

Au katkılı Bi-2212 süperiletkenlerin yapısal, elektriksel ve manyetik özellikleri

Structural, electrical and magnetic properties of Au doped Bi-2212 superconductors

Esen GÜL¹ , Berdan ÖZKURT² , Mehmet Ersin AYTEKİN^{3*} , Kasım OCAKOĞLU⁴ 

^{1,3}Nanoteknoloji Ve İleri Malzemeler Ana Bilim Dalı, Fen Bilimleri Enstitüsü, Mersin Üniversitesi, Mersin, Türkiye.
esengun27@gmail.com, mehmetersinaytekin@gmail.com

^{2,4}Enerji Sistemleri Mühendisliği Bölümü, Teknoloji Fakültesi, Tarsus Üniversitesi, Mersin, Türkiye.
berdanozkurt@tarsus.edu.tr, kasimocakoglu@tarsus.edu.tr

Geliş Tarihi/Received: 23.09.2019
Kabul Tarihi/Accepted: 05.03.2020

Düzeltilme Tarihi/Revision: 11.02.2020

doi: 10.5505/pajes.2020.54775
Araştırma Makalesi/Research Article

Öz

Bu çalışmada, $Bi_{1.8}Sr_2Ca_{1.1}Cu_{2.1}O_y+Au_x$ ($x=0.0, 0.05, 0.1$ ve 0.2) genel formülü ile Bi-2212 fazının fiziksel ve manyetik özellikleri üzerine nano boyutta Au eklemenin etkileri sunulmuştur. Örnekler katı hal tepkime yöntemi ile hazırlanmıştır. Malzeme hazırlama sürecinde kullanılan Au elementi, $HAuCl_4.3H_2O$ bileşiğinin indirgenmesinden elde edilmiştir. Örneklerin fiziksel, morfolojik ve süperiletkenlik özellikleri XRD, taramalı elektron mikroskopu (SEM), dc elektrik direnci ve manyetik histeresis eğrileri ölçümleriyle karakterize edildi. Bi-2212 fazının baskın bir şekilde oluşumunu gösteren, saf ve Au ekli örnekler plaka benzeri tane yapısına sahiptir. Elektrik direnç sonuçları $x=0.2$ $HAuCl_4.3H_2O$ içeren örneğin, bakır-oksit tabaklarda ideal hole konsantrasyonun oluşumuna bağlı olarak en yüksek geçiş sıcaklığına (T_c) sahip olduğunu göstermektedir. Ayrıca, M-H ölçümleri $T=10$ ve $T=25$ K de gerçekleştirildi. Tanelerin daha güçlü birleşmesine bağlı olarak en geniş histeresis eğrisi, maksimum $HAuCl_4.3H_2O$ ekli örnekte elde edilmiştir.

Anahtar kelimeler: Au ekleme, Süperiletkenlik, Öz direnç, Manyetik histeresis.

Abstract

In this work, effect of nano sized Au additions on the physical and magnetic properties of Bi-2212 phase with general formula of $Bi_{1.8}Sr_2Ca_{1.1}Cu_{2.1}O_y+Au_x$ ($x=0.0, 0.05, 0.1$ and 0.2) are reported. The samples were prepared by solid state reaction method. Au element used in the material preparation process was obtained by reduction of $HAuCl_4.3H_2O$. The physical, morphological and superconducting properties of the samples have been characterized by XRD, scanning electron microscopy (SEM), dc electrical resistivity and magnetic-hysteresis loop measurements. It is observed that pure and Au added samples have plate like grain structure, indicating predominantly the formation of Bi-2212 phase. The results of dc electrical resistivity showed that the sample including $x=0.2$ $HAuCl_4.3H_2O$ has the highest transition temperature (T_c) due to the formation of optimum hole concentration in copper oxide layers. Also, M-H measurements were carried out at $T=10$ K and $T=25$ K. The Largest hysteresis loop due to its stronger coupling between grains was obtained on maximum $HAuCl_4.3H_2O$ added sample.

Keywords: Au adding, Superconductivity, Resistivity, Magnetic hysteresis.

1 Giriş

Küresel ısınmanın etkisi ile oluşan iklim değişikliklerini önlemek için hedeflenen enerji politikalarında temiz enerjinin üretilmesi kadar, üretilen enerjinin en az kayıpla iletilmesi de önemli bir unsurdur. Üretilen enerjinin kayıpsız aktarılması ise, belirli bir sıcaklığın altında sıfır direnç gösteren süperiletkenlerin keşfedilmesi ile mümkün kılınmıştır. Böylece sıfır dirence sahip süperiletken malzemelerin enerji iletim hatlarında tel ya da iletken kablo olarak kullanılabilmesi ile enerji kaybı ortadan kaldırılabilir. Ancak süperiletken malzemelerde normal durumdan süperiletkenlik duruma geçiş, kritik geçiş sıcaklığı (T_c) olarak isimlendirilen bir sıcaklık altında meydana gelmektedir. Diğer bir taraftan, sistem süperiletken durumunda olduğu zaman, süperiletkenlik fazının korunması için uygulanan manyetik alan ve kritik akım yoğunluğu değerlerinin de limit değerlerini aşmaması gereklidir. Bu nedenle, süperiletken sistemlerin teknolojide kullanılmasında temel problem süperiletkenlik geçişin oldukça düşük sıcaklıklarda (≈ -150 °C) meydana gelmesidir. Günümüzde sıvı azot kullanılarak düşük sıcaklık değerlerine inilebilmesi, süperiletken malzemeler üzerine araştırma ve geliştirme

çalışmalarının güncelliğini devam ettirmektedir. Literatürde, genel olarak süperiletken sistemlerin temel özelliklerini geliştirme çalışmaları yapı içerisinde farklı iyonik yarı çapta element katkılama/ekleme ya da ikili katkılama (co-doping) üzerine gerçekleştirilmektedir [1]-[4]. İyi bilindiği gibi, Bizmut tabanlı ve İtriyum tabanlı yüksek geçiş sıcaklığına sahip süperiletken sistemlerde yapı içerisinde farklı elementlerin katkılanması ya da eklenmesi ile temel özellikler üzerinde önemli gelişmeler elde edilmiştir [4],[6]. Bizmut tabanlı yüksek sıcaklık süperiletken ailesi $Bi_2Sr_2Ca_{n-1}Cu_nO_y$ yapısına sahip olmasıyla beraber, formüldeki n değeri kristal yapıdaki bakır oksit tabakaların sayısını belirlemektedir ve n'in aldığı değerlere göre Bi-2201, Bi-2212 ve Bi-2223 gibi farklı fazlar oluşmaktadır [7]. BSCCO sistemi içerisinde meydana gelebilecek bu fazlar; 20 K geçiş sıcaklığına sahip n=1 değerine karşılık gelen Bi-2201 fazı, 85 K geçiş sıcaklığına sahip n=2 değerine karşılık Bi-2212 fazı ve 120 K geçiş sıcaklığına sahip n=3 değeri için Bi-2223 yapılarıdır [8]. Diğer bir taraftan, BSCCO sistemleri arasında Bi-2223 sistemi 120 K geçiş sıcaklığı ile en yüksek geçiş sıcaklığına sahip olmasına rağmen, Bi-2212 sisteminde istenilen süperiletkenlik fazlarının kolay elde edilmesi ve faz kararlılığının daha yüksek olması gibi

*Yazışılan yazar/Corresponding author

avantajlarından dolayı daha çok çalışılması tercih edilmektedir [8]-[10].

Bizmut tabanlı süperiletken sisteminde süperiletkenlik özelliklerin geliştirilmesi için, yapı içerisinde farklı iyonik yarıçapta elementlerin eklenmesi ya da katılanması en etkili yöntemler arasında yer almaktadır. Literatürden iyi bilindiği gibi, BSCCO süperiletken sistemi içerisinde B, Li, La, Cd ve Pb gibi elementleri katılama çalışmaları, sistemin elektriksel ve manyetik özelliklerinde önemli gelişmeler sağlamaktadır [11]-[15]. Diğer bir taraftan, soy metal grubundan olan Altın (Au) elementinin BSCCO sistemi içerisinde katılama çalışmaları birçok araştırma grubu için merak konusu olmuştur. Jin ve arkadaşları tarafından yapılan çalışmada Bi(Pb)-Sr-Ca-Cu-O sistemine Altın eklenmiş ancak süperiletkenlik özelliklerinin bozulduğu tespit edilmiştir [16]. Liu ve arkadaşlarının yaptığı çalışmada ise Bi(Pb)-2223 fazında süperiletken sistemi içerisinde belirli bir oranda Altın elementi eklenmiş ancak süperiletkenlik özellikleri üzerinde herhangi bir değişim tespit edilememiştir [17]. Bunun yanında literatürde yer alan çalışmalarda, yapı içerisinde mikro seviyede Altın tozlarının eklenmesinin yanında, nano mertebede altın BSCCO sistemi içerisinde katılanması [18] ya da Altın'ın ısı işlem sürecinde BSCCO sisteme difüze edilmesi [19] ile J_c (kritik akım yoğunluğu) ve T_c değerlerinde önemli gelişmeler elde edilmiştir.

Literatürden iyi bilindiği gibi, nano boyutta altın sentezi için kullanılan en yaygın yöntem Turkevich metodudur [20]. Diğer yöntemlere göre oldukça ucuz, kolay ve insan sağlığına zarar vermeyen bu metotta nano boyutta altın partikülleri $\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ birleşiminden indirgenmektedir [21]. Sunulan çalışmada ise, Bi-2212 süperiletken sistemi içerisinde nano boyutta altın partiküllerinin eklenmesi hedeflenmiştir. Nano boyutta altın farklı oranlarda $\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ ($x=0.0, 0.05, 0.1, 0.2$) bileşiminden indirgenerek $\text{Bi}_{1.8}\text{Sr}_2\text{Ca}_{1.1}\text{Cu}_{2.1}\text{O}_y$ kristal yapısı içerisinde eklenmiştir. Katı hal tepkime yöntemi ile hazırlanan seramik süperiletken örnekler üzerine nano boyutta altın partikülleri eklenmesinin etkileri, XRD, SEM, öz direnç-sıcaklık ve manyetizasyon ölçümleri ile analiz edilmiştir.

2 Deneysel çalışmalar

$\text{Bi}_{1.8}\text{Sr}_2\text{Ca}_{1.1}\text{Cu}_{2.1}\text{O}_y + (\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O})_x$ ($x=0.0, 0.05, 0.1, 0.2$) kompozisyonu ile seramik süperiletken örnekler yüksek oranda saflığa sahip Bi_2O_3 (Panreac, 98+%), SrO_3 (Panreac, 98+%), CaCO_3 (Panreac, 98+%), ve CuO (Panreac, 98+%) öncü tozları ile geleneksel katı hal tepkime yöntemi kullanılarak üretilmiştir. $\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ ise nano boyutta altın elementi için başlangıç (öncü) malzemesidir ve altın elementini indirgemek için Nitrik Asit çözeltisi kullanılmıştır. İyi bilindiği gibi, katı hal tepkime yönteminde öncü tozların homojen bir şekilde karışması için agat havanda ya da bilyeli öğütücü gibi öğütme süreçlerini içeren çeşitli yöntemler kullanılmaktadır. Bu öğütme yöntemleri kullanıldığı zaman tozların öğütme sürecinde potaya yapışması nedeniyle malzemede kayıplar meydana gelebilmektedir [10]. Malzemede oluşan bu tarz kayıpları engellemek ve homojen bir karışım elde etmek için örneklerin agat havanda öğütülme aşaması yerine bu çalışmada kullanılan tüm tozlar nitrik asit ve saf su karışımı içerisinde karıştırıldılar.

Tozların homojen bir karışımını elde edebilmek için örnekleri hazırlama aşamasında, ilk olarak öncü tozlar uygun stokiyoemetrik oranlarda tartıldı ve nitrik asit-saf su çözeltisi içerisinde eklendi. Başlangıçta manyetik karıştırıcının sıcaklığı 90°C 'ye ayarlandı. Toz halindeki malzemeler nitrik asit

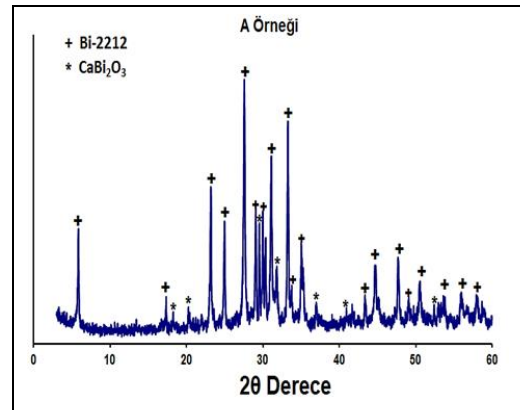
içerisinde tamamen çözüldükten sonra çözeltinin rengi açık maviye dönüştü. Daha sonra nano boyutta altın elementini indirgemek ve Bi-2212 fazı içerisine dahil etmek için $x=0.0, 0.05, 0.1$ ve 0.2 ile farklı oranlarda $\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$, çözelti içerisine eklenerek manyetik karıştırıcıda karışıma bırakıldı. Bütün tozlar homojen bir şekilde karıştıktan sonra sıvının ayrıştırılması işlemine geçildi. Bu amaçla manyetik karıştırıcının sıcaklığı 275°C 'ye çıkarıldı. Sıvının tamamen ayrışmasından sonra toz halinde elde edilen örneklerde oluşabilecek topaklanmayı önlemek için agat havanda elde öğütüldü. Daha sonra tozlar 375 MPa basınç altında 2.9 cm yarıçapında tablet halinde preslendi. Malzeme içerisinde yabancı maddeleri ayrıştırmak için 750°C 'de 12 sa. boyunca tabletlere ilk ısı işlem uygulandı. Daha sonra, tablet halindeki örnekleri toz hale getirebilmek için 2 sa. agat havanda öğütüldü, preslendi ve 12 sa. 800°C 'de kalsinasyon işlemi atmosfer ortamında uygulandı. Öğütme, presleme, kalsinasyona dayalı bu süreçler, örneklerde daha homojen yapıya ulaşabilmek için iki kez daha tekrar edildi. Son aşamada ise, örneklerde Bi-2212 fazının yüksek oranda oluşumunu gerçekleştirmek için sinterleme işlemine geçildi. Sinterleme aşaması 850°C sıcaklıkta 120 sa. süre boyunca uygulandı. Diğer bir taraftan bu çalışma kapsamında üretilen süperiletken örnekler $x=0.0, 0.05, 0.1$ ve 0.2 ile $\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ ekleme oranına göre sırasıyla A, B, C ve D örneği olarak isimlendirilmiştir.

Nano boyutta altın eklenen örneklerde analiz çalışmaları X-ışını toz kırını ölçümleri (XRD), taramalı elektron mikroskobu ölçümleri, öz direnç sıcaklık ölçümleri ve manyetizasyon ölçümleri ile gerçekleştirildi. Elektriksel ve manyetik ölçümler helyum kapalı döngü sisteminde yaklaşık olarak 2 K kriyojenik sıcaklıklara ulaşabilen PPMS cihazında gerçekleştirildi. X-ışını toz kırını ölçümleri $2^\circ/\text{dk}$. tarama hızı ile $2\theta = 3^\circ-60^\circ$ aralığında ölçüm yapabilen X-ışını Difraktometresi kullanılarak yapıldı. Örneklerde yüzey morfolojisi ölçümleri 20 K büyütme oranında taramalı elektron mikroskobu (SEM) ile gerçekleştirildi.

3 Sonuçlar ve tartışma

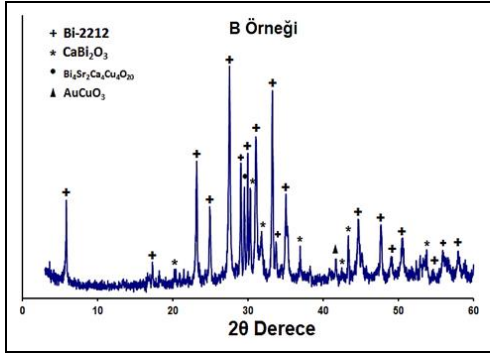
3.1 XRD ölçümü sonuçları

Bu çalışma kapsamında geleneksel katı hal tepkime yöntemi kullanılarak üretilen seramik yapıda süperiletken örneklerin faz oluşumlarını gözlemlemek için XRD ölçümleri gerçekleştirildi. A, B, C ve D örneklerinden elde edilen X-ışını Toz kırınım ölçüm (XRD) sonuçları sırasıyla Şekil 1, Şekil 2, Şekil 3 ve Şekil 4'te gösterilmektedir.



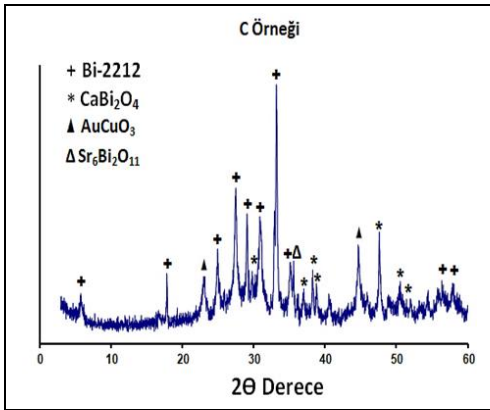
Şekil 1. A Örneğine ait X-ışını Kırınım ölçümü sonuçları.

Figure 1. X-Ray Diffraction measurement results belonging to Sample A.



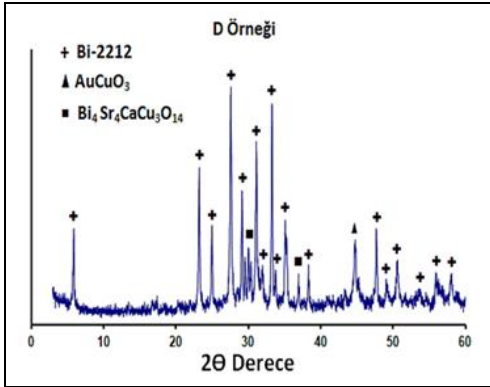
Şekil 2. B Örneğine ait X-Işını kırınım ölçümü sonuçları.

Figure 2. X-Ray Diffraction measurement results belonging to Sample B.



Şekil 3. C Örneğine ait X-Işını kırınım ölçümü sonuçları.

Figure 3. X-Ray Diffraction measurement results belonging to Sample C.



Şekil 4. D Örneğine ait X-Işını kırınım ölçümü sonuçları.

Figure 4. X-Ray Diffraction measurement results belonging to Sample D.

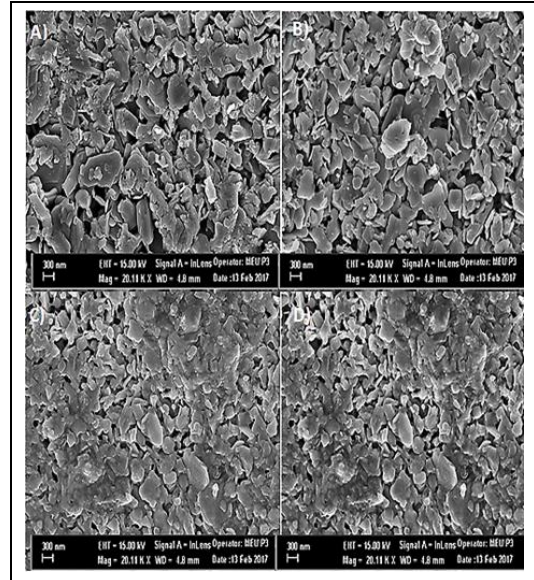
XRD ölçüm sonuçları açıkça göstermektedir ki; + sembolü ile gösterilen Bi-2212 fazı tüm örneklerde temel fazdır. Ayrıca ihmal edilebilecek düzeyde AuCuO₃, CaBi₂O₄, Sr₆Bi₂O₁₁ ve Bi₄Sr₄CaCu₃O₁₄ gibi bazı safsızlık fazları da tespit edilmiştir.

Bi tabanlı süperiletken malzemeler hazırlanırken uygulanan tekniğe, ısı işlem süresine ve sıcaklığa bağlı olarak kristal yapı içerisinde farklı safsızlık fazları meydana gelebilmektedir. Bu çalışmada ise + sembolü ile gösterilen Bi-2212 faz yapısının temel faz olması, malzeme hazırlama sürecinin yeterli olduğunu göstermektedir. XRD grafiğine bakıldığında Altın elementine ait piklerin oluşumu ve H_{Au}Cl₄.3H₂O bileşiğinde

diğer elementlere ait bir pikin oluşmaması nano boyutta Au elementinin başarılı bir şekilde indirgenmesini göstermektedir. İyi bilindiği gibi, BSCCO süperiletken malzemelerde oluşan safsızlık fazları süperiletken bölgeler arasında bariyer oluşturarak süperiletkenlik özellikleri bozabilmektedir. XRD grafiğine bakıldığında, B ve C örneklerinde AuCuO₃, CaBi₂O₄ gibi safsızlık fazlarının yoğunluklarının giderek arttığı gözlemlenebilmektedir. Böylece safsızlık fazlarının sayısında meydana gelen artış süperiletkenlik özelliklerin bozulmasına sebep olabilir. Bunun yanında, x=0.2 oranında H_{Au}Cl₄.3H₂O içeren örnekte safsızlık fazlarının azaldığı açıkça görülmektedir. Bu da 0.2 oranında H_{Au}Cl₄.3H₂O bileşiğinden indirgenen Altın elementinin Bi-2212 yüksek sıcaklık fazının oluşumunu desteklediğinin göstergesidir. XRD grafiklerinde tüm örneklerde 2θ = 5.7°; 24.8°; 29.1° gibi noktalarda Bi-2212 fazının karakteristik pikleri görülmektedir. Literatürden iyi bilindiği gibi, BSCCO sisteminde, elektriksel özelliklerin gelişimi üzerinde önemli bir parametre olan geniş ebatla tanelerin oluşumu, karakteristik piklerin şiddetlerinde artışlar ile orantılıdır [10],[22],[23]. Örnekler ait XRD grafiklerine bakıldığında, yaklaşık olarak 2θ ≈ 23°; 50° noktalarında AuCuO₃, CaBi₂O₄, Sr₆Bi₂O₁₁ gibi safsızlık fazları D Örneği'nde gözlemlenmemektedir. Bunun yanında, D Örneği'nde 2θ ≈ 27.4°; 30.8° ve 35° noktalarda ise Bi-2212 fazına ait piklerde gözle görülür bir artış meydana gelmiştir. Pik şiddetlerinin bu şekilde artması ve safsızlık fazlarının Bi-2212 yüksek sıcaklık süperiletken fazına dönüşmesi D Örneği'nin homojen yapıda olmasına ve süperiletkenlik özelliklerinin gelişmesine işaret edebilir.

3.2 SEM ölçümü sonuçları

Farklı oranlarda H_{Au}Cl₄.3H₂O eklenen süperiletken örneklerde tane (grain) oluşumlarını ve mikro yapısal özellikleri araştırabilmek için taramalı elektron mikroskobu (SEM) ölçümleri gerçekleştirildi. Örneklerin yüzeylerinden elde edilen SEM fotoğrafları Şekil 5'te gösterilmektedir.



Şekil 5. Tüm örnekler için SEM ölçüm sonuçları.

Figure 5. SEM measurement results belonging to all samples.

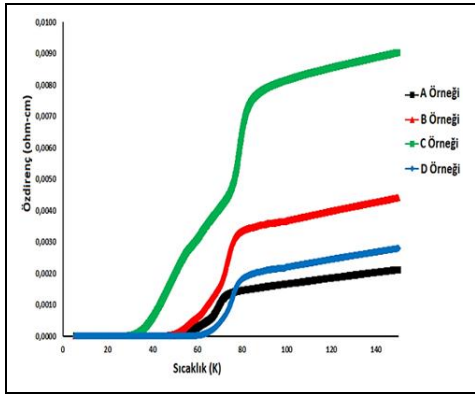
SEM sonuçlarına bakıldığında süperiletken tanelerin farklı yönlerde geliştiği güzel bir şekilde yönelikliği görülmektedir. Süperiletken malzemeler katı hal tepkime yöntemi kullanılarak üretildiği zaman, rastgele yönelimli tanelerin oluşumu

beklenebilir. Ayrıca farklı boyuttaki tanelerin gelişigüzel dağılımı da taneler arasında boşlukların oluşumunu destekleyebilmektedir. Tüm bu olumsuzluklara rağmen, düşük maliyeti ile beraber sinterleme, öğütme ve presleme gibi basit süreçler içermesi ve aynı zamanda insan sağlığına zararlı olmamasından dolayı pek çok çalışmada katihal tepkime yöntemi tercih edilmektedir. Bunun yanında, literatürden iyi bilindiği gibi, örneklerin mikro yapılarında plaka benzeri tanelerin (plate like grain) oluşumu Bi-2212 fazının varlığına işaret etmektedir [10],[24]. SEM ölçümü sonuçlarında, tüm örneklerin morfolojik yapısında plaka benzeri tanelerin oluşumu açıkça gözlemlenebilmektedir. XRD ölçüm sonuçlarıyla uyumlu olarak, örneklerin yüzeylerinde plaka benzeri tanelerin oluşumu, tüm örneklerde temel faz yapısının Bi-2212 fazı olduğunu işaret etmektedir. Süperiletken malzemelerde elektriksel özellikler taneciksel (granüler) yapıya son derece bağlıdır. Tanelerin ebatları, taneler arasında kuvvetli bağların oluşumu, boşluklu yapının oranı ve taneler arasında safsızlık fazlarının meydana gelmesi elektriksel özellikleri etkileyen temel parametrelerdir [25],[26]. Diğer bir taraftan SEM analizlerinde elde edilen görüntülerde farklı kontrast yapıları da sistemin faz yapısı ve homojenliği hakkında önemli bilgiler sunmaktadır. İyi bilindiği gibi, daha koyu bölgeler safsızlık fazlarının oluşumuna işaret etmektedir.

SEM ölçüm sonuçlarından elde edilen görüntüleri bakıldığında, A ve B örneğinde meydana gelen tanelerin küçük ebatta olduğu, taneler arasında koyu bölgeler ile gösterilen boşlukların meydana geldiği görülmektedir. Bunun yanında C ve D örneklerinde tane ebatlarında artış gözlemlenmiştir. Ancak C örneğinde geniş ebatla taneler gözlemlenmesine rağmen, elektriksel özellikleri olumsuz etkileyebilecek yüksek oranda boşluklu yapıya sahip rastgele yönelimli tanelerin oluşumları da meydana gelmiştir. Diğer örnekler ile karşılaştırıldığında, D Örneği'nde birbirleri ile daha kuvvetli bağlı geniş ebatla plaka benzeri tanelerin varlığı gözlemlenmektedir. D örneğinde morfolojik yapıda gözlemlenen bu gelişmeler daha iyi süperiletkenlik özelliklerinin oluşumunu işaret edebilmektedir.

3.3 Özdirenç ölçümü sonuçları

Süperiletken malzemelerde meydana gelen faz geçişleri, sıcaklığa bağlı olarak yapılan özdirenç ölçümlerinden tespit edilebilmektedir. Bu çalışmada üretilen Bi tabanlı süperiletken örneklerin özdirenç sıcaklık grafiği Şekil 6'da gösterilmektedir.



Şekil 6. A, B, C ve D örneklerine ait sıcaklığa karşı özdirenç grafiği.

Figure 6. Graph of resistivity versus temperature belonging to A, B, C and D samples.

Sıcaklığın bir fonksiyonu olarak elde edilen özdirenç grafiğine bakıldığında, tüm örneklerin süperiletkenlik geçiş sıcaklığının üzerindeki bölgelerde metalik davranış sergilediği görülmektedir. Sistem içerisine farklı oranlarda H_{Au}Cl₄.3H₂O eklenmesi ile geçiş sıcaklığının altındaki bölgelerde, süperiletken örnekler farklı davranışlar sergilemektedir. Bunun yanında BSCCO sistemi içerisine metalik elementler katıldığı zaman katyon ya da anyonların süperiletkenlik faz sistemine katılmaları ile süperiletkenlik geçiş sıcaklığında artışlar gözlemlenebilmektedir [27],[28]. Bu elementlerin kristal yapıya girmeleri ile BSCCO sisteminde yük taşıyıcılarına ekstradan yük transfer edebilmekte ve böylece sistemin süperiletkenlik geçiş sıcaklığı artabilmektedir [29],[30]. Ancak, bu çalışmamızda, XRD sonuçları açıkça Au elementinin Bi-2212 kristal yapısına dahil olmadığını göstermektedir. Böylece örneklerde görülen T_c farklılıkları taneler arası iletkenliğin ve yapı içerisindeki boşlukların (voids) değişimi ile açıklanabilir. Bu çalışma kapsamında örneklere ait süperiletkenlik geçiş sıcaklığı değerleri ise Tablo 1'de gösterilmektedir.

Tablo 1. Tüm örneklere ait süperiletkenlik geçiş sıcaklığı değerleri.

Table 1. Superconductivity transition temperature values belonging to all samples.

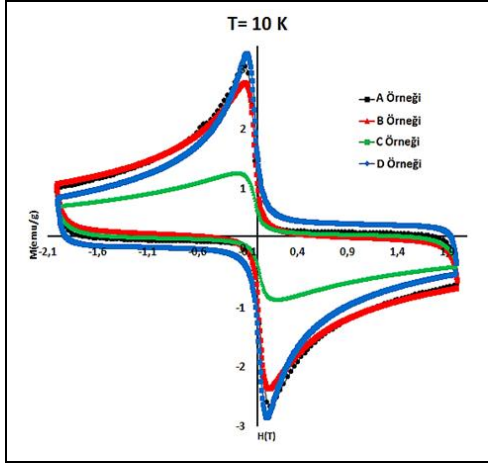
Örnek	T _c Onset (K)	T _c offset(K)	ΔT _c (K)
A Örneği	74	50	24
B Örneği	79	45.5	33.5
C Örneği	86	31	55
D Örneği	83,9	61.7	22.2

Süperiletken malzemelerde T_cOnset sıcaklık değeri mazlemeye normal fazdan süperiletkenlik geçişin başladığı sıcaklıktan, T_coffset sıcaklık değeri ise süperiletken faz geçişinin tamamlandığı (R=0) sıcaklık değeridir. T_conset ve T_coffset sıcaklık değerleri arasındaki fark ise ΔT_c ile gösterilmektedir. Tconset sıcaklık değeri süperiletken fazlar hakkında bilgi verirken, T_coffset değeri ise mevcut süperiletkenlik fazlarının birbirleri ile bağlantısı hakkında bilgi vermektedir [7]-[15]. Tablo 1'deki değerlere bakıldığında, en yüksek sıcaklıkta süperiletkenlik geçişi, 61.7 K sıcaklık değeri ile x = 0.2 oranında H_{Au}Cl₄.3H₂O içeren D Örneği'nde gözlemlenmiştir. D Örneği'nde yüksek oranda altın nano partiküllerinin yapı içerisine girmesi ile optimum boşluk (hole) konsantrasyonunu oluşumuna katkı sağladığı ve taneler arası iletkenliği geliştirdiği söylenebilir. Diğer örnekler ile karşılaştırıldığında, faz yapısında ve morfolojik yapıda meydana gelen bu gelişmeler ile yüksek oranda altın nano partikülleri eklenen örnekte daha yüksek süperiletkenlik geçiş sıcaklık değeri elde edilmiştir.

3.4 Manyetizasyon ölçümü sonuçları

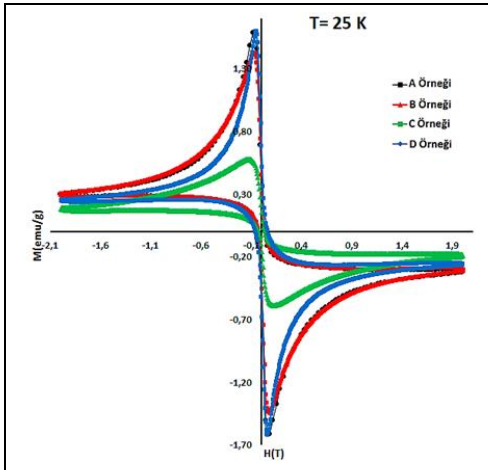
Süperiletken malzemelerin teknolojide kullanılabilirliği açısından elektriksel özellikleri kadar manyetik özellikleri de son derece önemlidir. Bu nedenle manyetizasyon çalışmalarında sistem analizi için önemli bilgiler sunmaktadır. İyi bilindiği gibi yüksek sıcaklık süperiletkenlerde manyetizasyon performansı geniş ebatla plaka benzeri tanelerin oluşumuna, taneler arası kuvvetli bağlara ve istenilen fazların yüksek oranda meydana gelmesine son derece bağlıdır [31]. Bu çalışma kapsamında manyetizasyon analizleri için M-H ölçümleri gerçekleştirildi ve 10 K-25 K sıcaklıklarda elde edilen ölçüm sonuçları sırasıyla Şekil 7 ve Şekil 8'de gösterilmektedir. Her iki sıcaklıkta elde edilen manyetizasyon ölçüm sonuçlarında, Bi-2212 süperiletken fazının varlığını gösteren diyamanyetik davranış açıkça görülmektedir. İyi bilindiği gibi, manyetizasyon

ölçümleri sonucunda elde edilen M-H grafiğinde histeresis döngülerinin bozulması için dışardan uygulanması gereken enerji karşılık gelmektedir. Şekil 7 ve Şekil 8'de M-H ölçümlerinde her iki sıcaklıkta en geniş histeresis alanı gelişen süperiletkenlik özelliklerin göstergesi olarak D örneğinde elde edilmiştir. Diğer örnekler ile karşılaştırıldığında, $x=0.2$ oranında $\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ içeren D örneğinde altın nano partiküllerinin taneler arasına yerleşerek geniş ebatta plaka benzeri tanelerin oluşumuna katkıda bulunması ile manyetik özellikler gelişmiştir.



Şekil 7. 10 K sıcaklıkta $\pm 2\text{T}$ uygulanan alan arasında manyetik histeresis ölçümü.

Figure 7. Magnetic hysteresis measurement between $\pm 2\text{T}$ applied field at 10 K temperature.

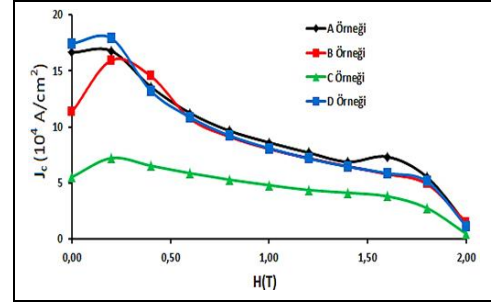


Şekil 8. 25K sıcaklıkta $\pm 2\text{T}$ uygulanan alan arasında manyetik histeresis ölçümü.

Figure 8. Magnetic hysteresis measurement between $\pm 2\text{T}$ applied field at 25 K temperature.

Süperiletken malzemelerin teknolojik uygulamalarda kullanımı için bir başka önemli parametre ise malzemelerin yüksek değerlerde akım taşıma kapasitesine sahip olmalarıdır. Süperiletken malzemelerde yüksek değerlerde kritik akım yoğunluğu, geniş ebatta tanelerin birbirleriyle daha kuvvetli bağlanmasına ve etkili çivileme merkezlerinin oluşumu gibi parametrelere son derecede bağlıdır [26]-[31]. Sunulan çalışma kapsamında seramik örneklerde kritik akım yoğunluğu değeri Bean kritik akım yoğunluğu modeli kullanılarak 10 K

sıcaklıkta hesaplanmıştır [32]. Aşağıdaki formül yardımı ile hesaplanan kritik akım yoğunluğu grafiği Şekil 9'da gösterilmektedir.



Şekil 9. Manyetik alanın bir fonksiyonu olarak 10 K Sıcaklıkta tüm örnekler için kritik akım yoğunluğu.

Figure 9. Critical current density belonging to all samples at 10 K temperature as a function of the magnetic field.

$$J_c = 30 \frac{\Delta M}{d} \quad (1)$$

Formülde, J_c bir örneğin amper biriminden santimetre kare başına kritik akım yoğunluğu değeridir. ΔM santimetre küp başına manyetik moment olarak ölçülür ve d değeri ise silindirik örneğin çapıdır.

Kritik akım yoğunluğu grafiği incelendiğinde, uygulanan manyetik alanın artmasıyla akı çizgilerinin malzeme içerisine nüfuz etmesine bağlı olarak tüm örneklerin kritik akım yoğunluğu giderek azalmaktadır. Bu durum yüksek geçiş sıcaklığına sahip II. tip süperiletken malzemelerin karakteristik bir davranıştır. Uygulanan yüksek manyetik alanlarda J_c değerlerinde kayıpları engellemek için, manyetik alanın yapı içerisinde hareketini engelleyen etkin çivileme merkezleri (flux pinning) oluşturulması literatürde bilinen faydalı bir yöntemdir. Kristal yapı içerisinde akı çivileme merkezleri belirli oranlarda safsızlık fazları ve kristal kusurlar ile oluşturulabilmektedir [33],[34]. Şekil 9'da kritik akım yoğunluğu grafiğinde, yüksek manyetik alan uygulanan bölgelerde, J_c değerlerinde lineer bir azalma gözlemlenmektedir. Örneklerin kritik akım yoğunluğunda bu şekilde davranışın oluşması safsızlık fazlarının çivileme merkezleri gibi davranmadıklarını göstermektedir. Gelişi güzel yönelmiş taneler arasında boşlukların oluşturduğu zayıf bağlantılar ve safsızlık fazlarının artması C örneğinde düşük değerlerde kritik akım yoğunluğu değerlerinin oluşumuna katkıda bulunmuştur. Diğer örnekler ile karşılaştırıldığında, D örneğinde yüksek oranda Bi-2212 fazların meydana gelmesi ve altın nano partiküllerin taneler arası iletkenliği artırması sonucu yüksek değerlerde J_c elde edilmiştir.

4 Sonuçlar

Sunulan çalışmada, $\text{Bi}_{1.8}\text{Sr}_2\text{Ca}_{1.1}\text{Cu}_{2.1}\text{O}_y + (\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O})_x$ ($x=0.0, 0.05, 0.1, 0.2$) seramik yapı süperiletken örnekler katı hal tepkime yöntemi ile hazırlandı. Faz analizi sonuçlarına göre, tüm örneklerin temel faz yapısının Bi-2212 yüksek sıcaklık fazı olduğu tespit edildi. Diğer örnekler ile karşılaştırıldığında, daha az safsızlık fazı ve yüksek oranda Bi-2212 süperiletkenlik fazının oluşumu $x=0.2$ oranında $\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ içeren örnekte gözlemlenmiştir. SEM sonuçları göstermektedir ki, nano boyutta altın partiküllerinin taneler arasındaki boşluklara yerleşmesine bağlı olarak geniş ebatta plaka benzeri tanelerin

oluşumu meydana gelmiştir. Diğer bir taraftan, süperiletkenlik özelliklerinin gelişmesinde önemli bir etken olan daha düzenli tane yönelimleri oluşumu maksimum oranda $\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ içeren örnekte gözlemlenmiştir. Elektriksel ölçüm sonuçlarında, en yüksek T_c^{offset} değeri yüksek oranda Bi-2212 süperiletkenlik fazının oluşumu ve süperiletken taneler arasında kuvvetli bağların meydana gelmesine bağlı olarak $x=0.2$ oranında $\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ eklenen örnekte gözlemlenmiştir. Manyetizasyon ölçümü sonuçlarında ise tüm örneklerde süperiletkenlerin karakteristik davranışı olan diamanyetik özellikler gözlemlenmiştir. Daha düşük sıcaklıklarda sistem üzerine manyetik alan uygulandığı zaman, M-H eğrilerinde gözlenen gelişmeler süperiletken tanelerin arasındaki daha iyi iletkenlik, süperiletken fazların yoğunluğu ve safsızlık fazlarının miktarlarına bağlı olabilmektedir. Yüksek sıcaklıklarda ise, M-H eğrilerinin altında kalan alanın gelişimi etkin çivileme merkezlerinin oluşumu ile açıklanabilir. Süperiletkenlerde dışardan uygulanan manyetik alan malzemeye nüfuz ettiğinde, sistem içerisinde manyetik alan hareketi bir elektrik alan (Lorentz Kuvveti) meydana getirir. Lorentz kuvvetinin etkisini dengelemek için safsızlık veya örgü kusurlarının yarattığı çivileme kuvvetlerine (pinning force) ihtiyaç duyulmaktadır. Diğer bir taraftan, safsızlık fazları ya da örgüdeki kusurlar etkin çivileme merkezi oluşturmazsa, süperiletkenlik özellikler negatif yönde etkilenebilmektedir. İyi bilindiği gibi, bir malzemenin özelliklerinin bozulmadan taşıyabileceği akım miktarı kritik akım yoğunluğu olarak ifade edilmektedir. Yüksek manyetik alanlar süperiletken sistem üzerine uygulandığı zaman, kritik akım yoğunluğu önemli şekilde azalmaktadır. Süperiletkenleri teknolojik uygulamalarda kullanmak için sıfır direnç özelliklerinin yanı sıra kritik akım yoğunluğu değerlerinin de artırılması gerekmektedir [33],[34]. Süperiletken malzemeler yüksek manyetik alanlara maruz kaldıklarında, yüksek akım taşıma kapasiteleri etkili akı çivileme merkezlerinin varlığıyla korunur. Görüldüğü gibi, akı çivileme merkezlerinin varlığı, teknolojik uygulamalarda süperiletkenlerin kullanımı için önemli bir parametredir. Sunulan çalışmada sonuçlar açıkça göstermektedir ki, nano boyutta altın partiküllerinin varlığı önemli ölçüde etkin çivileme merkezleri oluşturmamıştır. Ancak, yüksek kritik akım yoğunluğu için bir diğer önemli etki taneler arasındaki bağlantıların gelişmesine dayalı da olmaktadır. Böylece, bu çalışmada Au'nun yüksek miktarda eklenmesi ile J_c 'de gelişme elde edilmesi taneler arası iletkenliğin daha iyi olmasını sağlayan taneler arası boşluklara yerleşmesine bağlı olduğu söylenebilir.

M-H ölçümlerinde en geniş histerezis alanı, geniş ebatla ve birbirleriyle kuvvetli bağlı tanelerin oluşumuna bağlı olarak $x=0.2$ $\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ eklenen örnekte gözlemlenmiştir. Bu çalışmada, $0 < H < 0.9$ Tesla aralığında uygulanan manyetik alanda, $x=0.2$ oranında $\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ içeren örnek en yüksek kritik akım yoğunluğu değerlerine sahiptir. Sonuçlar açıkça göstermektedir ki, Bi-2212 fazına yüksek miktarda Au nano partiküllerinin eklenmesi temel süperiletkenlik özellikleri geliştirmiştir.

5 Conclusions

In the present study, $\text{Bi}_{1.8}\text{Sr}_2\text{Ca}_{1.1}\text{Cu}_{2.1}\text{O}_y + (\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O})_x$ ($x = 0.0, 0.05, 0.1$ and 0.2) ceramic-structured superconductor samples were prepared by solid state reaction method. According to the phase analysis results, it was determined that the basic phase structure of all samples is the Bi-2212 high temperature phase. Less impurity phase and the formation of

high proportion of Bi-2212 superconducting phase was observed in the sample including $\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ at the ratio of $x = 0.2$, compared to the other samples. The SEM results show that, the formation of large sized plate like grains have occurred due to the nano-sized gold particles located to the voids between the grains, On the other hand, the formation of more regular grain orientations, which is an important factor in the improving of superconducting properties, has observed in the sample including $\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ at maximum ratio. In the electrical measurement results, the highest T_c^{offset} value has observed in the sample adding $\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ at the ratio of $x = 0.2$, due to formation of a high rate of Bi-2212 superconducting phase and the occurring of strong bonds between superconducting grains. In the magnetization measurement results, diamagnetic properties, which are the characteristic behavior of superconductors, have observed in all samples. When magnetic field is applied on the system at lower temperatures, the improvements observed in the M-H curves could be due to the better conductivity between superconducting particles, the density of superconducting phases and the amount of impurity phases. In the high temperatures, the increase of the area under the M-H curves could be explained by the formation of effective pinning centers. When the magnetic field applied externally in superconductors penetrates the material, the movement of the magnetic field within the system creates an electric field (Lorentz Force). To balance the effect of the Lorentz force, pinning force created by lattice defects or impurities is needed. On the other hand, superconductivity properties can be negatively affected if impurity phases or defects in the crystal structure do not form an effective pinning center. As is well known, the maximum amount of current that a material can carry without deteriorating its properties is expressed as the critical current density. When high magnetic fields are applied on the superconducting system, the critical current density significantly decreases. In order to use superconductors in technological applications, it is necessary to increase the critical current density values as well as their zero resistance properties [33],[34]. When superconducting materials are exposed to high magnetic fields, their high current carrying capacity is preserved with the presence of effective flux pinning centers. As can be seen, the presence of flux pinning centers is an important parameter for the use of superconductors in technological applications. The results obtained in the present study clearly show that the presence of nano-sized gold particles does not create an effective pinning centers considerably. However, another important effect for high critical current density are also based on the improvement of intergrain connectivity between the grains. Thus, it can be said that improvement of J_c obtained by adding large amounts of Au in this work strongly depend on its settling in voids between the grains, ensuring better intergrain connectivity.

In the M-H measurements, the largest hysteresis area has observed in the sample adding $x = 0.2$ $\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$, due to the formation of large size and strongly connected particles. In this study, the sample including $\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ at the ratio of $x = 0.2$ has the highest critical current density values in the magnetic field applied in the range of $0 < H < 0.9$ Tesla. The results clearly show that the addition of large amounts of Au nanoparticles to the Bi-2212 phase has improved basic superconducting properties.

6 Kaynaklar

- [1] Fajardo LG, Brouwer L, Caspi S, Hafalia A, Hernikl C, Prestemon S, English C. "Fabrication of Bi-2212 Canted-Cosine-Theta Dipole Prototypes". *IEEE Transactions on Applied Superconductivity*, 29(5), 1-5, 2019.
- [2] Zhang S, Ma X, Cui L, Huang Y, Liu X, Li, C, Zhang P. "Fabrication and optimization of Bi-2212 high temperature superconductors with K and Ag incorporation" *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 30(4), 3418-3425, 2019.
- [3] Terzioglu R, Aydin G, Koc NS, Terzioglu C. "Investigation of the structural, magnetic and electrical properties of the Au doped YBCO superconductors". *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 30(3), 2265-2277, 2019.
- [4] Adachi S, Matsumoto R, Hara H, Saito Y, Song P, Takeya H, Takano Y. "Pressure effect in Bi-2212 and Bi-2223 cuprate superconductor". *Applied Physics Express*, 12(4), 043002, 2019.
- [5] Gorur O, Ozturk Y, Yildirim G, Dogruer M, Terzioglu C. "Sn diffusion coefficient and activation energy determined by way of XRD measurement and evaluation of micromechanical properties of Sn diffused $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ superconducting ceramics". *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 24(8), 3063-3072, 2013.
- [6] Özkurt B, Madre MA, Sotelo A, Diez JC "Effect of metallic Ag on the properties of Bi-2212 ceramic superconductors". *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 24(9), 3344-3351, 2013.
- [7] Aytekin ME, Özkurt B, Sugözü B, Köse E, Sugözü İ. "The effect of different dwell times at a constant palletization pressure of 6 GPa on superconducting properties of $\text{Bi}_{1.8}\text{Sr}_2\text{Ca}_{1.1}\text{Cu}_{2.1}\text{O}_y$ ceramics". *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 27(8), 8068-8073, 2016.
- [8] Çalis M, Özkurt B, Aytekin ME, Gün E, Kir ME, Öztornacı U. "Enhancement of superconducting properties of Bi-2212 ceramics by vanadium-sodium co-doping". *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 27(3), 2670-2675, 2016.
- [9] Özçelik B, Nane O, Sotelo A, Amaveda H, Madre MA "Effect of Na substitution and Ag addition on the superconducting properties of Bi-2212 textured materials". *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 28(8), 6278-26283, 2017.
- [10] Özkurt B, "Structural and magnetic properties of Li and Na added $\text{Bi}_{1.8}\text{Sr}_{2.1}(\text{Li},\text{Na})_x\text{Ca}_{1.1}\text{Cu}_{2.2}\text{O}_y$ (Bi-2212) ceramics" ($x=0, 0.05, 0.1$ and 0.2). *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 28(12), 8857-8863, 2017.
- [11] Ghahfarokhi SE, Zargar Shoushtari M. "Structural and physical properties of Cd-doped $\text{Bi}_{1.64}\text{Pb}_{0.36}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Cd}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$ superconductor". *Physica B: Physics of Condensed Matter*, 405(22), 4643-4649, 2010.
- [12] Khalil SM. "Enhancement of superconducting and mechanical properties in BSCCO with Pb additions". *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 62(3), 457-466, 2001.
- [13] Jiang LY, Sun Y, Wan X, Wang K, Xu G, Chen X, Ruan K, Du J. "Improvement of the phase formation and superconductivity of the $(\text{Bi},\text{Pb})_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}$ silver-sheathed tapes with B_2O_3 addition". *Physica C: Superconductivity*, 300(1-2), 61-66, 1998.
- [14] Biju A, Vinod K, Aloysius RP, Syamaprasad U. "Improved superconducting properties by La addition in (Bi, Pb)-2212 bulk superconductor". *Journal of Alloys and Compounds*, 431(1-2), 49-55, 2007.
- [15] Bilgili O, Selamet Y, Kocabaş K. "Effects of Li Substitution in Bi-2223 Superconductors". *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*, 21(8), 439-449, 2008.
- [16] Jin S, Sherwood RC, Tiefel TH, Kammiott GW, Fastnacht RA, Davis ME, Zahurak SM. "Superconductivity in the Bi-Sr-Ca-Cu-O compounds with noble metal additions". *Applied Physics Letters*, 52(19), 1628-1630, 1988.
- [17] Liu HK, Dou SX, Song KH, Sorrell CC. "Superconducting properties of Au/Bi-Pb-Sr-Ca-Cu composites". *Superconductor Science and Technology*, 3(4), 210-212, 1990.
- [18] Öztornacı U, Özkurt B. "The effect of nano-sized metallic Au addition on structural and magnetic properties of $\text{Bi}_{1.8}\text{Sr}_2\text{Au}_x\text{Ca}_{1.1}\text{Cu}_{2.1}\text{O}_y$ (Bi-2212) ceramics". *Ceramics International*, 43(5), 4545-4550, 2017.
- [19] Saritekin NK, Pakdil M, Bekiroğlu E, Yildirim G. "Examination of effective nucleation centers for flux pinning of vortices and optimum diffusion annealing temperature for Au-diffusion-doped Bi-2212 polycrystalline compound". *Journal of Alloys and Compounds*, 688, 637-646, 2016.
- [20] Kimling J, Maier M, Okenve B, Kotaidis V, Ballot H. "Plech, A. Turkevich method for gold nanoparticle synthesis revisited". *The Journal of Physical Chemistry B*, 110(32), 15700-15707, 2006.
- [21] Dobrowolska P, Krajewska A, Gajda-Rączka M, Bartosewicz B, Nyga P, Jankiewicz B. "Application of Turkevich method for gold Nanoparticles synthesis to fabrication of $\text{SiO}_2@ \text{Au}$ and $\text{TiO}_2@ \text{Au}$ Core-Shell nanostructures". *Materials*, 8(6), 2849-2862, 2015.
- [22] Özkurt B. "Enhancement in superconducting transition temperature and J_c values in Na-doped $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_{2-x}\text{Na}_x\text{O}_y$ superconductors". *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 24(7), 2426-2431, 2013.
- [23] Inoue M, Hirasawa I. "The relationship between crystal morphology and XRD peak intensity on $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ". *Journal of Crystal Growth*, 380, 169-175, 2013.
- [24] Kir ME, Özkurt B, Aytekin ME. "The effect of K-na co-doping on the formation and particle size of Bi- 2212 phase". *Physica B*, 490, 8068-8073, 2016.
- [25] Heon LS. "Effect of Ag_2O doping on the superconductivity of the BiPbSrCaCuO oxide". *Materials Chemistry and Physics*. 75(1-3), 166-169, 2002.
- [26] Zalaoglu Y, Yildirim G, Terzioglu C. "Magnetoresistivity Study on Cr Added Bi-2212 Superconductor Ceramics with Experimental and Theoretical Approaches". *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 24(1), 239-247, 2013.
- [27] Presland MR, Tallon JL, Buckley RG, Liu RS, Floer NE. "General trends in oxygen stoichiometry effects on T_c in Bi and Tl superconductors". *Physica C*, 176(1-3), 95-105, 1991.
- [28] Zavaritsky VN. "Phase transition of BSCCO in high magnetic fields". *Journal of Superconductivity*, 15(6), 567-570, 2002.
- [29] Aksan MA, Yakinci ME. "Synthesis and characterization of Er-substituted Bi-2223 H-Tc glass-ceramic superconductors". *Journal of Alloys and Compounds*, 385(1-2), 33-43, 2004.

- [30] Koike Y, Iwabuchi Y, Hosoya S, Kobayashi N, Fukase T. "Correlation between Tc and hole concentration in the cation-substituted Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ} system". *Physica C*, 159(1-2), 105-110, 1989.
- [31] Yavuz Ş, Bilgili Ö, Kocabaş K. "Effects of superconducting parameters of SnO₂ nanoparticles addition on (Bi, Pb)-2223 phase". *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 27(5), 4526-4533, 2016.
- [32] Bean CP. "Magnetization of high-field superconductors". *Physical Review Letters*, 36(1), 31-39, 1962.
- [33] Nane FK, Özçelik B. "Structural, superconducting and vortex pinning properties of Nb-substituted Bi-2212 ceramic superconductor". *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 30(1), 12783-12789, 2019.
- [34] Biju A, Sarun PM, Aloysius RP, Syamaprasad U. "Flux pinning properties of Yb substituted (Bi, Pb)-2212 superconductor". *Journal of Alloys and Compounds*, 454(1-2), 46-51, 2008.