ve NAKAO, M., Physica C: Superconductivity, Volumes 185–189, Part 3, 1 December 1991, Pages 2083-2084.
- GENCER, A., “Süperiletkenlik Kış Okulu Ders Notları”, 2009.
- GINZBURG, V. L., LANDAU L. D., Zh. Eksp. Teor. Fiz. 20, (1950) 1064.
- HARSTA, A. ve LU, J., Journal Of Alloys And Compounds, Volume 251, Issues 1–2, April 1997, Pages 134-137.
- HARUTA, M. ve SAKAI, S., 2010, Supercond. Sci. Technol. 23 (2010) 115006 (5pp).

- HARUTA, M., KUME, E. ve SAKAI, S., 2009, *Supercond. Sci. Technol.* 22 (2009) 125004 (4pp).
- HOLLMANNT, E. K., VENDIK, O. G., ZAITSEV, A. G. ve MELEKH B. T., *Supercond. Sci. Technol.* 7 (1994) 609-62.
- IMAIZUMI, T., HAYASE, S., UCHIYAMA, T ve IGUCHI, I., 2005, *Ieee Transactions on Applied Superconductivity*, Vol. 15, No. 2.
- INOUE, M., YOSHIDA, K., OHBAYASHI, K., TAKAI, Y. ve HAYAKAWA, H., *Physica C: Superconductivity*, Volume 200, Issues 3–4, 1 October 1992, Pages 403-408.
- ISHII, A., HATANO, T., 2000, *Physica C* 340 (2000) 173-177.
- ISHII, A., TAKANO, Y., ARISAWA, S., HATANO, T., TOGANO, K., 2002, *Physica C* 372–376 (2002) 600–603.
- JAKLEVIC, R. C., LAMBE, J., SILVER, A. H., ve MERCEREAU, J. E. (1964), *Phys. Rev. Letters* 12 (7): 159–160.
- JANNAH, A. N., 2009, *European Journal of Scientific Research* ISSN 1450-216X Vol.29 No.4 (2009), pp. 438-446.
- JANNAH, A. N., HALIM, S. A. ve ABDULLAH, H., 2009, *Journal of Applied Sciences* 9 (11): 2190-2193.
- JOSEPHSON, B. D., 1962. *Phys. Letters*, 1251.
- KANEKO, S., AKIYAMA, K., ITO, T., SHIMIZU, Y., HIRABAYASHI, Y., OHYA, S., FUNAKUBO, H., YOSHIMOTO, M., 2008, *Journal of Crystal Growth* 310 (2008) 1713–1717.
- KANEKO, S., SHIMIZU, Y., YUASA, H., OHYA, S., 2002, *Physica C* 378–381 (2002) 1270–1273.
- KILIÇ, S., 2008, Yüksek Lisans Tezi, Çukurova Üniversitesi.
- KITTEL, C., “Introduction to Solid State Physics”, 1st ed. 1953 - 8th ed. 2005.
- KIZILASLAN, O., 2010, Yüksek Lisans Tezi, İnönü Üniversitesi.
- KOIDE, S., KAMBE, S., 2002, *Physica C* 378–381 (2002) 1260–1264.
- KUME, E., FUJINO, H., ZHAO, X., SAKAI, S., 2004, *Physica C* 412–414 (2004) 1354–1357.

- LANG, W., GÖB, W., PEDARNIG, J. D., RÖSSLER, R., BAUERLE, D., 2001, *Physica C* 364-365 (2001) 518-521.
- LENNIKOV, V., ÖZKURT, B., ANGUREL, L. A., SOTELO, A., ÖZÇELİK, B., DE LA FUENTE, G. F., *J. Supercond. Nov. Magn.*, Doi 10.1007/S10948-012-1934-1.
- LONDON, F., LONDON H. "The Electromagnetic Equations of the Supraconductor" *Proc. Roy. Soc. A*149,1935.
- MAEDA, A., ve MASE, M., 1990. *Phys. Rev. B* 41, 6418.
- MAEDA, H., ve TANAKA, Y., 1988. *Jpn. J. Appl. Phys. Lett.* 4, L209.
- MANAHAN, R. L. C., SARMAGO, R.V., 2006, *Physica C* 445–448 (2006) 733–736.
- MARECHAL, C., LACAZE, E., SEILER, W., PERRIERE, J., 1998, *Physica C* 294 (1998) 23–32.
- MARTENSSON, P. ve HARSTA, A., *Journal Of Crystal Growth*, Volume 156, Issues 1–2, 1 November 1995, Pages 67-73.
- MEISSNER, W., ve OCHSENFELD, R., 1933. *Naturwissenschaften*, 21787.
- MICHEL, C., HERVIEU, M., BOREL, M., GRANDIN, A., DESLANDES, F., PROVOST, J. ve RAVEAU, B., *Z. Phys. Phys. B* 68, 421 (1987).
- MORI, Z., DOI, T., KAWABATA, D., OGATA, K., TAKAHASHI, K., MATSUMOTO, A., KITAGUCHI, H. ve HAKURAKU, Y., *Physica C: Superconductivity*, Volume 468, Issue 14, 15 July 2008, Pages 1060-1063.
- MUA, N. T., SERRAO, C. R., SHIPRA, SUNDARESAN, A., HIEN, T. D. ve MAN, N. K., 2008, *Supercond. Sci. Technol.* 21 (2008) 105002 (5pp).
- MURAKAMI, H., FUKUI, T., TOMINARI, Y., TONOUCHE, M.Y., UCHIYAMA, T., IGUCHI, I., WANG, Z., 2002, *Physica C* 367 (2002) 317–321.
- OKTEM, B., BOZBEY, A., AVCI, I., TEPE, M., ABUKAY, D. ve FARDMANESH, M. *Physica C: Superconductivity*, Volume 458, Issues 1–2, 1 July 2007, Pages 6-11.
- ONNES, H. K., *Leiden Comm.* 120b, (1911) 122b, 124c.
- OTSUKA, J. ve OHBAYASHI, K., 1999, *Ieee Transactions on Applied Superconductivity*, Vol. 9, No. 2.

- OZYUZER, L., KOSHELEV, A. E., KURTER, C., GOPALSAMI, N., LI, Q., TACHIKI, M., KADOWAKI, K., YAMAMOTO, T., MINAMI, H., YAMAGUCHI, H., TACHIKI, T., GRAY, K. E., KWOK, W.-K. ve WELP, U., *Science* 318: 5854 (2007): 1291-1293.
- ÖZKURT, A., 2007, Doktora Tezi, Çukurova Üniversitesi.
- ÖZKURT, B., ÖZÇELİK, B., 2009. *Journal of Low Temperature Physics*, Vol. 156:22-29.
- PFUCH, A., SCHMIDL, F., WIESE, A., DÖRRER, L., HÜBNER, U. ve SEIDEL, P., 1997, *Cryogenics* 37 (1997) 685-689.
- POLYAKOV, S. N., KOVEV, E. K., KUPRIYANOV, M. Y., PFUCH, A., WIESE, A. ve SEIDEL, P., 1996, *Supercond. Sci. Technol.* 9 (1996) 99–103.
- ROGALLA, H. ve KES, P. H., “100 Years of Superconductivity”, CRC Press, 2012.
- RÖSSLER, R., PEDARNIG, J. D., JOOSS, C., 2001, *Physica C* 361 (2001) 13-21.
- SAKAI, S., KASAI, Y., TANOUE, H., MATSUHATA, H., BODIN, P. ve OOHIRA, T., *Physica C: Superconductivity, Volumes 185–189, Part 3*, 1 December 1991, Pages 2013-2014.
- SALVATO, M., ATTANASIO, C., CARBONE, G., DI LUCCIO, T., PRISCHEPA, S. L., RUSSO, R., MARITATO, L., 1999, *Physica C* 316 (1999) 215–223.
- SALVATO, M., SALLUZZO, M., DI LUCCIO, T., ATTANASIO, C., PRISCHEPA, S. L., MARITATO L., 1999, *Thin Solid Films* 353 (1999) 227-232.
- SCHERRER, P., *Göttinger Nachrichten Gesell.*, Vol. 2, 1918, P 98.
- SEIDEL, P., PFUCH, A., HÜBNER, U., SCHMIDL, F., SCHNEIDEWIND, H., ECKE, T., SCHERBEL, J., 1997, *Physica C* 293 (1997) 49-54.
- SEZER, Ş., 2010, Yüksek Lisans Tezi, İzmir Yüksek Teknoloji Enstitüsü.
- SHEAHEN, T. P., “Introduction to High-Temperature Superconductivity”, Kluwer Academic Publishers, 1994.
- SOTELO, A., MORA, M., MADRE, M. A., DIEZ, J. C., ANGUREL, L. A., DE LA FUENTE, G. F., *Journal Of The European Ceramic Society* 25 (2005) 2947–2950.

- SOTELO, A., SZILLAT, H., MAJEWSKI, P. ve ALDINGER, F., Supercond. Sci. Technol. 10 (1997) 717–720.
- SÖNMEZ, E., 2009, Doktora Tezi, Atatürk Üniversitesi.
- TARASCON, M. J., ve LE PAGE, Y., 1988. Phys. Rev. B 37, 1988. Phys. Rev. B 38.
- TINKHAM, M., “Introduction to Superconductivity”, McGraw hill, 1996.
- TOZAN, Ş., 2010, Yüksek Lisans Tezi, İzmir Yüksek Teknoloji Enstitüsü.
- TÜRKOĞLU, S., 2011, Yüksek Lisans Tezi, İnönü Üniversitesi.
- UCHIYAMA, T. VE WANG, Z. Physica C 341-348 (2000) 2357-358.
- VIRET, M., LAWLER, J. F. ve LUNNEY, J. G., Supercond. Sci. Technol. 6 (1993) 49M96.
- VITUG, J. D. R., DE VERO, J. C., BLANCA, G. R. S., SARMAGO, R. V. ve GARCIA, W. O., 2012, Journal of Applied Spectroscopy, Vol. 78, No. 6.
- WADA, H., OTABE, E. S., MATSUSHITA, T., YASUDA, T., UCHIYAMA, T., IGUCHI, I., WANG, Z., 2002, Physica C 378–381 (2002) 570–574.
- WANG, H. ve FISCHMAN, G. S. J. Appl. Phys. 76, (1994) 1557.
- WANG, M., ve XIONG, G., 1993. Physica C 210, 413.
- WU, M. K., ve ASHBURN, J. R., 1987. Phys. Rev. Letters.
- YANG, P. ve LIEBER, C. M., 1997, J. Mater. Res., Vol. 12, No. 11.
- YAVUZ, M., UPRETY, K. K., SUBRAMANIAN, G. ve PALIWAL, P., 2003, Ieee Transactions on Applied Superconductivity, Vol. 13, No. 2.
- YILDIRIM, G., VARILCI, A. ve TERZIOĞLU, C., Journal Of Alloys And Compounds, In Press, Available Dec. 8, 2012.
- YOSHIDA K., SASAKURA H., TSUKUI S., MIZOKAWA Y., 1999, Physica C 320 (1999) 115–119.
- YOSHIDA, K., SASAKURA, H., TSUKUI, S., OSHIMA, R., MIZOKAWA, Y., 2000, Physica C 329 (2000) 292–297.
- ZAHNER, T., GRAMM, A., SPREITZER, U., ROSSLER, R., PEDARNIG, J.D., BAUERLE, D. ve LENGFELLNER, H., 1999, Journal of Low Temperature Physics Vol. 117, No. 3/4.

## ÖZGEÇMİŞ

1984 Karaisalı'da doğdu, İlkokulu Nigâhi Soykan İlkokulunda, Ortaokulu Yavuzlar Ortaokulunda, Liseyi Enver Kurttepelî Lisesinde tamamladı. 2002 yılında Çukurova Üniversitesi Fen-Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümünü kazandı ve aynı yıl YADİM İngilizce hazırlık programına başladı. Fizik bölümünde özel olarak kurulan, fizik (İngilizce) lisans programından 2007 yılında mezun oldu. Lisans öğrenimi sırasında yan dal programını kazanıp, Elektrik-Elektronik Mühendisliğinde öğrenim gördü. 2007 yılında Çukurova Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsünde Fizik Anabilim dalında yüksek lisans eğitime başladı ve 2009 yılında eğitimini tamamladı. 2009 yılında Çukurova Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsünde Fizik Anabilim dalında doktora eğitime başladı. 2010 yılında Hakkâri Üniversitesi Mühendislik Fakültesinde araştırma görevlisi olarak çalışmaya başladı. 2011 yılında YÖK 35. Madde gereğince Çukurova Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Fizik Anabilim dalında araştırma görevlisi olarak görev yapmaya başladı.