



**T.C.
MUSTAFA KEMAL ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**FERROELEKTRİK MALZEMELERDE KULLANILAN YENİ TİP
SERAMİKLERİN ÜRETİMİ ve KARAKTERİZASYONU**

Selvin TURGUT

KİMYA ANABİLİM DALI

DOKTORA TEZİ

**HATAY
OCAK-2018**



T.C.
MUSTAFA KEMAL ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**FERROELEKTRİK MALZEMELERDE KULLANILAN YENİ TİP
SERAMİKLERİN ÜRETİMİ ve KARAKTERİZASYONU**

Selvin TURGUT

KİMYA ANABİLİM DALI

DOKTORA TEZİ

**HATAY
OCAK-2018**

T.C.
MUSTAFA KEMAL ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**FERROELEKTRİK MALZEMELERDE KULLANILAN YENİ TİP
SERAMİKLERİN ÜRETİMİ ve KARAKTERİZASYONU**

Selvin TURGUT

KİMYA ANABİLİM DALI

DOKTORA TEZİ

Yrd. Doç. Dr. Zeki AYDIN danışmanlığında hazırlanan bu tez 22/01/2018 tarihinde aşağıdaki jüri üyeleri tarafından **OYBİRLİĞİ** ile kabul edilmiştir.

Yrd. Doç. Dr. Zeki AYDIN
Başkan

Prof. Dr. İsmail Hakkı KARAHAN
Üye

Prof. Dr. Şana SUNGUR
Üye

Prof. Dr. Uğur ŞAHİN
Üye

Yrd. Doç. Dr. Ali GÜNEN
Üye

Kod No:

Prof. Dr. Erdal SERTKAYA
Enstitü Müdürü

Bu çalışma MKÜ Bilimsel Araştırma Projeleri Komisyonu tarafından desteklenmiştir.
Proje No: 10165

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

22/01/2018

TEZ BİLDİRİMİ

Tez içindeki bütün bilgilerin etik davranış ve akademik kurallar çerçevesinde elde edilerek sunulduğunu, tez yazım kurallarına uygun olarak hazırlanan bu çalışmada bana ait olmayan her türlü ifade ve bilginin kaynağına eksiksiz atıf yapıldığını ve tez üzerinde Yükseköğretim Kurulu tarafından hiçbir değişiklik yapılamayacağı için tezin bilgisayar ekranında görüntülendiğinde asıl nüsha ile aynı olması sorumluluğunun tarafıma ait olduğunu beyan ederim.

Selvin TURGUT

ÖZET

FERROELEKTRİK MALZEMELERDE KULLANILAN YENİ TİP SERAMİKLERİN ÜRETİMİ ve KARAKTERİZASYONU

1900'lü yılların başlarından itibaren sentezlenip kullanılmaya başlanan katkılı ve katkısız BaTiO_3 , SrTiO_3 , $(\text{Ba/Sr})\text{TiO}_3$ seramikler sahip oldukları mekanik, elektrik, termal ve biyokimyasal özellikleri nedeniyle otomotiv, elektrik/elektronik, medikal teknolojiler, makine mühendisliği vb. endüstrilerde kendilerine uygulama alanı bulmaktadırlar.

Bu tez kapsamında katkılı/katkısız BaTiO_3 , SrTiO_3 , $(\text{Ba/Sr})\text{TiO}_3$ seramik tozları henüz yeni kullanılmaya başlanan ultrasonik karıştırma tekniği kullanılarak katı hal sentez yöntemi ile sentezlenmiştir. Ultrasonik karıştırma tekniği ve çalkalama tekniği ile katkısız BaTiO_3 seramiği sentezlenmiş; bu iki teknik arasındaki avantajlar ve dezavantajlar belirlenmiştir. Daha küçük tanecikli ve homojen kristal yapılar elde edilmesi, homojenizasyon süresinin kısalığı, XRD analizinde sinyal/gürültü oranının yüksek olması gibi avantajlı özelliklerinden dolayı ultrasonik karıştırma tekniği katkılı ve katkısız BaTiO_3 , SrTiO_3 , $(\text{Ba/Sr})\text{TiO}_3$ tozları üretimi için tercih edilmiştir. Katkı olarak farklı mol oranlarında Mn, K, In, Rb, Pr iyonları ilave edilerek formülasyonları yapılmıştır. Ba, Sr ve Ti yerine katkılanan iyonların katkılama miktarları farklı olmakla birlikte (mol cinsinden) % 0,05 - 60 arasında yapılmıştır. Katkılı ve katkısız seramik tozların morfolojik özellikleri, kristal yapısı ve tanecik boyutları X-ışını difraksiyonu (XRD), taramalı elektron mikroskobu (SEM) ve alan emisyon taramalı elektron mikroskobu (FESEM) cihazları kullanılarak incelenmiş, katkılama ile birlikte yapıda meydana gelen değişiklikler tartışılmıştır.

Oluşturulan yapıların kimyasal analizi için, örnekler derişik hidroklorik asit ile çözülerek ya gravimetrik tayin metodu ya da atomik absorpsiyon spektrometresi ile analiz edilmiştir.

2018, 269 sayfa

Anahtar kelimeler: Seramik, katı hal sentez yöntemi, ultrasonik karıştırıcı, X-ışını difraksiyonu (XRD), taramalı elektron mikroskobu (SEM)

ABSTRACT

THE SYNTHESIS and CHARACTERIZATION of NEW TYPE CERAMICS USED in FERROELECTRIC MATERIALS

The doped and undoped BaTiO₃, SrTiO₃, (Ba/Sr)TiO₃ ceramic powders which have been started to be synthesized and have area of using from the beginning of 1900's, have many application areas such as automotive, electrical/electronic, medical technology, mechanical engineering due to their mechanical, electrical, thermal and biochemical properties etc.

In this thesis, doped and undoped BaTiO₃, SrTiO₃, (Ba/Sr)TiO₃ ceramic powders are synthesized by using a new ultrasonic mixing technique according to solid state synthesis method. Undoped BaTiO₃ ceramics were synthesized by ultrasonic mixing and shaking techniques, the advantages and disadvantages of these two techniques have been determined and because of obtaining smaller grain and homogeneous crystal structures, shortness of homogenization time and high signal/noise ratio in XRD analysis; the ultrasonic mixing technique has been preferred for the synthesis of doped and undoped BaTiO₃, SrTiO₃, (Ba/Sr)TiO₃ powders. Formulations were done by doping manganese (Mn), potassium (K), indium (In), rubidium (Rb), praseodymium (Pr) ions in different molar ratios instead of Ba, Sr and Ti ions and the amounts of them were varied between 0,05 and 60 % (molar). The morphological properties, crystal structure and grain size of doped and undoped ceramic powders were determined by using X-ray diffraction (XRD) device, scanning electron microscope (SEM) and field emission scanning electron microscope devices. The changes in structure after doping observed and discussed.

For chemical analysis of obtained structures, samples were dissolved with concentrate hydrochloric acid and analyzed using by gravimetric determination method or atomic absorption spectrometry.

2018, 269 pages

Keywords: Ceramic, solid state method, ultrasonic processor, X-ray diffraction (XRD), scanning electron microscope (SEM)

TEŞEKKÜR

Doktora eğitimim süresince manevi desteğini sürekli hissettiğim, bilgi birikimi ve tecrübesinden çalışmamın her aşamasında faydalandığım, değerli danışman hocam Yrd. Doç. Dr. Zeki AYDIN'a gösterdiği sabır ve iyi niyet için sonsuz saygı ve teşekkürlerimi sunarım.

Bilgi ve tecrübeleriyle desteklerini esirgemeyen tez izleme komitesinin değerli üyeleri Prof. Dr. İsmail Hakkı KARAHAN'a ve Prof. Dr. Şana SUNGUR'a; tez süresince manevi desteğini her zaman hissettiğim bilgi birikimiyle bana yol gösteren değerli hocam Prof. Dr. Uğur ŞAHİN'e; laboratuvar imkanlarından yararlanmamı sağlayan değerli hocalarım Yrd. Doç. Dr. Erdoğan KANCA'ya ve Yrd. Doç. Dr. Ali GÜNEN'e bu süreçte yanımda oldukları için teşekkür ederim.

Tez çalışmalarım boyunca ilgi ve desteklerini gördüğüm MKÜ Teknoloji ve Ar-Ge Uygulama ve Araştırma Merkezi bünyesinde çalışan değerli arkadaşlarıma; manevi destekleriyle beni sabırla dinleyen ve her zaman yanımda olan Hatay'ın bana kattığı çok değerli dostlarıma; hayatımın her anında maddi ve manevi desteklerini esirgemeyen, ilgi ve sevgilerini her zaman hissettiğim değerli eşime ve aileme çok teşekkür ederim.

İÇİNDEKİLER

ÖZET.....	I
ABSTRACT.....	II
TEŞEKKÜR.....	III
İÇİNDEKİLER	IV
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	VI
ÇİZELGELER DİZİNİ	XI
SİMGELER ve KISALTMALAR DİZİNİ	XII
1. GİRİŞ	1
2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR.....	7
3. MATERYAL ve YÖNTEM.....	15
3.1. Materyal	15
3.1.1. Kullanılan Kimyasal Maddeler	15
3.1.2. Kullanılan Cihazlar	15
3.2. Yöntem.....	16
3.2.1. Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu	16
3.2.1.1. Baryum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu.....	16
3.2.1.2. Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu.....	18
3.2.1.3. Baryum / Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu.....	19
3.2.2. İyon Katkılı (Mn^{3+} , K^{+} , In^{3+} , Rb^{+} , Pr^{+}) Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu	20
3.2.2.1. Mangan Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu.....	20
3.2.2.2. Potasyum Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu.....	21
3.2.2.3. İndiyum Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu.....	22
3.2.2.4. Rubidyum Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu.....	23
3.2.2.5. Praseodimiyum Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu.....	24
3.2.3. Kimyasal Analizler.....	25
3.2.3.1. Sentezlenen $BaTiO_3$ Seramiğindeki Baryum Miktarının Belirlenmesi.....	25
3.2.3.2. Sentezlenen $BaMn_xTi_{1-x}O_3$, $SrMn_xTi_{1-x}O_3$, $Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_xTi_{1-x}O_3$ Seramiklerindeki Mangan Miktarının Belirlenmesi.....	26
4. ARAŞTIRMA BULGULARI ve TARTIŞMA.....	27

4.1. Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu	27
4.1.1. Baryum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Sentezi ve Karakterizasyonu	27
4.1.2. Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Sentezi ve Karakterizasyonu	39
4.1.3. Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Sentezi ve Karakterizasyonu	47
4.2. İyon Katkılı (Mn^{3+} , K^{+} , In^{3+} , Rb^{+} , Pr^{+}) Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu	57
4.2.1. Mangan Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu	57
4.2.2. Potasyum Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu	96
4.2.3. İndiyum Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu	136
4.2.4. Rubidyum Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu	173
4.2.5. Praseodimiyum Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu	212
4.3. Kimyasal Analizler.....	252
4.3.1. Sentezlenen $BaTiO_3$ Seramiğindeki Baryum Miktarının Belirlenişi.....	252
4.3.2. Sentezlenen $BaMn_xTi_{1-x}O_3$ Seramiklerindeki Mangan Miktarının Belirlenişi.....	252
4.3.3. Sentezlenen $SrMn_xTi_{1-x}O_3$ Seramiklerindeki Mangan Miktarının Belirlenişi.....	254
4.3.4. Sentezlenen $Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_xTi_{1-x}O_3$ Seramiklerindeki Mangan Miktarının Belirlenişi.....	255
5. SONUÇ ve ÖNERİLER.....	257
5.1. Sonuç.....	257
5.2. Öneriler	261
KAYNAKLAR	262
ÖZGEÇMİŞ	269

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 1.1. BaTiO ₃ 'ın sıcaklığa bağlı faz dönüşümleri (Ersoy, 2010).....	2
Şekil 1.2. BaO-TiO ₂ faz diyagramı (Bell, 2008).....	3
Şekil 4.1. Çalkalayıcı cihazı, ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak üretilen ve ticari olarak satılan BaTiO ₃ 'ın XRD diyagramları.....	28
Şekil 4.2. Tetragonal baryum titanat yapısı	29
Şekil 4.3. Sıcaklığın fonksiyonu olarak baryum titanatın latis parametreleri	30
Şekil 4.4. Kalsinasyon işlemi sonrası ultrasonik homojenizasyon cihazı ve çalkalayıcı kullanılarak elde edilen seramik yapılara ait SEM görüntüleri	30
Şekil 4.5. Sinterleme işlemi sonrası ultrasonik homojenizasyon cihazı ve çalkalayıcı kullanılarak elde edilen seramik yapılara ait SEM görüntüleri	31
Şekil 4.6. 4-24 saat süreyle 1100 °C'de kalsine edilen BaTiO ₃ 'ın XRD diyagramları	32
Şekil 4.7. 800 - 1200 °C'de 4 saat sürede kalsine edilen BaTiO ₃ 'ın XRD diyagramları	34
Şekil 4.8. 1-11 saat süreyle 1400 °C'de sinterlenen BaTiO ₃ 'ın SEM görüntüleri	37
Şekil 4.9. 1300 - 1500 °C'de 8 saat sürede sinterlenen BaTiO ₃ 'ın SEM görüntüleri.....	38
Şekil 4.10. Ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak üretilen SrTiO ₃ 'ın XRD diyagramı	39
Şekil 4.11. SrTiO ₃ 'ın kübik yapısı	40
Şekil 4.12. Kalsinasyon işlemi sonrası ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak elde edilen seramik yapıya ait SEM görüntüsü.....	41
Şekil 4.13. 2-8 saat süreyle 1100 °C'de kalsine edilen SrTiO ₃ 'ın XRD diyagramları	41
Şekil 4.14. 800 - 1200 °C'de 2 saat sürede kalsine edilen SrTiO ₃ 'ın XRD diyagramları	43
Şekil 4.15. 1400 - 1600 °C'de 12 saat süre sinterlenen SrTiO ₃ 'ın SEM görüntüleri	46
Şekil 4.16. Ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak üretilen Ba _{1-x} Sr _x TiO ₃ (x: 0; 0,2; 0,4; 0,6; 0,8; 1,0) seramik yapılara ait XRD diyagramları	48
Şekil 4.17. Katı hal sentez yöntemiyle üretilen Ba _{0,5} Sr _{0,5} TiO ₃ tozunun kalsinasyon işlemi sonrasına ait SEM görüntüsü.....	52
Şekil 4.18. 1-4 saat süreyle 1100 °C de kalsine edilen Ba _{0,5} Sr _{0,5} TiO ₃ 'ın XRD diyagramları	52
Şekil 4.19. 800 - 1200 °C de 2 saat sürede kalsine edilen Ba _{0,5} Sr _{0,5} TiO ₃ 'ın XRD diyagramları	55
Şekil 4.20. BaMn _x Ti _{1-x} O ₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ve Mn ₂ O ₃ bileşiğine ait XRD diyagramları.....	58
Şekil 4.21. BaMn _x Ti _{1-x} O ₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ve Mn ₂ O ₃ bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı	64
Şekil 4.22. BaMn _x Ti _{1-x} O ₃ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ait SEM görüntüleri	65
Şekil 4.23. a) Tetragonal kristal yapısı (BaTiO ₃ seramiği kafes yapısı) b) Mn ₂ O ₃ katkılı BaTiO ₃ seramiğinde Mn iyonu ile Ti iyonunun yer değişimi.....	68
Şekil 4.24. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi.....	70
Şekil 4.25. SrMn _x Ti _{1-x} O ₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ve Mn ₂ O ₃ bileşiğine ait XRD diyagramları.....	71

Şekil 4.26. $\text{SrMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ve Mn_2O_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı	77
Şekil 4.27. $\text{SrMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ait SEM görüntüleri	78
Şekil 4.28. a) Kübik kristal yapı (SrTiO_3 seramiği kafes yapısı) b) Mn_2O_3 katkılı SrTiO_3 seramiğinde Mn iyonu ile Ti iyonunun yer değişimi	81
Şekil 4.29. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi	83
Şekil 4.30. $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{Mn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ve Mn_2O_3 bileşiğine ait XRD diyagramları	84
Şekil 4.31. $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{Mn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ve Mn_2O_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı	90
Şekil 4.32. $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{Mn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ait SEM görüntüleri	91
Şekil 4.33. a) Kübik kristal yapı ($\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{TiO}_3$ seramiği kafes yapısı) b) Mn_2O_3 katkılı $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{TiO}_3$ seramiğinde Mn iyonu ile Ti iyonunun yer değişimi	94
Şekil 4.34. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi	95
Şekil 4.35. $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve K_2CO_3 bileşiğine ait XRD diyagramları	97
Şekil 4.36. $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve K_2CO_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı	103
Şekil 4.37. $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri	104
Şekil 4.38. a) Tetragonal kristal yapı (BaTiO_3 seramiği kafes yapısı) b) K_2CO_3 katkılı BaTiO_3 seramiğinde K iyonu ile Ba iyonunun yer değişimi	107
Şekil 4.39. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi	109
Şekil 4.40. $\text{Sr}_{1-x}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve K_2CO_3 bileşiğine ait XRD diyagramları	110
Şekil 4.41. $\text{Sr}_{1-x}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve K_2CO_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı	116
Şekil 4.42. $\text{Sr}_{1-x}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri	117
Şekil 4.43. a) Kübik kristal yapı (SrTiO_3 seramiği kafes yapısı) b) K_2CO_3 katkılı SrTiO_3 seramiğinde K iyonu ile Sr iyonunun yer değişimi	120
Şekil 4.44. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi	122
Şekil 4.45. $\text{Ba}_{0,5-x/2}\text{Sr}_{0,5-x/2}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve K_2CO_3 bileşiğine ait XRD diyagramları	123
Şekil 4.46. $\text{Ba}_{0,5-x/2}\text{Sr}_{0,5-x/2}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve K_2CO_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı	129
Şekil 4.47. $\text{Ba}_{0,5-x/2}\text{Sr}_{0,5-x/2}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri	130
Şekil 4.48. a) Kübik kristal yapı ($\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{TiO}_3$ seramiği kafes yapısı) b) K_2CO_3 katkılı $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{TiO}_3$ seramiğinde K iyonu ile Ba ve Sr iyonlarının yer değişimi	133

Şekil 4.49. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi.....	135
Şekil 4.50. $\text{BaIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve In_2O_3 bileşiğine ait XRD diyagramları.....	137
Şekil 4.51. $\text{BaIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve In_2O_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı	143
Şekil 4.52. $\text{BaIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri	144
Şekil 4.53. a) Tetragonal kristal yapı (BaTiO_3 seramiği kafes yapısı) b) In_2O_3 katkılı BaTiO_3 seramiğinde In iyonu ile Ti iyonunun yer değişimi	147
Şekil 4.54. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi.....	148
Şekil 4.55. $\text{SrIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve In_2O_3 bileşiğine ait XRD diyagramları.....	149
Şekil 4.56. $\text{SrIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve In_2O_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı	155
Şekil 4.57. $\text{SrIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri	156
Şekil 4.58. a) Kübik kristal yapı (SrTiO_3 seramiği kafes yapısı) b) In_2O_3 katkılı SrTiO_3 seramiğinde In iyonu ile Ti iyonunun yer değişimi	159
Şekil 4.59. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi.....	161
Şekil 4.60. $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve In_2O_3 bileşiğine ait XRD diyagramları....	162
Şekil 4.61. $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve In_2O_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı.....	168
Şekil 4.62. $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,01; 0,025; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri	169
Şekil 4.63. a) Kübik kristal yapı ($\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{TiO}_3$ seramiği kafes yapısı) b) In_2O_3 katkılı $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{TiO}_3$ seramiğinde In iyonu ile Ti iyonunun yer değişimi	171
Şekil 4.64. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi.....	173
Şekil 4.65. $\text{Ba}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve Rb_2CO_3 bileşiğine ait XRD diyagramları.....	174
Şekil 4.66. $\text{Ba}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve Rb_2CO_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı ...	180
Şekil 4.67. $\text{Ba}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri	181
Şekil 4.68. a) Tetragonal kristal yapı (BaTiO_3 seramiği kafes yapısı) b) Rb_2CO_3 katkılı BaTiO_3 seramiğinde Rb iyonu ile Ba iyonunun yer değişimi.....	184
Şekil 4.69. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi.....	186
Şekil 4.70. $\text{Sr}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve Rb_2CO_3 bileşiğine ait XRD diyagramları.....	187
Şekil 4.71. $\text{Sr}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve Rb_2CO_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı ...	193
Şekil 4.72. $\text{Sr}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri	194
Şekil 4.73. a) Kübik kristal yapı (SrTiO_3 seramiği kafes yapısı) b) Rb_2CO_3 katkılı SrTiO_3 seramiğinde Rb iyonu ile Sr iyonunun yer değişimi.....	197
Şekil 4.74. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi.....	199

Şekil 4.75. $Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Rb_xTiO_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve Rb_2CO_3 bileşiğine ait XRD diyagramları	200
Şekil 4.76. $Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Rb_xTiO_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve Rb_2CO_3 ait çoklu XRD diyagramı.....	206
Şekil 4.77. $Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Rb_xTiO_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri.....	207
Şekil 4.78. a) Kübik kristal yapı ($Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ seramiği kafes yapısı) b) Rb_2CO_3 katkılı $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ seramiğinde Rb iyonu ile Ba ve Sr iyonlarının yer değişimi	210
Şekil 4.79. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi.....	211
Şekil 4.80. $Ba_{1-x}Pr_xTiO_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve Pr_6O_{11} bileşiğine ait XRD diyagramları	213
Şekil 4.81. $Ba_{1-x}Pr_xTiO_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve Pr_6O_{11} bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı.....	219
Şekil 4.82. $Ba_{1-x}Pr_xTiO_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri	220
Şekil 4.83. a) Tetragonal kristal yapı ($BaTiO_3$ seramiği kafes yapısı) b) Pr_6O_{11} katkılı $BaTiO_3$ seramiğinde Pr iyonu ile Ba iyonunun yer değişimi	223
Şekil 4.84. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi.....	224
Şekil 4.85. $Sr_{1-x}Pr_xTiO_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve Pr_6O_{11} bileşiğine ait XRD diyagramları	225
Şekil 4.86. $Sr_{1-x}Pr_xTiO_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve Pr_6O_{11} bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı.....	231
Şekil 4.87. $Sr_{1-x}Pr_xTiO_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri	232
Şekil 4.88. a) Kübik kristal yapı ($SrTiO_3$ seramiği kafes yapısı) b) Pr_6O_{11} katkılı $SrTiO_3$ seramiğinde Pr iyonu ile Sr iyonunun yer değişimi	235
Şekil 4.89. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi.....	237
Şekil 4.90. $Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Pr_xTiO_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve Pr_6O_{11} bileşiğine ait XRD diyagramları	238
Şekil 4.91. $Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Pr_xTiO_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve Pr_6O_{11} bileşiğine ait çoklu XRD diyagramları	244
Şekil 4.92. $Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Pr_xTiO_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri	245
Şekil 4.93. a) $Ba_{0,50}Sr_{0,50}TiO_3$ seramiğinin kristal yapısı b) Pr_6O_{11} katkılı $Ba_{0,50}Sr_{0,50}TiO_3$ seramiğinde Pr iyonu ile Ba ve Sr iyonlarının yer değişimi	248
Şekil 4.94. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi.....	249
Şekil 4.95. $Ba_{0,475}Sr_{0,475}Pr_{0,05}TiO_3$ seramik yapısına ait FESEM görüntüleri.....	250
Şekil 4.96. Mn'in atomik absorpsiyon spektrometresi cihazı ile tayinine ait kalibrasyon doğrusu	253
Şekil 4.97. Mn'in atomik absorpsiyon spektrometresi cihazı ile tayinine ait kalibrasyon doğrusu	254

Şekil 4.98. Mn'in atomik absorpsiyon spektrometresi cihazı ile tayinine ait kalibrasyon doğrusu	255
---	-----



ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 3.1. Analizlerde kullanılan kimyasallar	15
Çizelge 3.2. Analizlerde kullanılan cihazlar	16
Çizelge 4.1. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları	69
Çizelge 4.2. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları	82
Çizelge 4.3. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları	95
Çizelge 4.4. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları	108
Çizelge 4.5. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları	121
Çizelge 4.6. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları	134
Çizelge 4.7. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları	148
Çizelge 4.8. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları	160
Çizelge 4.9. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları	172
Çizelge 4.10. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları	185
Çizelge 4.11. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları	198
Çizelge 4.12. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları	211
Çizelge 4.13. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları	224
Çizelge 4.14. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları	236
Çizelge 4.15. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları	249
Çizelge 4.16. $BaMn_xTi_{1-x}O_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40) analiz sonuçları ve geri kazanım değerleri	253
Çizelge 4.17. $SrMn_xTi_{1-x}O_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) analiz sonuçları ve geri kazanım değerleri	255
Çizelge 4.18. $Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_xTi_{1-x}O_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) analiz sonuçları ve geri kazanım değerleri	256

SİMGELER ve KISALTMALAR DİZİNİ

SİMGELER

dk.	: Dakika
g	: Gram
mL	: Mililitre
nm	: Nanometre
ppm	: Milyonda bir
r	: İyon yarıçapı
sa.	: Saat
°C	: Santigrad derece
%	: Yüzde
µm	: Mikrometre
β	: Maksimum şiddet pikinin yarı yükseklikteki genişliği
λ	: X-ışını dalga boyu
Θ	: Bragg açısı

KISALTMALAR

K	: Şekil faktörü
A	: Absorbans
C	: Konsantrasyon
EDAX	: Enerji dağıtıcı spektroskopisi
SEM	: Taramalı elektron mikroskopu
XRD	: X-ışını kırınımı
FESEM	: Alan emisyon taramalı elektron mikroskobu
TEM	: Termal elektron mikroskopu
DSC	: Diferansiyel taramalı kalorimetri
XRF	: X-ışını floresans spektrometresi
TG-DTA	: Termal gravimetrik analiz
UV-Vis	: Ultraviyole-görünür bölge spektroskopisi
FT-IR	: Fourier-Transform İnfrared Spektroskopisi

HR-XPS	: Yüksek çözünürlüklü X-ışını fotoelektron spektrometresi
BET	: Yüzey alanı ölçüm cihazı
HRCAAS	: Yüksek çözünürlüklü atomik absorpsiyon spektrometresi
MIM	: Metal-yalıtkan-metal



1. GİRİŞ

Sanayi devrimi ve sonrasında yeni teknolojilerin gelişmesiyle kullanılan ürünlerin çeşitliliği oldukça artmış; bu ürünlerle ilgili Ar-Ge ve üretim süreçleri konularındaki araştırmalar teknoloji de iyi bir yer edinmiştir. Bu nedenle amaca uygun, kapasitesi yüksek, maliyeti düşük ve geniş uygulama alanı bulan malzemelerin üretimi ve kullanımı büyük önem arz etmektedir.

Yüksek katma değerli teknolojik malzemeleri; metalik malzemeler, polimer malzemeler ve seramik malzemeler olarak sınıflandırabilir.

1. Metalik malzemeler (demir, bakır, çinko, titanyum vb.), bir veya daha fazla metalik elementten meydana gelen ve bazı metalik olmayan elementleri de içeren, iyi ısı ve elektrik iletkenliğine sahip, oda sıcaklığına dayanıklı, yüksek sıcaklıklarda bile dayanımlarını koruyabilen malzemelerdir (Smith, 2012).
2. Polimer malzemeler, yapılarında karbon içeren, uzun molekül zincirlerine ve ağlarına sahip elektriği iletmeyen, düşük yoğunluğa, düşük yumuşama ve bozunma sıcaklığına sahip malzemelerdir (Smith, 2012).
3. Seramik malzemeler, metal ve ametal elementlerin birbirlerine birinci derece iyonik veya kovalent bağıyla bağlandığı inorganik, metal dışı malzemelerdir (Smith, 2012).

Seramik malzemelerin özellikleri atomlar arası bağlarına göre değişmekle birlikte güçlü atom bağlarına sahip olmaları nedeniyle kimyasal olarak kararlıdır ve yüksek erime sıcaklığına sahiptirler. Genel olarak düşük tokluk ve süneklikte olup sert ve kırılgandır. Bununla birlikte seramik malzemeler iletim elektronlarına sahip olmadıkları için elektrik ve ısıyı iyi yalıtlar (Moulson, 2003).

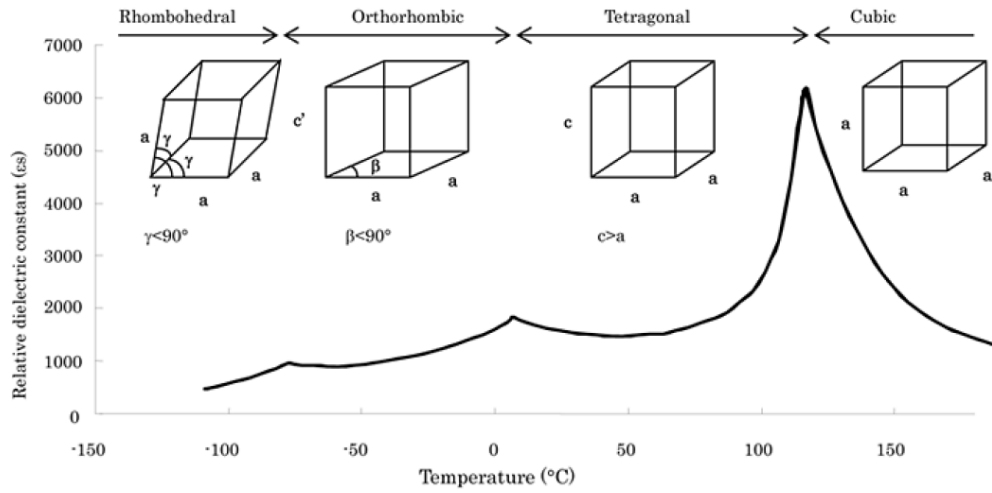
Seramiklerde, refraktörlerde, elektronik sanayisinde veya nükleer atıkların depolanmasında uygulama alanı bulabilen perovskit yapıya sahip olan malzemeler 1839 yılında Ural dağlarında Gustav Rose tarafından keşfedilmiştir. Perovskitler ABO_3 kimyasal formülüne sahip olup çok farklı çeşitte element kombinasyonu ile üretilmektedir. Yarıçapı büyük yada küçük olan katyonlar yapıya girerek yapının esnek olmasını, boşluk oluşumunu diğer yapısal farklılıkların meydana gelmesini sağlarlar (Ertug, 2008).

Perovskite yapıya sahip olan baryum titanat ve stronsiyum titanat seramikleri

farklı uygulama alanları nedeniyle sık olarak yararlanılan malzemelerdir.

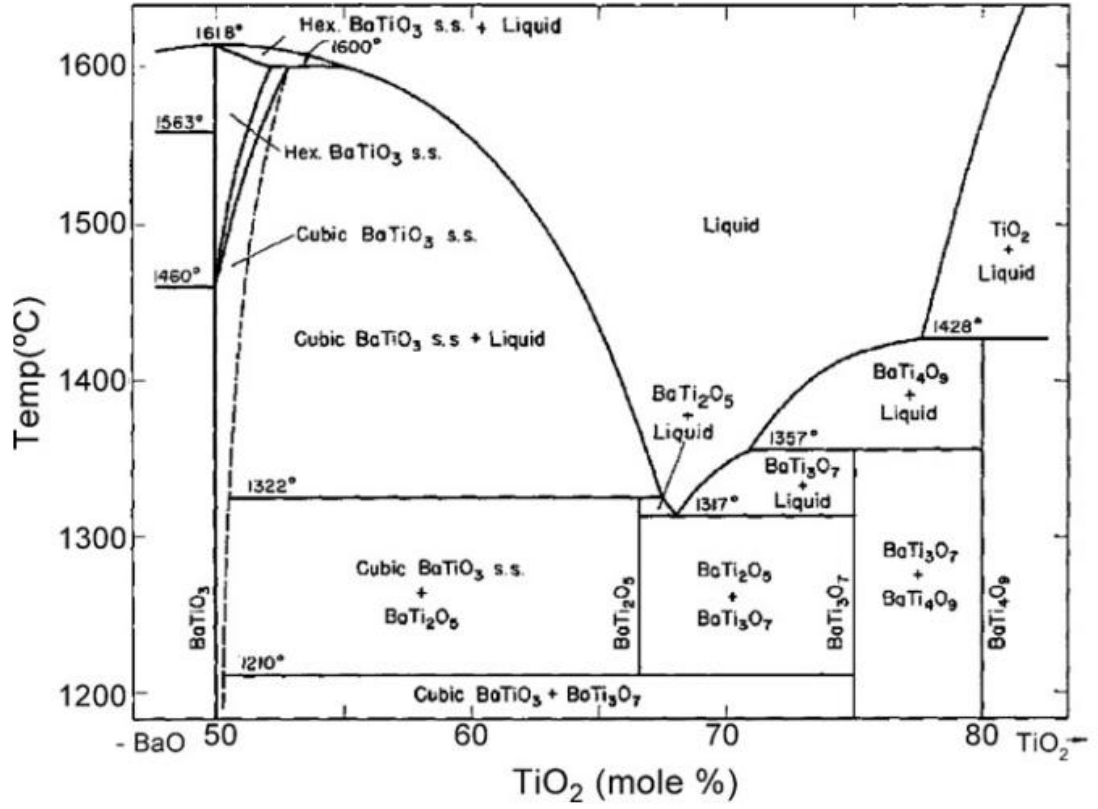
Baryum titanat (BaTiO_3) ilk ticari piezoelektrik seramik olup, 1942 yılında Wainer ve Solomon tarafından ABD'de keşfedilmiştir. 1950'li yılların başlarında baryum titanat esaslı piezoelektrik malzemeler günlük (televizyon ve radyo devrelerinde kullanılan kapasitörler, pikaplarda kullanılan aktif elemanlar vb.) ve askeri uygulamalarda kullanılmaya başlanmıştır. (Ertug, 2008)

BaTiO_3 sahip olduğu kristal yapısına bağlı olarak paraelektrik veya ferroelektrik özellik göstermektedir. Hekzagonal ve kübik yapıları paraelektrik özellik gösterirken; tetragonal, ortorombik ve rombohedral yapıları ferroelektrik özellik göstermektedir (Ersoy, 2010).



Şekil 1.1. BaTiO_3 'ün sıcaklığa bağlı faz dönüşümleri (Ersoy, 2010)

Şekil 1.1'de görülen BaO-TiO_2 faz diyagramına göre BaTiO_3 1460 °C'nin üzerinde kararlı bir hekzagonal yapıya sahipken, 1460 °C'nin altına soğutma ile hekzagonal faz kübik faza dönüşmektedir. Ferroelektrik-paraelektrik dönüşümün görüldüğü Curie sıcaklığında (130 °C) kübik baryum titanat bir kenar boyunca uzayarak ferroelektrik özellik gösteren tetragonal faza dönüşmektedir. Baryum titanat 0 °C'de küpün bir yüzey köşegeni boyunca uzamasıyla ortorombik yapıya, -90 °C'de ise rombohedral yapıya dönüşüm görülmektedir. Dönüşüm sıcaklıkları yaklaşık değerler olmakla birlikte yapıyı oluşturan atomların tane boyutu, partikül büyüklüğü ve yapının kimyasal bileşimi gibi faktörlere göre değişmektedir (Ertug, 2008; Avrahami, 2003; Yüksel, 2003; Bell, 2008).



Şekil 1.2. BaO-TiO₂ faz diyagramı (Bell, 2008)

Perovskite yapıya sahip olan stronsiyum titanat (SrTiO₃) oda sıcaklığında kübik yapıya sahiptir. Stronsiyum atomu küpün orta noktasında yer alırken köşelerdeki her bir titanyum atomuna altı oksijen atomu bağlanmıştır. Stronsiyum titanat, değerlik ve elektron bantlarının birbirinden oldukça uzak olduğu geniş bant boşluğuna sahip bir yarı iletkenidir. Aynı zamanda yüksek dielektrik sabiti, yüksek yük depolama kapasitesi, iyi yalıtıcı özelliği, kimyasal ve termal kararlılığı, yüksek dielektrik bozulma gücü gibi özelliklere sahip olan ferroelektrik ve perovskite bir malzemedir. Bu özellikleri kimyasal olarak yapılan iyileştirmelerle (kimyasal yer değiştirmeyele elektron katılması, oksijen boşluğu üretme vb.) fiziksel özellikleri önemli ölçüde değiştirilebilir (Ünal, 1999; Kibar, 2007).

Seramik malzemelerin sentezinde kullanılan temel yöntemler:

1. Katı hal sentez yöntemi: Başlangıç malzemeleri ((Ba/Sr)CO₃, TiO₂, Mn₂O₃..vb.) stokiometrik oranlarda hesaplanan miktarlarda hassas terazi de tartılır ve karıştırmanın homojen bir şekilde yapılabilmesi için ortam olarak aseton,

metanol, etanol gibi kimyasallar kullanılır. Homojenizasyon işlemi tamamlandıktan sonra bulamaç saat camına alınır ve etüvde (100-110 °C) de kurutulur. Homojenize edilmiş ve kurutulmuş karışım 4-24 saat süre ile 800-1200 °C aralığında kalsinasyon işlemine tabi tutulur. Daha sonra örnekler pelet haline getirilir ve 1000-1400 °C sıcaklık aralığında sinterleme işlemi gerçekleştirilir (Gijp, 1998).

2. Yaş kimyasal yöntem: Hazırlık solüsyonundan başlayarak bir ara madde oluşturulur. Aradaki kimyasal bileşim, bir sonraki işlem aşamasında kimyasal bileşimi değişmeyeceği şekilde kimyasal veya fiziksel olarak immobilize edilir. Kalsinasyon işlemi gerçekleştirildikten sonra toz malzeme elde edilmiş olur. Çeşitli yaş-kimyasal teknikler, reaksiyon ara maddesinin oluşum mekanizması bakımından farklılık göstermektedir. Kimyasal immobilizasyon yöntemleri kompleksleştirme veya jelleştirme yöntemleri olarak alt bölümlere ayrılabilirken; fiziksel immobilizasyon yöntemleri çökelme ve dağılma yöntemlerine ayrılabilir. Kompleksleşme ve çökelmenin kombinasyonu da mümkündür (Gijp, 1998).
3. Kompleksleştirme yöntemleri: Kompleksleştirme reaksiyonları polimer ağının oluşumuna dayanır. Çeşitli metal iyonları çözündürülür ve kompleks ajanlar ilave edilir. Daha sonra çözeltideki metal iyonlarını katı bir ürüne dönüştürmek için piroliz, çöktürme veya dağıtım işlemi kullanılır (Gijp, 1998).
4. Sol-Jel yöntemi: Başlangıç malzemesi olarak inorganik metal tuzları ve metal alkoksitler gibi metal organik bileşikler kullanılır. Bu bileşiklerin stokiyometrik olarak hesaplanan miktarları karıştırılarak sol elde edilir, bu sol 80 °C sıcaklıkta 1 saat ısıtılır. Isıtma işleminden sonra elde edilen süspansiyon süzülür ve saf suyla yıkanır. Yıkama işleminden sonra 100 °C'de 12 saat kurutulur. Kurutulan örnekler homojenizasyon için öğütülür ve iki aşamalı ısıtma işlemiyle kalsinasyon (≤ 900 °C) ve sinterleme (≥ 1200 °C) işlem basamakları gerçekleştirilir (Gijp, 1998).
5. Çöktürme yöntemleri: Çöktürme metotları sadece birkaç element içeren tozların sentezi için kullanılır. Çok elementli toz sentezlemek gerekiyorsa, çeşitli metal iyonlarının çözünürlük farkına bağlı olarak istenen stokiyometriyi elde etmek güçtür. Çöktürme yöntemleri yaygın olarak, çözeltide küçük parçacıkların

oluşumuna neden olur. Bununla birlikte, bu küçük parçacıklar çökelme işlemi sırasında yada filtrasyon, yıkama, kurutma ve kalsinasyon gibi diğer işlem aşamaları sırasında sert agregatlar oluşturabilir (Gijp, 1998).

Elektronik devre tasarımında yüksek performansa sahip ve çok fonksiyonlu (Ba/Sr)TiO₃ bazlı teknik seramiklerin üretimi ve karakterizasyonu konusunda özellikle yurtdışı kaynaklı birçok çalışma bulunmaktadır:

- PTC/NTC (Positive/negative Temperature Coefficient) termistörler (Verma ve ark., 2012; Kim ve ark., 2002; Leng ve ark., 2011; Gao ve ark., 2017),
- Piezoelektrik (Avrahami ve ark., 2003; Huan ve ark., 2014),
- Ayarlanabilir kondansatörler (Guigues ve ark., 2007),
- Nanoboyutta ve oldukça yüksek kapasitans değerlerine sahip süper kondansatörler (Raj ve ark., 2007),
- RF cihazlarında kullanılan kondansatörler (Tiggelman ve ark., 2009; Suzuki ve ark., 2005),
- Bellekler (RAM, DRAM, FeRAM) (Ren ve ark., 2002; Chung ve ark., 2001; Rho ve ark., 2010; Chen ve ark., 1999),
- Mobil iletişim uygulamalarında kullanılanlar (Klee ve ark., 2008; Klee ve ark., 2009),
- Varaktörler, Memristörler (Nath ve ark., 2005; Zhang ve ark., 2004; Victor ve ark., 2006),
- Mikroelektronik kondansatörler (Rathee ve ark., 2010; Chan ve ark., 2010; Fardin ve ark., 2007; Ouagague ve ark., 2010),
- Enerji depolama uygulamaları için kondansatörler (Chao ve ark., 2011)

gibi günümüz teknolojisinde önemli olan ve birçok uygulama alanı bulabilen çalışmalar yapılmıştır.

Yaptığımız çalışmada farklı yapıda ve farklı özellikte yüksek katma değerli ferroelektrik seramiklerin (BaTiO₃, SrTiO₃, BaSrTiO₃, BaMn_xTi_{1-x}O₃ vb.) ultrasonik homojenizasyon cihazı ile katı hal sentez yöntemi kullanılarak sentezlenmiştir. Sentezlenen seramik malzemelerin yapısal ve fiziksel özellikleri karakterize edildikten sonra iyon katkılama işlemi gerçekleştirilmiştir. Bu amaçla Mn (% 0,5-60 mol), K (% 0,5-60 mol), In (% 0,5-50 mol), Rb (% 0,5-50 mol) ve Pr (% 0,5-50 mol) iyonlarının farklı mol oranları sentezlenen her bir seramik yapıya katkılanmış ve yapıda meydana

gelen fiziksel ve yapısal deęişiklikler incelenmiştir. Seçimi yapılan elementler aynı grup içerisinde farklı kütle, iyonik yarıçap gibi deęişen özelliklere sahip elementlerdir. Bu elementlerin özelliklerinin deęişimi iyonik yarıçap, oluşan kristal örgü sistemi, yapıların fermi enerji aralığının deęişmesi (valans elektronlarının konumu ve enerjisine göre) gibi birçok faktörden etkilenir (Gijp, 1998; Li ve ark., 2012; Ganguly ve ark., 2013; Kambale ve ark., 2014).

Üretilen titanat tozlarının nanoboyutta homojen bir şekilde üretilmesi; malzemenin özellikle ferroelektrik ve dielektrik özelliklerini deęiştirecektir. Bu özelliklerin farklılaştırılması ile elde edilebilecek ürünlerle; özellikle elektrik/elektronik alanında çok daha uzun ömürlü çeşitli yeni teknolojik kondansatörlerin yapılabilmesi mümkün olabilecektir.

2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR

Langhammer ve ark. (1996) yapmış oldukları çalışmada; $BaTi_{1-x}Mn_xO_3$ seramiklerin ($0 \leq x \leq 0,05$) pozitron ömrü, termal uzama, kristal yapı ve mikroyapısı üzerine Mn etkisini incelemişlerdir. Kristal yapının % 1,5-1,8 mol Mn katkısında tetragonal/kübik yapıdan hekzagonal yapıya dönüştüğünü; % 1,8 mol Mn katkısında ise mikroyapıda sert değişimler meydana geldiğini öne sürmüşlerdir. Katkılanan mangan miktarı % 1,8 mol'un üzerinde iken termal yayılma katsayısındaki ayrıklığın ortadan kalktığı görülmüştür. Katkılanan mangan miktarına göre hekzagonal fazın kararlılığındaki değişimin sebeplerini belirlemişlerdir.

Varatharajan ve ark. (2000), Ce ve Nb katkılanmış baryum stronsiyum titanat kristallerini yüksek sıcaklık çözelti tekniği kullanarak üretmişler ve elde ettikleri seramikleri karakterize etmişlerdir. Sentezlenen seramik yapılarda iyi kalitede kristal büyüklüğü elde etmeye çalışmışlardır. Tabaka halinde üretilen yapılar Ce katkılanması için; spiral yapılı örnekler ise Nb katkılanması için incelenmiştir. Ce katkılanmış kristallerin tetragonal yapıda olduğu ve latis parametrelerinin farklılık gösterdiği tespit edilmiştir. Ce katkılanması ile Curie sıcaklığı ve dielektrik sabitinin arttığı; Nb katkılanması ile ise Curie sıcaklığı azalırken dielektrik sabitinin arttığı belirtilmiştir. Polarizasyonun ise Ce ve Nb katkılanmalarının her ikisi içinde artış gösterdiği bulunmuştur.

Langhammer ve ark. (2000) $Ba_{0,98}Sr_{0,02}Ti_{1-x}Mn_xO_3$ ($0 \leq x \leq 0,02$) seramiklerinin termal yayılımı, kristal yapısı ve mikroyapısı üzerine stronsiyumun etkisini araştırmışlardır. Stronsiyum olmayan örneklerde tetragonal ve hekzagonal yapı fazları arasındaki geçiş mangan konsantrasyonunda ki artışa göre değişiklik göstermiştir. 1400 °C'de %2 molden daha yüksek oranlarda katkılanan mangan bileşenlerinin tanecik gelişimini engellediğini ortaya koymuşlardır. Stronsiyumun safsızlığı ile tetragonal fazın kararlılığını goldschmidt tolerans faktöründen yararlanarak tartışmışlardır.

Varatharajan ve ark. (2001), Nb katkılanmış baryum stronsiyum titanat kristallerini katı hal sentez metodu kullanarak sentezlemişlerdir. İyi kalitede büyük boyutlu tek kristal elde etmek için koşulları optimize etmişlerdir. Yüzey morfoloji görünüşünün tabakalar halinde olduğunu tespit etmişlerdir. Yapmış oldukları ferroelektrik çalışmalar sonucunda Curie sıcaklığında bir azalış gözlemlemişlerdir.

Brzozowski ve ark. (2002) yaptıkları çalışmada BaTiO_3 mikroyapısı üzerine Nb_2O_5 katkılanmasının etkisini incelemişlerdir. XRD diyagramlarından katkı konsantrasyonunda ki artışla tetragonal parametrelerindeki azalışı, EDAX ve SEM analizleriyle Nb katkılanmış baryum titanatta ki fazların bileşimini ve morfolojisini belirlemişlerdir. Yapıya % 0,15 molden daha fazla Nb_2O_5 katkılanmasıyla iyi tanecikli seramik yapıların elde edildiğini tespit etmişlerdir.

Zhang ve ark. (2003), baryum titanat nanokristali hidrotermal yöntemi kullanarak düşük sıcaklık ve atmosferik basınç altında sentezlemişlerdir. Üretilen baryum titanatın latis titreşimi, faz yapısı, mikroyapısı ve lüminesans spektrası X ışını kırınımı ve Raman spektroskopisi cihazları yardımıyla tespit edilmiştir. (200) difraksiyon pikinde 28-48 nm tanecik boyutlu yapıları tespit etmişlerdir. Hazırlanan nanokristal baryum titanat için optimum sentez sıcaklığını 80 °C olarak belirlemişler; oda sıcaklığında ise mükemmel bir latis yapısı ve güçlü PL gösterdiğini belirtmişlerdir.

Hu ve ark. (2004) düşük sıcaklıkta nano yapılı stronsiyum titanat seramiğini; kalın film oksijen gaz sensörlerini yüksek enerjili bilyalı öğütme tekniği ve kalın filmli serigrafi tekniğini kullanarak sentezlemişlerdir. Yaklaşık 20 nm boyutundaki stronsiyum titanat tozlarını ticari stronsiyum titanattan ve sentezlenmiş stronsiyum titanattan üretmişlerdir. Malzemenin mikro-yapısal özelliklerini X-ışını kırınım (XRD) cihazını kullanarak; sensör oksijen algılama özelliklerini ise gaz algılama ölçümleri ile karakterize etmişlerdir. Deneysel sonuçlara göre 400 °C de tavlanarak sentezlenmiş SrTiO_3 sensörlerinin algılama özelliği ticari SrTiO_3 sensörlerine göre daha iyi olduğu ifade etmişlerdir. Özellikle, yaklaşık 40 °C'lik optimum çalışma sıcaklığında elde edilen metal oksit yarı iletken gaz sensörleri için en düşük çalışma sıcaklığını 40 °C olarak tespit etmişlerdir.

Qi ve ark. (2005) oda sıcaklığında ve ortam basıncında perovskite baryum stronsiyum titanat nanoparçacıkların büyük ölçekli sentezi için ıslak kimyasal sentez tekniğini kullanmışlardır. Bu işlem esnasında basit işlem adımları kullanmakla birlikte başlangıç malzemeleri olarak titanyum alkoksit ve alkali toprak hidroksitlerini tercih etmişlerdir. Partiküllerin tanecik boyutunu ve kristallliğini işlem parametrelerini değiştirerek kontrol altına almışlardır. X-ışını kırınımı, taramalı elektron mikroskopisi ve iletim elektron mikroskopisi TEM kullanarak parçacıkların iyi kristalleştığını, kimyasal olarak stokiyometrik oranda olduklarını ve çaplarının <50 nm olduğunu tespit

etmişlerdir. Nanoparçacıklar, 1150 °C de sinterlendiklerinde tipik ferroelektrik histerezis döngüler gösterdiğini belirtmişlerdir.

Tkach ve ark. (2005) yaptıkları çalışmada Sr/Ti oranı 0,997-1,02 olan stronsiyum titanat seramiklerini katı hal sentez reaksiyonunu kullanarak sentezlemişlerdir. Sentezlenen stronsiyum titanat seramiklerinin yapısal özellikleri ve mikroyapısal değişimleri X ışını difraksiyonu (XRD) ve elektron mikroskobu (SEM) cihazları kullanılarak incelenmiştir. Radyo frekans aralığındaki dielektrik özellikleri sıcaklık ve frekansın fonksiyonu olarak ölçülmüştür. Dielektrik sabiti stoksiyometrik stronsiyum titanat seramikleri için düşük değere sahip iken, $Sr_{1,01}TiO_{3,01}$ bileşiğindeki kaybın çok düşük olduğunu gözlemlemişlerdir.

Jung ve ark. (2005), tetragonal baryum titanatın glikotermal sentezi ve karakterizasyonu üzerinde çalışmışlardır. Tetragonal baryum titanat partiküllerini glikotermal sentez işlemiyle düşük sıcaklıkta sentezlemişlerdir. $Ba(OH)_2 \cdot 8H_2O$ ve amorf titanyum hidroksit jeli başlangıç maddesi olarak; 1,4-butanediol ve suyu çözücü olarak kullanmışlardır. Baryum titanat tozlarını; XRD, DSC, Raman cihazlarında yapmış oldukları analizler sonucunda karakterize etmişlerdir. Bu yöntem ile dar boyut dağılımına ve düşük agregasyona sahip; Ba/Ti atomik oranı $1,000 \pm 0,003$ olan baryum titanat nanoparçacıklarının üretilebileceğini ifade etmişlerdir.

Khollam ve ark. (2005) yaptıkları çalışmada $Ba_{1-x}SrTiO_3$ tozlarını okzalattla çöktürme yöntemi kullanarak sentezlemişler ve karakterize etmişlerdir. İlk olarak oda sıcaklığında amonyum titanil okzalat çözeltisiyle baryum hidroksit+stronsiyum nitrat çözeltisi arasındaki katyon değiştirme reaksiyonunu incelemişlerdir. Baryum stronsiyum titanat peletlerinin 1300 °C / 4 saatte sinterlenmesiyle elde edilen seramiklerin yoğunluğu ~%95; dielektrik sabiti $\epsilon(T_c) \sim 9500$, $\tan \delta \sim 0,15$ ve $T_c \sim 32$ °C olduğunu belirtmişlerdir.

Tkach ve ark. (2006) solvotermal metodunu kullanarak Li katkılı $BaTiO_3$ seramiğini sentezlemişlerdir. $BaTiO_3$ 'ün piezoelektrik özelliği ve sinterlenebilirliği Li iyonlarıyla katkılanma sonucunda geliştiğini belirtmişlerdir. Li katkılanmış $BaTiO_3$ seramiğini sinterlemişler ve yüksek piezoelektrik sabitine sahip seramik malzeme elde etmişlerdir. Sentezlenen bütün seramiklerin Curie sıcaklığı 130 °C civarında iken Li katkılanmasına bağlı olarak bu sıcaklık değerinde değişme olmadığını tespit etmişlerdir.

Lim ve ark. (2006) $\text{Ba}(\text{Mg}_{2/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ seramiklerinin dielektrik özellikleri ve sinterleme sıcaklığı üzerine B_2O_3 ve CuO katkılamanın etkisini incelemişlerdir. B_2O_3 katkılanmış $\text{Ba}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ seramiklerinin $930\text{ }^\circ\text{C}$ 'nin altında sinterlenemediğini; CuO katkıldığında ise $850\text{ }^\circ\text{C}$ 'de sinterlendiğini gözlemlemişlerdir. Bulk yoğunluğunun, dielektrik sabitinin, Q değerinin CuO 'in ilavesiyle arttığını tespit etmişlerdir. Mükemmel mikrodalga dielektrik özelliklerini $\text{Ba}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3 + \% 2,0$ mol $\text{B}_2\text{O}_3 + \% 10,0$ mol CuO seramikleri için $875\text{ }^\circ\text{C}$ sinterleme sıcaklığı, $Q_{xf}=21500$ GHz, $\epsilon_r=31$, rezonans frekansının sıcaklık sabitini ise $21,3\text{ ppm}/^\circ\text{C}$ değerinde elde etmişlerdir.

Hou ve ark. (2006) yaptıkları çalışmada tek kristal baryum stronsiyum titanatı solvothermal sentez yöntemiyle sentezlemişlerdir. Başlangıç materyali olarak kullandıkları $\text{TiCl}_4\text{-BaCl}_2$ kimyasalını su-etanol-etilen glikol monometil eter çözücüsü ile karıştırmışlardır. Elde ettikleri ürünleri XRD, TEM ve XRF cihazlarını kullanarak karakterize etmişlerdir.

Xinle ve ark. (2006) nanoparçacıklı $\text{BaTiO}_3 : \text{La}^{3+}$ tozlarını butil ftalat, baryum asetat ve lantanyum oksit başlangıç malzemeleri ile sol-gel işlemini kullanarak sentezlemişlerdir. Elde ettikleri toz örnekleri TG-DTA, XRD ve SEM cihazlarıyla analiz etmişlerdir. Sonuçlara göre tavlama sıcaklığının artışıyla tozların tanecik büyüklüklerinde artış; katkılama miktarının artışıyla ise tanecik büyüklüklerinde azalış olduğunu belirlemişlerdir. Tavlama sıcaklığı $900\text{ }^\circ\text{C}$ ve katkılanan maddenin konsantrasyonu $\% 7$ olduğunda tanecik boyutu $43,34\text{ nm}$ olan ve kübik kristal yapıya sahip $\text{BaTiO}_3:\text{La}^{3+}$ tozunu elde etmişlerdir.

Singh ve ark. (2007) yaptıkları çalışmada ferroelektrik baryum stronsiyum titanat $\text{Ba}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{TiO}_3$ (BST40) nanotüpleri nano kanallı gözenekli anodik alüminyum oksit (AAO) kalıplardan yararlanarak sol-gel metodu ile üretmişlerdir. XRD çalışmaları ile BST40 nanotüplerinin saf fazda perovskite yapısını doğrulamışlar; TEM analizleriyle ise nanoparçacıkların $4\text{-}8\text{ nm}$ boyutunda olduğunu ve duvar kalınlığının yaklaşık 12 nm olduğunu tespit etmişlerdir. Y-bağlantı noktaları ve çoklu dallanmaları bazı BST40 nanotüplerinde gözlemlemişlerdir.

Fang ve ark. (2008), mikrodalga yöntemini ($2,45\text{ GHz}$) kullanarak nanoparçacıklı baryum titanat tozlarını sentezlemişlerdir. Baryum titanil okzalit kullanılarak farklı ısıtma oranlarında ($10\text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ 'dan $20\text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ 'a kadar) $600\text{ }^\circ\text{C}$ ile $750\text{ }^\circ\text{C}$ arasındaki

sıcaklıklarda sentez gerçekleştirmişlerdir. X-ray kırınım desenleri incelendiğinde 680 °C de bozulmuş ürünün saf kübik baryum titanat yapısına sahip olduğu; baryum titanat tozunun BET spesifik yüzey alanının $14,2 \pm 0,5 \text{ m}^2/\text{g}$ ve ortalama tanecik boyutunun 70 nm olduğu görülmektedir. Bu tanecik büyüklüğünü taramalı elektron mikroskopundan aldıkları sonuçlarla desteklemişlerdir. Bu çalışma ile mikrodalga işleminin baryum titanil okzalatin parçalanmasını hızlandırdığını ve sonuçta nanoparçacıklı baryum titanat tozu elde edildiğini belirtmişlerdir.

Wang ve ark. (2009), CaSiO_3 seramiklerinin dielektrik özellikleri ve mikroyapısı üzerine B_2O_3 katkılanmasının etkisi üzerinde çalışmışlardır. B_2O_3 katkılı CaSiO_3 tozunu klasik katı hal sentez metodunu kullanarak hazırlamışlardır. B_2O_3 (ağ. %6) katkılanmasıyla, CaSiO_3 kristal fazın sinterlenme sıcaklığının düştüğü ve iyi dielektrik özelliklere sahip olduğunu tespit etmişlerdir.

Butee ve ark. (2010) yaptıkları çalışmada BiNbO_4 seramiklerinin RF ve mikrodalga dielektrik özellikleri üzerine La iyonunun katkılanmasının etkisini incelemişlerdir. 960 °C de sinterlenmiş % 0,5 V_2O_5 katkılı BiNbO_4 ve $(\text{Bi}_{0,95}\text{La}_{0,05})\text{NbO}_4$ ($\text{Ln}=\text{Dy}^{3+}, \text{Gd}^{3+}, \text{Nd}^{3+}, \text{La}^{3+}$) seramik örnekleri üzerinde çalışmışlardır. Mikrodalga dielektrik sabiti (ϵ_r) ve kalite faktörünün La iyonunun katkılanması arttıkça arttığını tespit etmişlerdir. Dielektrik ölçümlerini RF frekansında sinterlenen örnekler üzerinde yapmışlardır.

Zhang ve ark. (2012) yaptıkları çalışmada baryum titanat nanopartiküllerini; baryum hidroksit oktahidrat, titanyum dioksit ve ötektik tuzları kullanarak erimiş tuz metoduyla sentezlemişlerdir. Hazırlanan örnekleri X-ışını kırınımı, FT-IR, UV-vis ve alan emisyon taramalı elektron mikroskobu (FESEM) kullanarak karakterize etmişlerdir. Sonuçlara göre baryum titanatın 600°C gibi düşük bir sıcaklıkta oluşabileceğini, sıcaklık arttıkça baryum titanatın kristalliğinin arttığını vurgulamışlardır. SEM görüntülerine bakıldığında baryum titanat nanopartiküllerinin yüksek sıcaklıkta (800 °C) da başarılı bir şekilde elde edildiğini, elde edilen seramiğin hekzagonal örgü yapısına sahip olduğunu ve ortalama tanecik büyüklüğünün yaklaşık olarak 50 nm olduğunu belirtmişlerdir. Baryum titanat nanopartiküllerini 900 °C de sinterlemişlerdir. Baryum titanatın oluşumu açısından amorf TiO_2 ile kristal TiO_2 karşılaştırdıklarında özellikle istenmeyen fazlardaki azalma göz önüne alındığında amorf TiO_2 daha uygun olduğunu belirtmişlerdir.

Wang ve ark. (2012) mangan katkılanmış baryum stronsiyum titanat cam seramiklerindeki faz büyümesi, mikroyapısal gelişim ve dielektrik özellikleri üzerinde çalışmışlardır. Ana kristal faz olarak $(\text{Ba,Sr})\text{TiO}_3$ (BST) ile örnekleri bulk kristalizasyon işlemini kullanarak hazırlamışlardır. Sonuçlara göre; oda sıcaklığında ölçülen dielektrik sabiti ve dielektrik kaybı MnO_2 konsantrasyonunun artışıyla maksimum değere doğru ilerlemiştir. MnO_2 konsantrasyonuna bağlı olarak değişen dielektrik özellikleri empedans analizi kullanılarak araştırılmıştır. Empedans spektroskopisi sonuçları; dielektrik özelliklerdeki değişimle taneciklerin aktivasyon enerjisinin ve tanecik sınırının doğru orantılı olarak değiştiğini göstermiştir.

Nath ve ark. (2012) yaptıkları çalışmada bizmut katkılanmış baryum titanat seramiklerin piezoelektrik özelliklerini incelemişlerdir. XRD sonuçlarından yola çıkarak tek faz perovskite yapısı elde etmişler, konsantrasyon artışıyla gözlenen pik yükselmesini $\text{Bi}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ fazına göre belirlemişlerdir. Piezoelektrik yük sabiti, elektromekanik eşleşme katsayısı, gerinim ve artık polarizasyon değerlerinin iyi olduğunu belirtmişlerdir. Tüm bu bulgulardan yola çıkarak; bizmut katkılanmış BaTiO_3 seramik sistemlerinin çevre dostu seramik uygulamaları için gelecek vaad ettiğini vurgulamışlardır.

Lee ve ark. (2013); kübik kristal yapıya sahip nano boyutlu baryum titanat seramiğini kullanarak CV'nin fotokatalitik temelli bozulma mekanizmaları ve etkinliği üzerinde çalışmışlardır. Baryum titanatın sentezi için başlangıç malzemesi olarak titanyum alkoksit yerine maliyetinin düşük oluşu, kararlı olması ve toksik olmaması gibi özelliklere sahip olması açısından P25-TiO_2 tercih etmişlerdir. Baryum titanatı; P25-TiO_2 ve $\text{Ba(OH)}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ başlangıç malzemelerini kullanarak farklı alkali koşullar altında (farklı NaOH konsantrasyonları, reaksiyon süreleri ve reaksiyon sıcaklıkları) otoklav hidrotermal metot kullanarak sentezlemişlerdir. Sentezledikleri malzemenin karakterizasyonunu SEM-EDS, XRD, HR-XPS, FT-IR, DR-Uv ve BET cihazlarını kullanarak gerçekleştirmişlerdir. Nanokübik baryum titanatın bant aralığının yaklaşık olarak 2,93-3,05 eV olduğunu; daha düşük bant aralığının fotokatalitik aktivite üzerinde pozitif etkiye sahip olduğunu belirtmişlerdir. Parçalanma ara maddelerini, foto bozundurma mekanizmasını belirlemek için reaksiyon süresince ara ürün konsantrasyon oranındaki değişimlere göre HPLC-PDA-ESI/MS kullanarak ayırmışlardır.

Kambale ve ark. (2014) baryum titanatı baryum karbonat ve titanyum dioksit kullanarak katı hal sentez yöntemiyle 1150 °C'de sentezlemişlerdir. Sentezlenen baryum titanat tozu saf tetragonal fazda olup tanecik boyutunun 0,7µm olduğu XRD analiziyle belirlenmiştir. Sentezlenen baryum titanat 1200, 1250 ve 1300 °C'lerde 2,4 ve 6 saat olmak üzere üç farklı sürede sinterlenmiştir. Sinterleme sıcaklığındaki artışla birlikte ortalama tanecik büyüklüğü 0,4µm'den 1,1µm'ye artmıştır. Sıcaklığa bağlı olarak tane büyüme katsayısına bakıldığında 1200, 1250 ve 1300 °C'lerde sırasıyla tane büyüme katsayısının 9,77; 4,61 ve 3,08 olduğu belirtilmiştir. Tane büyüme katsayısına bağlı olarak hesaplanan aktivasyon enerjisi değerleri ise 1307±65, 567±30 ve 439±20 kJ/mol'dür.

Paunovic ve ark. (2014) yaptıkları çalışmada Dy/Mn katkılı baryum titanatı sentezlemişlerdir. % 0,1 - %5 aralığında Dy, % 0,05 ise Mn katkılayarak elde edilen örneklerin mikroyapısal özellikleri ve dielektrik karakterleri incelenmiştir. Katı hal sentez yöntemi kullanarak sentezlenen örnekler 1290 °C ve 1350 °C'de 2 saat hava atmosferinde sinterlenmiştir. Düşük miktarlarda Dy katkılanarak elde edilen örnekler homojenize ve tek düze bir mikroyapıya sahip olmakla birlikte yapıdaki taneciklerin ortalama büyüklüğü 0,3µm ile 3,0µm arasında değişmektedir. Yüksek miktarda Dy katkılanmış baryum titanat örnekleri 1350 °C'de sinterlendikten sonra ikincil, anormal, ince tanecik matriksi ve çekirdek-kabuk yapıya sahip olmuşlardır. Sentezlenen örneklerin dielektrik ölçümleri yapılmış; Curie-Weiss kullanılarak Curie sabiti, Curie sıcaklığı ve kritik üs değerleri hesaplanmıştır. Kritik eksponent değerleri yüksek katkılı baryum titanat örneklerindeki faz dönüşüm dağılımını göstermiştir.

Bradha ve ark. (2015) sol-gel metodu kullanarak $\text{La}_{0,8}\text{A}_{0,2}\text{TiO}_{3,5-\delta}$ (A=Ba, Sr, Ca) nano perovskiteleri sentezlemiş; termogravimetri/diferansiyel termal analiz (TGA/DTA), X-ışını kırınım (XRD) ve iletim elektron mikroskopisi (TEM) cihazlarını kullanarak karakterize etmişlerdir. XRD analizlerinden elde ettikleri sonuçlara göre; 800 °C de kalsine edilen $\text{La}_{0,8}\text{A}_{0,2}\text{TiO}_{3,5-\delta}$ (A=Ba, Sr, Ca) nano perovskitelerin ortorombik yapıda; tanecik boyutlarının ise yaklaşık olarak 20 nm olduğunu belirlemişlerdir. Sentezlenen nano perovskiteleri bir azo boyası olan kongo kırmızısının fotokatalitik ayrışması için test etmişlerdir. Oda sıcaklığında görünür ışık ile sulu çözeltide kongo kırmızısının fotokatalitik ayrışması için $\text{La}_{0,8}\text{A}_{0,2}\text{TiO}_{3,5-\delta}$ (A=Ba, Sr, Ca) nano perovskitelerin ardışık davranışlarını çeşitli zaman aralıklarında incelemişler,

nanoperovskitelerin indirgeme verimliliğini karşılaştırmışlardır. $\text{La}_{0,8}\text{A}_{0,2}\text{TiO}_{3,5-\delta}$ yapısında A yerine Ba, Sr, Ca iyonlarının konulmasıyla elde edilen nano perovskite yapılarda baryum ile elde edilen bileşiğin en yüksek boya indirgemesi gösterdiğini tespit etmişlerdir.

Molla ve ark. (2016) Nd_2O_3 katkılı $\text{SiO}_2\text{-K}_2\text{O-BaO-Bi}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2$ (SKBBT) cam sisteminde erime-söndürme tekniği kullanılarak ferroelektrik baryum bizmut titanat sentezi için öncü camların sentezi üzerinde çalışmışlardır. Kontrollü ısıtma işlemiyle bu öncü camlardan baryum bizmut titanat cam seramik nanobileşikler üretilmiştir. Bu bileşiklerin yapısal özelliklerini X-ışını kırınımı (XRD), elektron mikroskobu (TEM) ve FTIR yansıtma spektroskopisi kullanarak araştırmışlardır. Öncü camın kristalleşmesinin aktivasyon enerjisini, DSC verilerini kullanarak tahmin etmişler ve üç farklı model için 203e218 kJ/mol aralığında değiştiğini saptamışlardır. Isıtma işlemi süresindeki artışla emisyon şiddetinin arttığını belirlemişlerdir. Seramikleşme zamanındaki artışla dielektrik sabitinin de arttığını tespit etmişlerdir.

Attar ve ark. (2017) nano kristal baryum stronsiyum titanat, $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{TiO}_3$ (BST), tozlarını sol-gel metodundan yararlanarak sentezlemişlerdir. Baryum stronsiyum titanat tozlarına bizmut iyonunu katkılایarak yapının dielektrik özellikleri ve mikroyapısında meydana gelen değişiklikleri incelemişlerdir. İlk olarak baryum stronsiyum titanatı sentezlemişler, daha sonrasında bizmut katkısını gerçekleştirmişlerdir. Elde edilen örnekleri kuruttuktan sonra 850 °C de 2 saat kalsine etmişler ve TG-DTA, FTIR, XRD, FESEM ve LCR metre cihazlarıyla karakterizasyonunu gerçekleştirmişlerdir. Elde ettikleri sonuçları incelediklerinde baryum stronsiyum titanata bizmut katkısı artırıldığında kristal boyutunun ve örgü parametrelerinin değiştiğini tespit etmişlerdir. Bizmut katkısı %2 molden %4 mole çıkarıldığında yapıyı oluşturan ortalama tanecik büyüklüğünün 40nm'den 35 nm'ye düştüğünü tespit etmişlerdir. Tüm numuneler için dielektrik sabitinin kalsinasyon sıcaklıkları arttıkça arttığını Curie sıcaklığından sonra ise azaldığını tespit etmişlerdir. Bizmut katkılı baryum stronsiyum titanat seramiklerinin dielektrik sabiti ve dielektrik kaybının azami değerinin bizmut içeriğinin artışıyla azaldığını belirlemişlerdir.

3. MATERYAL ve YÖNTEM

3.1. Materyal

3.1.1. Kullanılan Kimyasal Maddeler

Katkılı/katkısız BaTiO_3 , SrTiO_3 ve Ba/SrTiO_3 seramik tozlarının üretimi için deneysel çalışmalar sırasında kullanılan kimyasal maddelerin adı, formülü, üretici firma ve katalog numaraları aşağıdaki Çizelge 3.1'de verildi.

Çizelge 3.1. Analizlerde kullanılan kimyasallar

Kimyasal adı	Üretici Firma	Katalog No
Baryum karbonat (BaCO_3)	Merck	101714
Stronsiyum karbonat (SrCO_3)	Aldrich	472018
Titanyum dioksit (TiO_2)	Merck	100808
Baryum titanat (BaTiO_3)	Alfa Aesar	88266
Mangan (III) oksit (Mn_2O_3)	Alfa Aesar	87791
Potasyum karbonat (K_2CO_3)	Merck	104928
İndiyum (III) oksit (In_2O_3)	Alfa Aesar	12544
Rubidyum karbonat (Rb_2CO_3)	Alfa Aesar	A12240
Praseodimiyum oksit (Pr_6O_{11})	Alfa Aesar	36276
Aseton	Merck	100014

3.1.2. Kullanılan Cihazlar

Katkılı/katkısız BaTiO_3 , SrTiO_3 ve Ba/SrTiO_3 seramik tozlarının üretimi için kullanılan cihazların adı, markası ve modeli Çizelge 3.2.'de verildi.

Çizelge 3.2. Analizlerde kullanılan cihazlar

Cihaz Adı	Marka	Model
X-Işını Difraksiyonu (XRD)	Rigaku	Smartlab
Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM)	Jeol	JSM-5500LV
Yüksek Çözünürlüklü Atomik Absorpsiyon Spektrometresi (HRCAAS)	Analytik Jena	ContrAA 700
Ultrasonik Homojenizatör	UP 200S	Hielscher
Alan Emisyon Taramalı Elektron Mikroskobu (FESEM)	Zeiss	GeminiSEM 500

3.2. Yöntem

3.2.1. Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu

Katı Hal Sentez Yöntemi: Baryum titanat (BaTiO_3), stronsiyum titanat (SrTiO_3) ve baryum stronsiyum titanat üretimi (Ba/SrTiO_3) katı hal sentez yöntemi kullanılarak gerçekleştirildi. Sentez için kullanılacak olan başlangıç malzemeleri (BaCO_3 , SrCO_3 ve TiO_2) stokiometrik oranlarda tartıldıktan sonra aseton varlığında ultrasonik karıştırma cihazı ile homojenize edildi. Homojenize edilen numunelerden aseton $110\text{ }^\circ\text{C}$ 'de uzaklaştırıldı. Elde edilen bulamaç literatürde sıklıkla kullanılan sıcaklıkta ($1100\text{ }^\circ\text{C}$) kalsine edildikten sonra XRD toz kırınım desenleri ve SEM görüntüleri alındı (Gijb, 1998).

3.2.1.1. Baryum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu

Homojenizasyon yönteminin belirlenmesi:

1. **Çalkalayıcı kullanılarak homojenizasyon işlemi:** 3,3990 g BaCO_3 ve 1,3757 g TiO_2 hassas terazide tartılarak (4,0 g BaTiO_3 elde etmek için) polipropilen kaba

konuldu. Homojen bir karışım elde etmek için kabın 1/3'ü bilye ile, 1/3'ü tartılan başlangıç malzemeleriyle ve 1/3'ü ise boş bırakıldı. Ortama aseton ilave edilerek 200 rpm'de 12 saat süre ile çalkalandı. Süre sonunda elde edilen bulamaç saat camına alınarak 110 °C'de etüvde kurutuldu. Kalıntı agat havanda öğütülerek 1100 °C'de 4 saat kalsine edildi. Numunelerin XRD toz desenleri alındı (Gijp, 1998).

2. Ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak homojenizasyon işlemi: 3,3990 g BaCO₃ ve 1,3757 g TiO₂ hassas terazide tartılarak (4,0 g BaTiO₃ elde etmek için) bir behere konuldu. Homojen bir karıştırma için aseton ilave edilerek 5 dk ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak homojenize edildi. Homojenizasyon işlemi tamamlandıktan sonra saat camına alınarak ve 110 °C'de kurutuldu. Elde edilen kalıntı agat havanda öğütülerek 1100 °C'de 4 saat kalsine edildi. Elde edilen numunelerin XRD toz desenleri alınarak her iki yöntemle elde edilen sonuçlar karşılaştırılarak en uygun homojenizasyon yöntemi belirlendi.

Kalsinasyon süresinin belirlenmesi: Ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak elde edilen BaCO₃/TiO₂ karışımı 2 saat 110 °C'de kurutulduktan sonra 1100 °C'de 4, 8, 12 ve 24 saat olmak üzere 4 farklı sürede kalsine edilerek XRD toz kırınım desenleri alındı. Tozların XRD desenleri incelenerek en uygun kalsinasyon süresi tespit edildi (Nath ve ark., 2010; Kambale ve ark., 2014; Langhammer ve ark., 2000).

Kalsinasyon sıcaklığının belirlenmesi: Ultrasonik homojenizasyon cihazı yardımıyla elde edilen BaCO₃/TiO₂ karışımı 2 saat 110 °C'de kurutulduktan sonra karışım 800, 900, 1000, 1100 ve 1200 °C'de 4 saat süre ile kalsine edildi. Her bir kalsinasyon işlemi sonucunda alınan numunelerin XRD desenlerinden elde edilen sonuçlar incelenerek en uygun kalsinasyon sıcaklığı belirlendi (Kozawa ve ark., 2009; Brzozowski ve ark., 2000; Jung ve ark., 2010).

Sinterleme süresinin belirlenmesi: Katı hal sentez yöntemi kullanılarak üretilen BaTiO₃ tozları, 1100 °C'de 4 saat kalsine edildikten sonra pelet haline getirildi. Hazırlanan peletler 1400 °C'de 1, 2, 3, 4, 8 ve 12 saat olmak üzere 6 farklı sürede sinterlendi. Sinterlenen peletlerin SEM görüntüleri alınarak en uygun sinterleme süresi belirlendi (Li ve ark., 2012; Ganguly ve ark., 2013; Langhammer ve ark., 2000).

Sinterleme sıcaklığının belirlenmesi: Ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak üretilen toz malzeme 1100 °C'de 4 saat kalsine edildi. Kalsine edilen BaTiO₃ tozları pelet haline getirildikten sonra 1300, 1400 ve 1500 °C'de 8 saat sinterlenerek her bir

sinterleme sonucunda numunelerin SEM görüntüleri alındı. Elde edilen sonuçlardan en uygun sinterleme sıcaklığı belirlendi (Ganguly ve ark., 2013; Stojanovic ve ark., 2013; Kumar ve ark., 2010).

3.2.1.2. Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu

Katı Hal Sentez Yöntemi: Katı hal sentez yöntemi için kullanılacak olan SrCO_3 ve TiO_2 stokiometrik oranda tartıldı. Tozların ultrasonik homojenizasyon cihazında iyi bir şekilde karıştırılabilmesi için ortama aseton ilave edildi. 5 dk ultrasonik homojenizasyon cihazında tutulduktan sonra ortamdaki aseton 110°C 'de 2 saat bekletilerek ortamdan uzaklaştırıldı. Kalıntı agat havanda öğütülerek kalsine edildi. Kalsinasyon işlemi sonrasında numunenin XRD toz kırınım deseni ve SEM görüntüsü alındı. Kalsine edildi toz malzeme pelet haline getirilerek sinterlendi, sinterlenen numunelerin XRD toz kırınım desenleri ve SEM görüntüleri alınarak karakterize edildi.

Ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak homojenizasyon işlemi: 4,0 g SrTiO_3 elde etmek için; 3,2180 g SrCO_3 ve 1.7408 g TiO_2 hassas terazide tartılarak bir behere konuldu. Üzerine aseton ilave edilerek ultrasonik homojenizasyon cihazı yardımıyla 5 dk homojenize edildi. Homojenizasyon işlemi tamamlandıktan sonra bulamaç saat camına alındı ve 110°C 'de 2 saat süre ile kurutuldu. Elde edilen kalıntı agat havanda öğütülerek 1100°C 'de 4 saat kalsine edildi. Numunenin XRD toz kırınım deseni ve SEM görüntüsü alındı.

Kalsinasyon süresinin belirlenmesi: Ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak elde edilen $\text{SrCO}_3/\text{TiO}_2$ toz karışımı 1100°C 'de 3 farklı sürede (2, 4 ve 8 saat) kalsinasyon işlemi gerçekleştirildi. Her bir kalsinasyon işlemi sonunda elde edilen numunelerin XRD toz kırınım desenlerine bakılarak en uygun kalsinasyon süresi belirlendi (Kao ve ark., 1996; Liu ve ark., 2010; Tkach ve ark., 2005).

Kalsinasyon sıcaklığının belirlenmesi: Ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak elde edilen $\text{SrCO}_3/\text{TiO}_2$ toz karışımı 800, 900, 1000 ve 1100°C olmak üzere 4 farklı sıcaklıkta 2 saat kalsine edildi. Numunelerin XRD toz desenleri alındı ve en uygun kalsinasyon sıcaklığı belirlendi (Marina ve ark., 2002; Liu ve ark., 2010; Wang ve ark., 2014).

Sinterleme süresinin ve sıcaklığının belirlenmesi: 1100 °C’de 2 saat kalsine edilerek elde edilen SrTiO₃ tozları kalsine edildikten sonra pelet haline getirildi. Hazırlanan peletler 1400; 1500 ve 1600 °C’de 12 saat süre ile sinterlenerek SEM görüntüleri alındı (Wang ve ark., 2014; Tkach ve ark., 2005; Marina ve ark., 2002).

3.2.1.3. Baryum / Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu

Katı Hal Sentez Yöntemi: Baryum titanat ve stronsiyum titanat üretiminde olduğu gibi katı hal sentez yöntemi kullanılarak farklı mol oranlarında (x: 0,2; 0,4; 0,6; 0,8) baryum/stronsiyum titanat (Ba_{1-x}Sr_xTiO₃) üretildi. Sentez için kullanılacak olan BaCO₃, SrCO₃, TiO₂ hassas terazide tartılarak aseton ile homojen bir karışım elde edildi. Homojenizasyon işlemi baryum titanat ve stronsiyum titanat sentezinde olduğu gibi ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak gerçekleştirildi. Homojenize edilen karışım saat camına alındı, 110 °C’de aseton uzaklaştırıldı ve agat havanda öğütüldükten sonra kalsine edildi. Kalsine edilen numunenin XRD toz kırınım deseni ve SEM görüntüsü alındı.

Homojenizasyon işlemi: Farklı mol oranlarında Ba_{1-x}Sr_xTiO₃ (x: 0,2; 0,4; 0,5; 0,6; 0,8) sentezi için 0,6769 g – 2,7076 g aralığında BaCO₃ ve 0,5064 g – 2,0256 g aralığında SrCO₃ hassas terazide tartıldı ve behere konuldu. Her bir behere aseton ilave edilerek ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak homojenizasyon işlemi gerçekleştirildi. Homojen hale getirilen karışımlar saat camına alınarak 110 °C’de kurutuldu. Kurutma işlemi sonrasında kalıntılar agat havanda öğütüldü. Ağırlıklı yapısı baryum olanlar baryum titanatın kalsinasyon sıcaklığında (1100 °C / 4 saat); ağırlıklı yapısı stronsiyum olanlar stronsiyum titanatın kalsinasyon sıcaklığında (1100 °C / 2 saat) kalsine edildi (Ioachimve ark., 2007).

Kalsinasyon süresinin belirlenmesi: Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO₃ homojenizasyonu ultrasonik homojenizasyon cihazı yardımıyla gerçekleştirildikten sonra 1100 °C’de 1, 2, 3 ve 4 saat olmak üzere 4 farklı sürede kalsine edildi. Numunelerin XRD toz kırınım desenleri alınarak en uygun kalsinasyon süresi belirlendi (Li ve ark., 2012;).

Kalsinasyon sıcaklığının belirlenmesi: Elde edilen Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO₃ toz malzeme 800, 1000, 1100 ve 1200 °C olmak üzere 4 farklı sıcaklıkta 2 saat kalsine edildi. Kalsinasyon

işlemi tamamlandıktan sonra her bir numunenin XRD toz kırınım deseni alınarak en uygun kalsinasyon sıcaklığı belirlendi (Wei ve ark., 2003; Li ve ark., 2012).

3.2.2. İyon Katkılı (Mn^{3+} , K^+ , In^{3+} , Rb^+ , Pr^+) Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu

3.2.2.1. Mangan Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu

Katı hal sentez yöntemi kullanılarak farklı mol oranlarında mangan (Mn) katkı baryum titanat ($BaMn_xTi_{1-x}O_3$), stronsiyum titanat ($SrMn_xTi_{1-x}O_3$), baryum stronsiyum titanat ($Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_xTi_{1-x}O_3$) üretildi. Mn^{3+} ($r = 72$ pm) iyonunun yarıçapı $BaTiO_3$ (Ba $r = 149$ pm), $SrTiO_3$ (Sr $r = 132$ pm), $Ba/SrTiO_3$ seramiklerindeki Ti^{3+} ($r = 81$ pm) iyonunun yarıçapına yakın olduğundan dolayı kristal yapıda titanyum iyonunun yerine geçeceği öngörüldü. Sentez için kullanılacak olan $BaCO_3$, $SrCO_3$, TiO_2 , Mn_2O_3 başlangıç malzemeleri hassas terazide tartıldı. Homojenizasyon işlemi için tartılan malzemelere aseton ilave edilerek ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak homojenize edildi. Homojenize edilen karışımlar saat camına alındı, 110 °C’de 2 saat süre ile aseton uzaklaştırıldı ve agat havanda öğütüldükten sonra kalsine edildi. Kalsine edilen numunelerin XRD toz kırınım desenleri ve SEM görüntüleri alındı.

Homojenizasyon işlemi: Farklı mol oranlarında; $BaMn_xTi_{1-x}O_3$ (x : 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,1; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) sentezi için 4,2306 g $BaCO_3$, 1,7036 g – 0,6850 g aralığında TiO_2 , 0,0085 g – 1,0154 g aralığında Mn_2O_3 ; $SrMn_xTi_{1-x}O_3$ (x : 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,1; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) sentezi için 3,2180 g $SrCO_3$, 1,7328 g – 0,6964 g aralığında TiO_2 , 0,0086 g – 1,0322 g aralığında Mn_2O_3 ; $Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_xTi_{1-x}O_3$ (x : 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,1; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) sentezi için 1,4209 g $BaCO_3$; 1,063 g $SrCO_3$; 1,1448 g – 0,4602 g aralığında TiO_2 ; 0,0057 g – 0,682 g aralığında Mn_2O_3 hassas terazide tartıldı ve behere konuldu. Her bir behere 20 ml aseton ilave edilerek ultrasonik homojenizasyon cihazıyla homojenizasyon işlemi gerçekleştirildi. Homojen

hale getirilen karışımlar saat camına alınarak 110 °C’de 2 saat süre ile kurutuldu. Kurutma işlemi sonrasında kalıntılar agat havanda öğütüldü.

Kalsinasyon işlemi: Baryum titanata ve baryum stronsiyum titanata mangan katkısıyla elde edilen karışımlar ($BaMn_xTi_{1-x}O_3$ ve $Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_xTi_{1-x}O_3$) yüksek sıcaklık fırınında 1100 °C’de 4 saat; stronsiyum titanata mangan katkısıyla elde edilen karışımlar ($SrMn_xTi_{1-x}O_3$) yüksek sıcaklık fırınında 1100 °C’de 2 saat kalsine edildi. Elde edilen numunelerin XRD toz kırınım desenleri ve SEM görüntüleri alındı.

3.2.2.2. Potasyum Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu

Farklı mol oranlarında potasyum (K) katkılı baryum titanat ($Ba_{1-x}K_xTiO_3$), stronsiyum titanat ($Sr_{1-x}K_xTiO_3$), baryum stronsiyum titanat ($Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}K_xTiO_3$) katı hal sentez yöntemi kullanılarak üretildi. K^+ ($r = 151$ pm) iyonunun yarıçapı $BaTiO_3$, $SrTiO_3$, $Ba/SrTiO_3$ seramiklerindeki Ba^{2+} ($r = 149$ pm) ve Sr^{2+} ($r = 132$ pm) iyonlarının yarıçapının yakın olduğundan dolayı K^+ iyonu kristal yapıda baryum ve stronsiyum iyonları ile yer değiştireceği öngörüldü. Sentez için kullanılacak olan başlangıç malzemeleri ($BaCO_3$, $SrCO_3$, TiO_2 , K_2CO_3) hassas terazide tartıldıktan sonra homojenizasyon işlemi için üzerlerine aseton ilave edilip ultrasonik homojenizasyon cihazı ile homojenize edildi. Elde edilen bulamaçlar saat camına alındı, 110 °C’de 2 saat süre ile aseton uzaklaştırıldı ve agat havanda öğütüldükten sonra kalsine edildi. Kalsine edilen numunelerin XRD toz kırınım desenleri ve SEM görüntüleri alındı.

Homojenizasyon işlemi: Katı hal sentez yöntemi için farklı mol oranlarında; $Ba_{1-x}K_xTiO_3$ (x : 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) sentezi için 4,210 g – 2,1156 g aralığında $BaCO_3$; 1,7128 g TiO_2 ; 0,0074 g – 0,7408 g aralığında K_2CO_3 ; $Sr_{1-x}K_xTiO_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) sentezi için 3,2019 g – 1,6089 g aralığında $SrCO_3$; 1,7408 g TiO_2 ; 0,0075 g – 0,7531 g aralığında K_2CO_3 ; $Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}K_xTiO_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) sentezi için 1,058 g – 0,5315 g aralığında $SrCO_3$; 1,4138 g – 0,7105 g aralığında $BaCO_3$; 1,1501 g TiO_2 ; 0,0049 g – 0,4976 g aralığında K_2CO_3 hassas terazide tartıldı ve behere konuldu. Tartılan başlangıç malzemelerine 20 ml aseton ilave edilerek

ultrasonik homojenizasyon cihazı yardımıyla homojenizasyon işlemi gerçekleştirildi. Homojen hale getirilen karışımlar saat camına alınarak 110 °C’de 2 saat süre ile kurutuldu ve elde edilen kalıntılar agat havanda öğütüldü.

Kalsinasyon işlemi: Potasyum katkılı baryum titanat ve baryum stronsiyum titanat ($Ba_{1-x}K_xTiO_3$ ve $Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}K_xTiO_3$) yüksek sıcaklık fırınında 1100 °C’de 4 saat; stronsiyum titanata potasyum katkısıyla elde edilen karışımlar ($Sr_{1-x}K_xTiO_3$) yüksek sıcaklık fırınında 1100 °C’de 2 saat kalsine edildi. Elde edilen numunelerin XRD toz kırınım desenleri ve SEM görüntüleri alındı.

3.2.2.3. İndiyum Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu

Farklı mol oranlarında indiyum (In) katkılı baryum titanat ($BaIn_xTi_{1-x}O_3$), stronsiyum titanat ($SrIn_xTi_{1-x}O_3$), baryum stronsiyum titanat ($Ba_{0,5}Sr_{0,5}In_xTi_{1-x}O_3$) seramikleri katı hal sentez yöntemi kullanılarak üretildi. In^{3+} ($r = 76$ pm) iyonunun yarıçapı $BaTiO_3$ (Ba^{2+} $r = 149$ pm), $SrTiO_3$ (Sr^{2+} $r = 132$ pm) ve $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ seramiklerindeki Ti^{3+} ($r = 81$ pm) iyonunun yarıçapına yakın olduğundan dolayı kristal yapıda titanyum iyonunun yerine geçeceği öngörüldü. Sentez için kullanılacak olan $BaCO_3$, $SrCO_3$, TiO_2 , In_2O_3 başlangıç malzemelerin hesaplanan miktarları hassas terazide tartılarak üzerine 20ml aseton ilave edildi. Hazırlanan örneklerin homojenizasyon işlemi ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak gerçekleştirildi. Homojenize edilen karışımlar saat camına alındı, 110 °C’de 2 saat süre ile aseton uzaklaştırıldı ve agat havanda öğütüldükten sonra kalsine edildi. Kalsine edilen numunelerin XRD toz kırınım desenleri ve SEM görüntüleri alındı.

Homojenizasyon işlemi: $BaIn_xTi_{1-x}O_3$ (x : 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) sentezi için 3,3845 g $BaCO_3$; 1,3634g – 0,6851 g aralığında TiO_2 ; 0,0119 g – 1,1904 g aralığında In_2O_3 ; $SrIn_xTi_{1-x}O_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) sentezi için 3,2180 g $SrCO_3$; 1,7327 g – 0,8707 g aralığında TiO_2 ; 0,01513 g – 1,5129 g aralığında In_2O_3 ; $Ba_{0,5}Sr_{0,5}In_xTi_{1-x}O_3$ (x : 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) sentezi için 3,7871 g $BaCO_3$; 2,8332 g $SrCO_3$; 1,5256g – 0,7666 g aralığında TiO_2 ; 0,0133 g – 1,3319 g aralığında In_2O_3 hassas

terazide tartılarak behere konuldu. Her bir behere aseton ilave edildi ve ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak homojenizasyon işlemi gerçekleştirildi. Elde edilen bulamaç saat camına alınarak 110 °C’de 2 saat süre ile aseton tamamen uzaklaştırılana kadar kurutuldu. Kurutma işlemi sonrasında kalıntılar agat havanda öğütüldü.

Kalsinasyon işlemi: Baryum titanata ve baryum/stronsiyum titanata indiyum katkısıyla elde edilen karışımlar ($BaIn_xTi_{1-x}O_3$ ve $Ba_{0,5}Sr_{0,5}In_xTi_{1-x}O_3$) yüksek sıcaklık fırınında 1100 °C’de 4 saat; stronsiyum titanata indiyum katkısıyla elde edilen karışımlar ($SrIn_xTi_{1-x}O_3$) yüksek sıcaklık fırınında 1100 °C’de 2 saat kalsine edildi. Elde edilen numunelerin XRD toz kırınım desenleri ve SEM görüntüleri alındı.

3.2.2.4. Rubidyum Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu

Baryum titanat, stronsiyum titanat ve baryum/stronsiyum titanat seramiklerine farklı mol oranlarında rubidyum (Rb) katkılanarak yeni seramik yapılar ($Ba_{1-x}Rb_xTiO_3$, $Sr_{1-x}Rb_xTiO_3$ $Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Rb_xTiO_3$) üretildi. Rb^+ ($r = 166$ pm) iyonunun yarıçapı $BaTiO_3$, $SrTiO_3$, $Ba/SrTiO_3$ seramiklerindeki Ba^{2+} ($r = 149$ pm), $SrTiO_3$ ve Sr^{2+} ($r = 132$ pm) iyonlarının yarıçapına yakın olduğundan dolayı Rb^+ iyonunun kristal yapıda baryum ve stronsiyum iyonları ile yer değiştireceği öngörüldü. Başlangıç malzemeleri ($BaCO_3$, $SrCO_3$, TiO_2 , K_2CO_3) hassas terazide tartıldıktan sonra üzerlerine 20 ml aseton ilave edilip ultrasonik homojenizasyon cihazı ile homojenize edildi. Homojenize edilen malzemeler saat camına alındı, 110 °C’de 2 saat süre ile aseton uzaklaştırıldı ve agat havanda öğütüldükten sonra kalsine edildi. Kalsine edilen numunelerin XRD toz kırınım desenleri ve SEM görüntüleri alındı.

Homojenizasyon işlemi: Katı hal sentez yöntemi kullanılarak farklı mol oranlarında; $Ba_{1-x}Rb_xTiO_3$ (x : 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) sentezi için 2,5331 g – 1,2729 g aralığında $BaCO_3$; 1,0303 g TiO_2 ; 0,0074 g – 0,7448 g aralığında Rb_2CO_3 ; $Sr_{1-x}Rb_xTiO_3$ (x : 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) sentezi için 2,4019 g – 1,2069 g aralığında $SrCO_3$; 1,3059 g TiO_2 ; 0,0094 g – 0,944 g aralığında Rb_2CO_3 ; $Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Rb_xTiO_3$ (x : 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) sentezi için 1,0575 g – 0,5314 g aralığında $SrCO_3$; 1,4135 g – 0,7103 g aralığında

BaCO₃; 1,1499 g TiO₂; 0,0083 g – 0,8313 g aralığında Rb₂CO₃ hassas terazide tartılarak behere konuldu. Tartılan başlangıç malzemelerine 20 ml aseton ilave edilerek ultrasonik homojenizasyon cihazı yardımıyla homojenizasyon işlemi gerçekleştirildi. Homojen hale getirilen karışımlar saat camına alınarak 110 °C’de 2 saat süre ile kurutuldu. Kurutma işlemi sonrasında kalıntılar agat havanda öğütüldü.

Kalsinasyon işlemi: Rubidyum katkılı baryum titanat ve baryum stronsiyum titanat (Ba_{1-x}Rb_xTiO₃ ve Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Rb_xTiO₃) yüksek sıcaklık fırınında 1100 °C’de 4 saat; stronsiyum titanata rubidyum katkısıyla elde edilen karışımlar (Sr_{1-x}Rb_xTiO₃) yüksek sıcaklık fırınında 1100 °C’de 2 saat kalsine edildi. Elde edilen numunelerin XRD toz kırınım desenleri ve SEM görüntüleri alındı.

3.2.2.5. Praseodimiyum Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu

Katı hal sentez yöntemi kullanılarak farklı mol oranlarında praseodimiyum katkılı baryum titanat (Ba_{1-x}Pr_xTiO₃), stronsiyum titanat (Sr_{1-x}Pr_xTiO₃) ve baryum/stronsiyum titanat (Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Pr_xTiO₃) seramikleri üretildi. Pr⁺ (r = 151 pm) iyonunun yarıçapı BaTiO₃, SrTiO₃, Ba/SrTiO₃ seramiklerindeki Ba²⁺ (r = 149 pm), ve Sr²⁺ (r = 132 pm) iyonlarının yarıçapına yakın olduğundan dolayı Pr⁺ iyonunun kristal yapıda baryum ve stronsiyum iyonları ile yer değiştireceği öngörüldü. Sentez için gerekli olan başlangıç malzemelerin (BaCO₃, SrCO₃, TiO₂, K₂CO₃) stokiyometrik olarak hesaplanan miktarları hassas terazide tartıldı, üzerlerine 20 ml aseton ilave edildi ve ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak homojenizasyon işlemi gerçekleştirildi. Homojen hale getirilen malzemeler saat camına alınarak 110 °C’de 2 saat süre ile aseton uzaklaştırılana kadar kurutuldu ve agat havanda öğütüldükten sonra kalsine edildi. Kalsine edilen numunelerin XRD toz kırınım desenleri ve SEM görüntüleri alındı.

Homojenizasyon işlemi: Katı hal sentez yöntemi kullanılarak Ba_{1-x}Pr_xTiO₃ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) sentezi için 2,5331 g – 1,2729 g aralığında BaCO₃; 1,0303 g TiO₂; 0,01098 g – 1,0980 g aralığında Pr₆O₁₁; Sr_{1-x}Pr_xTiO₃ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) sentezi için 2,4019 g – 1,2069 g aralığında SrCO₃; 1,3059 g TiO₂; 0,0,0139 g – 1,3917 g aralığında Pr₆O₁₁;

$Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Pr_xTiO_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) sentezi için 1,0575 g – 0,5314 g aralığında $SrCO_3$; 1,4135 g – 0,7103 g aralığında $BaCO_3$; 1,1499 g TiO_2 ; 0,0083 g – 0,8313 g aralığında Pr_6O_{11} hassas terazide tartılarak behere konuldu. Tartılan başlangıç malzemelerine 20 ml aseton ilave edilerek ultrasonik homojenizasyon cihazı yardımıyla homojenizasyon işlemi gerçekleştirildi. Homojen hale getirilen karışımlar saat camına alınarak 110 °C’de 2 saat süre ile kurutuldu. Kurutma işlemi sonrasında kalıntılar agat havanda öğütüldü.

Kalsinasyon işlemi: Praseodimiyum katkılı baryum titanat ve baryum stronsiyum titana ($Ba_{1-x}Pr_xTiO_3$ ve $Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Pr_xTiO_3$) yüksek sıcaklık fırınında 1100 °C’de 4 saat; stronsiyum titanata praseodimiyum katkısıyla elde edilen karışımlar ($Sr_{1-x}Pr_xTiO_3$) yüksek sıcaklık fırınında 1100 °C’de 2 saat kalsine edildi. Elde edilen numunelerin XRD toz kırınım desenleri ve SEM görüntüleri alındı.

3.2.3. Kimyasal Analizler

3.2.3.1. Sentezlenen $BaTiO_3$ Seramiğindeki Baryum Miktarının Belirlenmesi

0,213 g $BaTiO_3$ seramiği tartılarak üzerine 1 g amonyum klorür (NH_4Cl) ilave edildi. Elde edilen örnek agat havanda 15 dakika öğütüldükten sonra 50 ml’lik behere konuldu. Üzerine 10 ml derişik HCl ilave edilerek 150 °C’de 1-2 saat ısıtıldı. Isıtma işlemi tamamlandıktan sonra sıcaklık arttırılarak kuruluğa kadar buharlaştırıldı. Daha sonra tekrar üzerine 10 ml derişik HCl asit ilave edilerek 150 °C’de 1 saat ısıtıldı, ardından kuruluğa kadar asit buharlaştırıldı. Elde edilen örneğin üzerine 50 ml ultra saf su ilave edildiğinde hafif bulanık bir karışım elde edildi. Bu karışım mavi bant süzgeç kağıdı kullanılarak süzülerek son hacmi 500 ml olacak şekilde ultra saf su ile tamamlandı.

Hazırlanan çözeltinin içerdiği baryum miktarını tespit etmek için gravimetrik yöntem kullanıldı. Hazırlanan baryum titanat çözeltisinden 500 ml alınarak üzerine 2 g sodyum sülfat (Na_2SO_4) ilave edilerek kaynama sıcaklığına kadar ısıtıldı. Çözelti soğutulduktan sonra mavi bant süzgeç kağıdın da süzüldü. Süzme işlemi tamamlandıktan sonra süzgeç kağıdı dikkatlice katlanarak önceden sabit tartıma getirilmiş olan porselen krozeye yerleştirildi. Kroze kül fırınına konularak 900 °C’de

yakma işlemi gerçekleştirildi. Desikatör içerisinde soğutulan kroze tartılarak yapıda bulunan baryum miktarı hesaplandı.

3.2.3.2. Sentezlenen $\text{BaMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$, $\text{SrMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$, $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{Mn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ Seramiklerindeki Mangan Miktarının Belirlenmesi

$\text{BaMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40); $\text{SrMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60); $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{Mn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40) seramiklerinin her birinden yaklaşık olarak 0,2 g tartıldı. Her birinin üzerine 1 g amonyum klorür (NH_4Cl) ilave edilerek 15 dakika agat havanda tamamen homojen hale getirilene kadar öğütüldü. Öğütülen örneklerin üzerine 10 ml hidroklorik asit (HCl) ilave edildi. Asitli örnekler ısıtıcı tabla üzerinde $150\text{ }^\circ\text{C}$ 'de 1-2 saat ısıtıldı. Sıcaklık artırılarak kuruluğa kadar 10 ml HCl asit buharlaştırıldı. Kuruluğa kadar buharlaştırılan örneklerin üzerine 10 ml derişik HCl ilave edilerek $150\text{ }^\circ\text{C}$ 'de 1 saat daha ısıtıldı. Isıtma işlemi tamamlandıktan sonra sıcaklık artırılarak kuruluğa kadar tekrar buharlaştırıldı. Elde edilen örneğin üzerine 50 ml ultra saf su ilave edilerek mavi bant süzgeç kağıdı yardımıyla süzöldü. Süzölen örnekler ultra saf su kullanılarak son hacimleri 500 ml olacak şekilde tamamlandı. Hazırlanan örneklerde bulunan mangan miktarı atomik absorpsiyon spektrometresi ile belirlendi.

4. ARAŞTIRMA BULGULARI ve TARTIŞMA

4.1. Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu

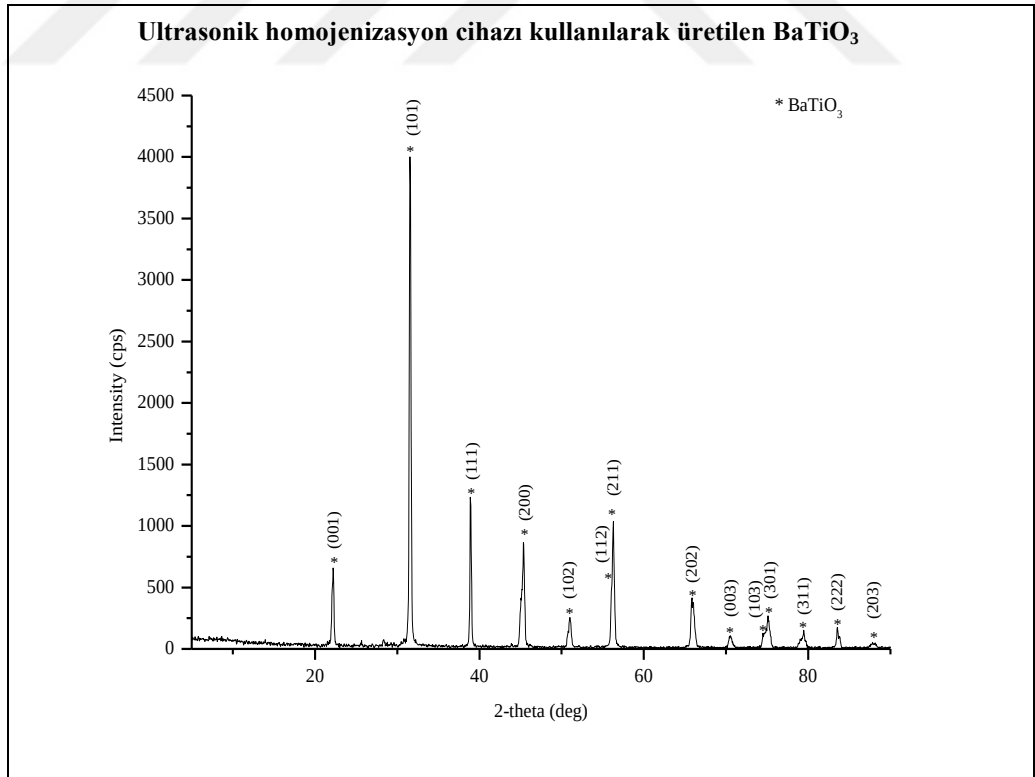
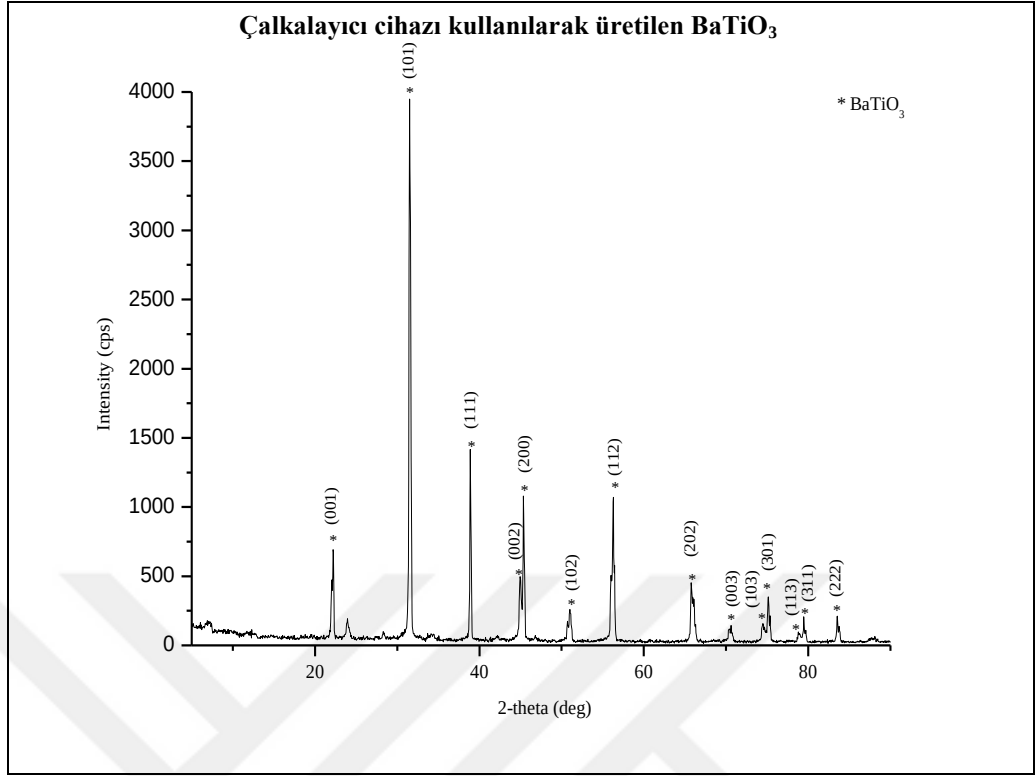
Bölüm 3.2.1’de verilen yönteme uygun olarak baryum titanat, stronsiyum titanat, baryum/stronsiyum titanat seramikleri sentezlenmiş ve karakterizasyon işlemleri gerçekleştirilmiştir. Elde edilen seramiklerin XRD toz kırınım desenleri ve SEM görüntüleri alınarak yapının kimyasal özellikleri incelenmiştir.

4.1.1. Baryum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Sentezi ve Karakterizasyonu

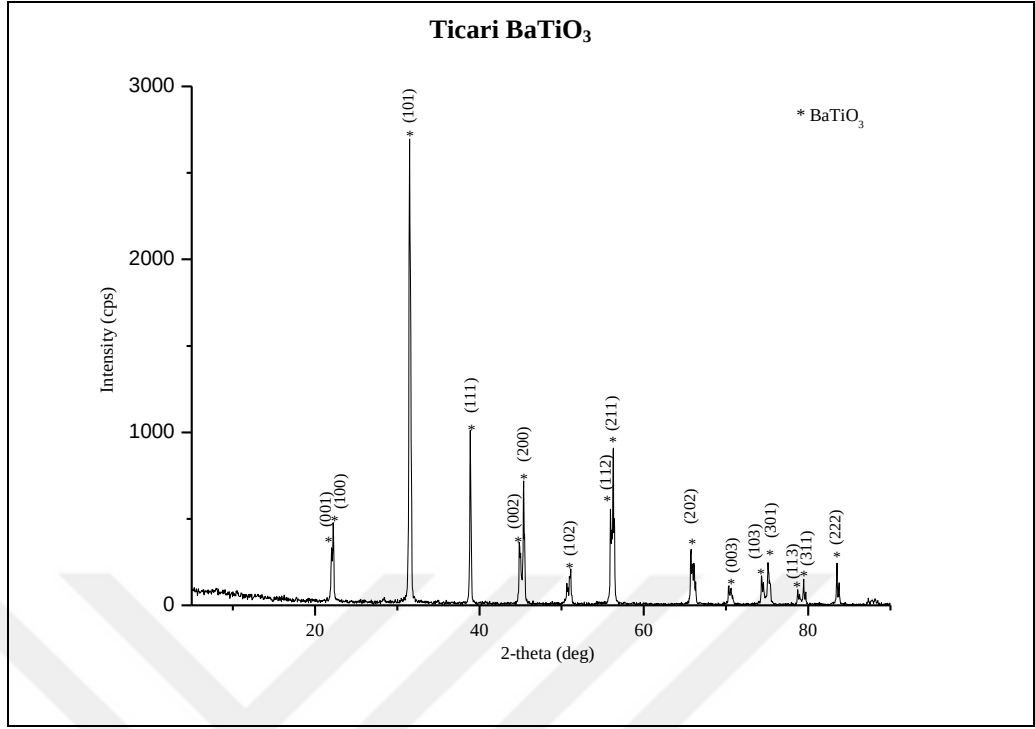
Ultrasonik homojenizasyon cihazı ve çalkalayıcı kullanılarak gerçekleştirilen homojenizasyon işleminde elde edilen sonuçların karşılaştırılması: Bölüm 3.2.1.2’de verilen yönteme uygun olarak sentezlenen seramik tozlarının XRD kırınım desenleri X-ışını difraksiyonu cihazı kullanılarak karakterize edilmiştir. Şekil 4.1’de çalkalayıcı ve ultrasonik homojenizasyon cihazıyla homojen hale getirilen BaTiO_3 ’ın XRD diyagramlarıyla ticari BaTiO_3 ’ın XRD diyagramı gösterilmektedir.

Literatürde yer alan çalışmalara bakıldığında P. Bomlai ve ark.; B. D. Stojanovic ve ark.; C. Jovalekic ve ark. 4 saatten 24 saate kadar farklı çalkalama sürelerinde homojenizasyon işlemini gerçekleştirmişlerdir. Literatür bilgilerine dayanarak başlangıç malzemeleri çalkalayıcıda 12 saat çalkalanarak homojenize hale getirilmiş ve BaTiO_3 seramikleri üretilmiştir. 5 dk ultra ses dalgalarına maruz bırakılan BaCO_3 ve TiO_2 , BaTiO_3 seramikleri üretimi için kullanılmıştır.

Her iki homojenizasyon yöntemiyle elde edilen XRD kırınım desenlerine bakıldığında bütün piklerin ticari BaTiO_3 ’ın pikleriyle örtüştüğü görülmektedir. Çalkalayıcıda 12 saat süre ile homojenizasyon işlemi gerçekleştirilerek üretilen BaTiO_3 seramiklerinin XRD kırınım desenleri ile ultrasonik homojenizasyon cihazıyla 5 dk süre ile homojenizasyon işlemi gerçekleştirilerek üretilen BaTiO_3 seramiklerinin XRD kırınım desenleri arasında sinyal/gürültü oranı ve piklerin bağıl şiddetleri açısından Şekil 4.1 incelendiğinde bariz fark olduğu görülmektedir.

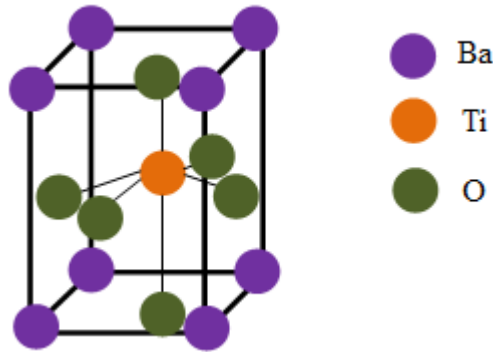


Şekil 4.1. Çalkalayıcı cihazı, ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak üretilen ve ticari olarak satılan BaTiO₃'ın XRD diyagramları



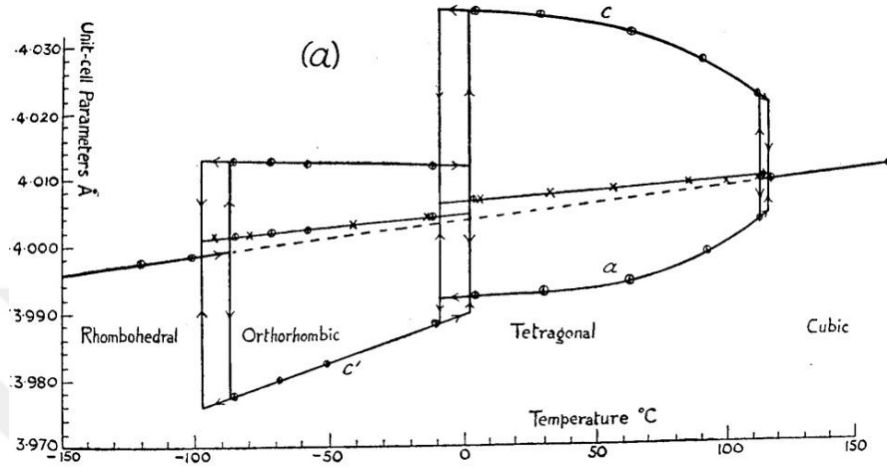
Şekil 4.1. (Devam) Çalkalayıcı cihazı, ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak üretilen ve ticari olarak satılan BaTiO₃'ın XRD diyagramları

Ultrasonik homojenizasyon cihazıyla elde edilen XRD kırınım desenleri çok net ve iyidir. XRD desenine bakıldığında diyagramdaki 23°, 30°, 40°, 45°, 52°, 56° pikleri ticari BaTiO₃ (Alfa Aesar, %99,9 metal basis, USA) pikleriyle birebir örtüşmektedir. Her iki diyagramda da en şiddetli pik (101) düzlemine ait yansıma olup açısız konumu 32° olup tetragonal BaTiO₃ pikine karşılık gelmektedir. Açısız konumu 45° olan (002) ve (200) düzlemlerine ait yansımalar ayrık pik yapısı göstermekte olup tetragonal BaTiO₃ fazının karakteristik açısız konumlarını belirtmektedir.



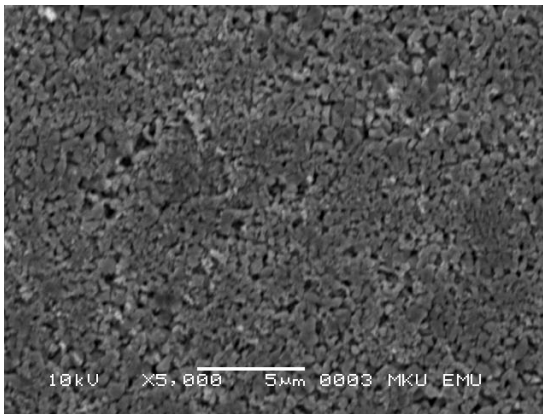
Şekil 4.2. Tetragonal baryum titanat yapısı

BaTiO₃'ün hegzagonal ve kübik yapıları paraelektrik iken tetragonal, ortorombik ve rombohedral yapıları ferroelektriktir. 1460 °C'nin üzerinde hegzagonal yapı kararlıyken 1460 °C'nin altına soğutma ile hegzagonal faz kübik faza dönüşmektedir (Şekil 4.3) (Ertuğ, 2008).

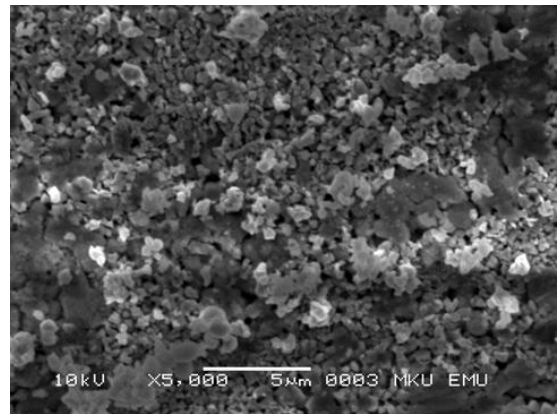


Şekil 4.3. Sıcaklığın fonksiyonu olarak baryum titanatın latis parametreleri

Her iki homojenizasyon tekniğiyle elde edilen kalsine edilmiş BaTiO₃ tozlarının SEM görüntüleri incelendiğinde ultrasonik homojenizasyon cihazıyla 1µm'den daha küçük, çok daha homojen bir yapının elde edildiği Şekil 4.4 incelendiğinde görülmektedir.



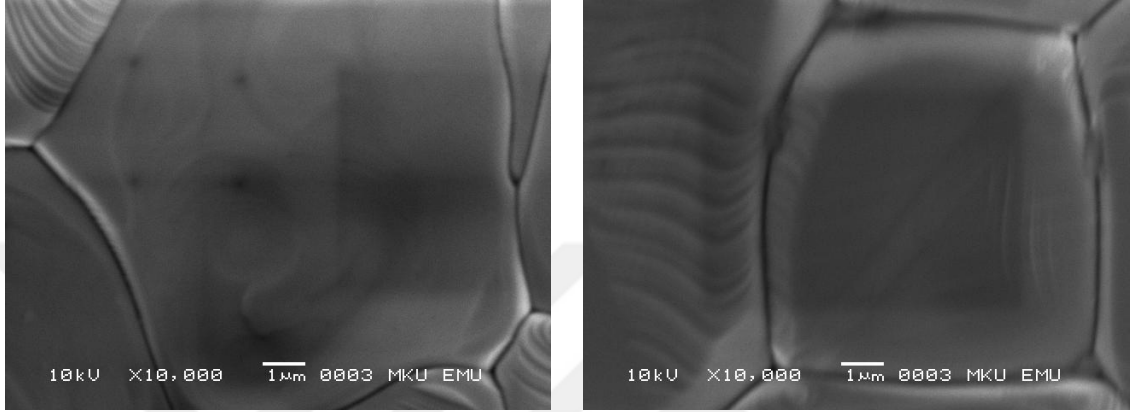
Ultrasonik homojenizasyon cihazı



Çalkalayıcı

Şekil 4.4. Kalsinasyon işlemi sonrası ultrasonik homojenizasyon cihazı ve çalkalayıcı kullanılarak elde edilen seramik yapılara ait SEM görüntüleri

Elde edilen BaTiO₃ tozları pelet haline getirildikten sonra 1400 °C’de 3 saat sinterlenmiştir. Sinterizasyon sonucu alınan SEM görüntüleri incelendiğinde ultrasound cihazıyla homojenize edilerek elde edilen yapının tanecik büyüklüğünün çalkalayıcı kullanılarak elde edilen yapıya göre daha büyük (ortalama 50µm) olduğu görülmüştür (Şekil 4.5).



Ultrasonik homojenizasyon cihazı

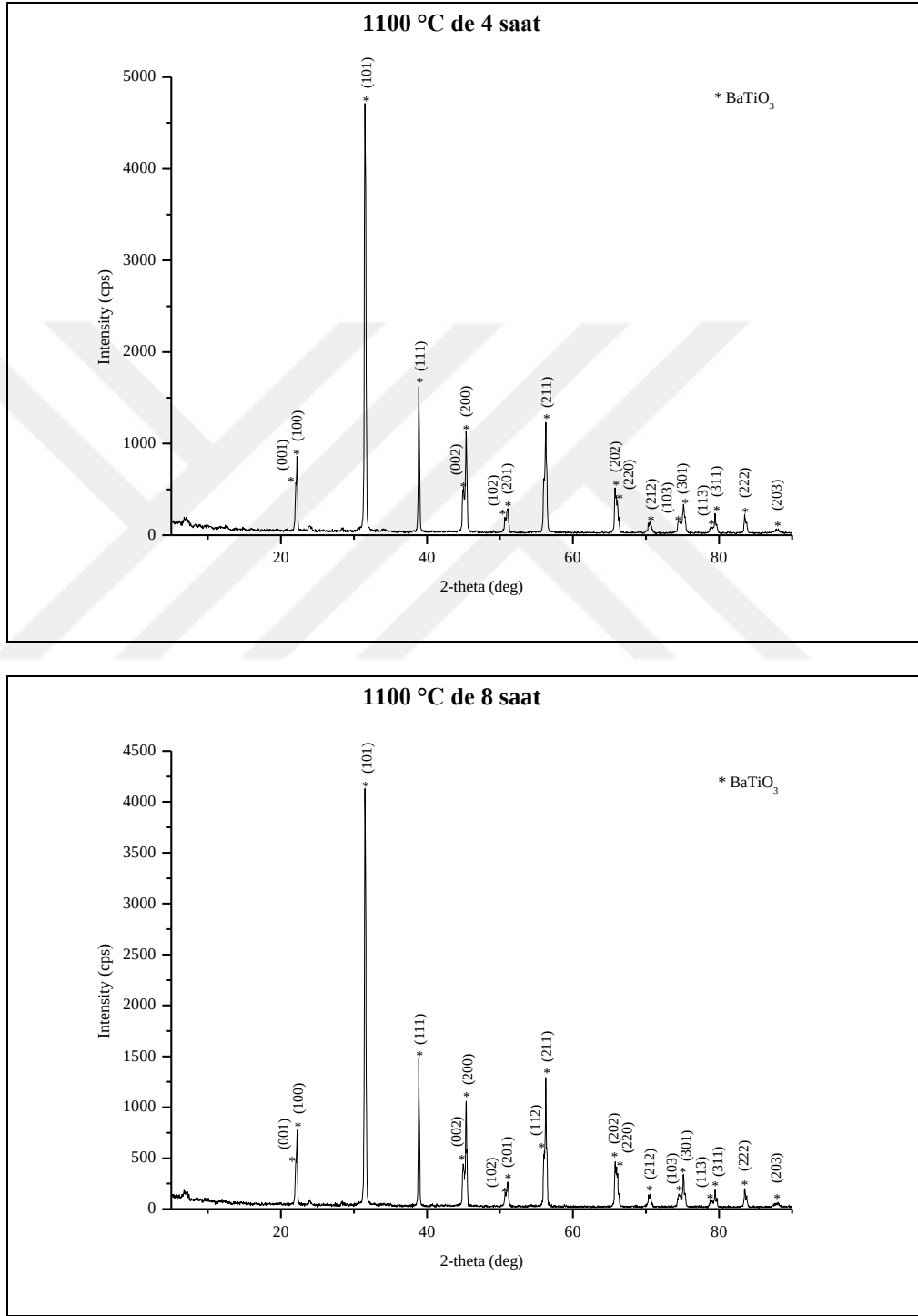
Çalkalayıcı

Şekil 4.5. Sinterleme işlemi sonrası ultrasonik homojenizasyon cihazı ve çalkalayıcı kullanılarak elde edilen seramik yapılara ait SEM görüntüleri

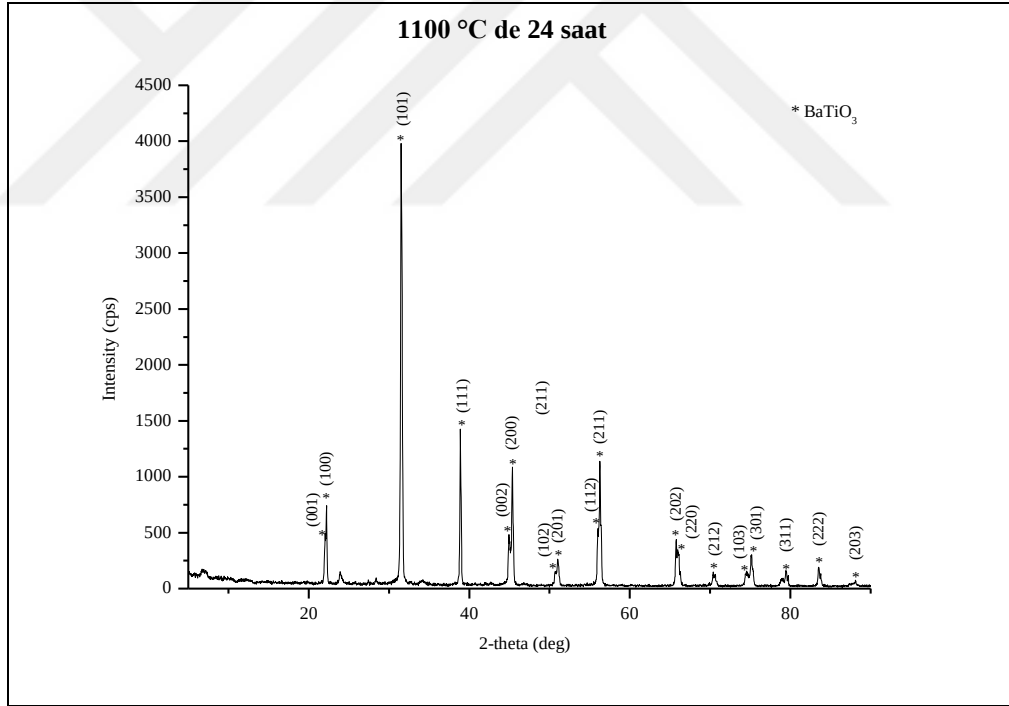
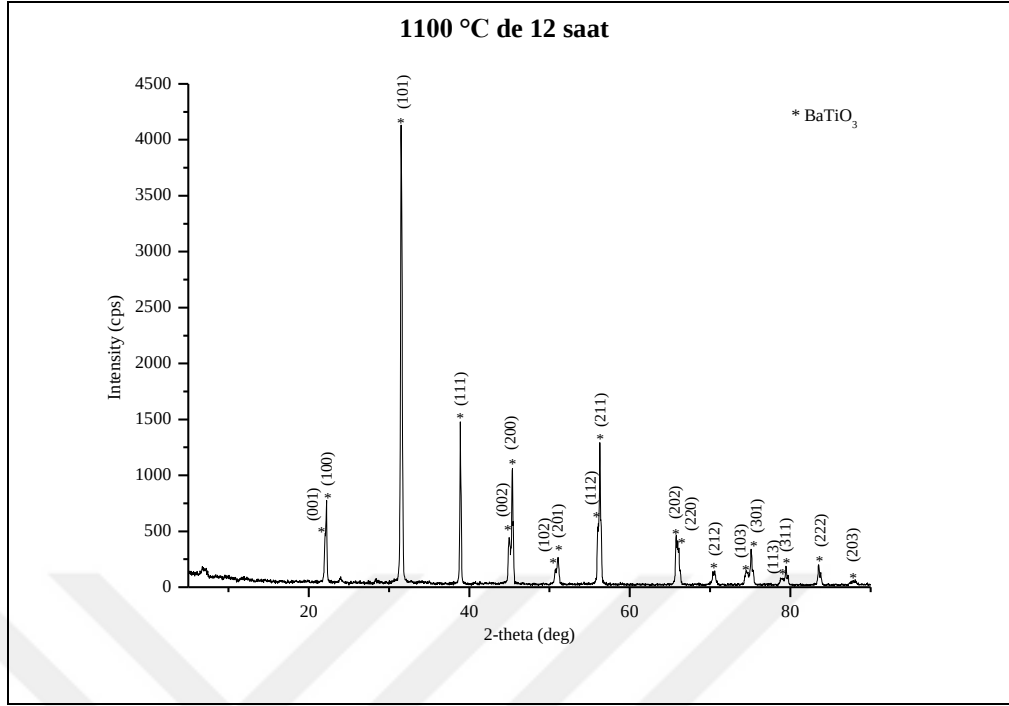
Ultrasonik homojenizasyon cihazıyla elde edilen kristal yapıda tanecikler yapı içinde daha homojen bir dağılım göstermekle birlikte tanecik büyüklükleri de hemen hemen aynıdır. Sinterleme işlemi gerçekleştirildikten sonra yapıdaki taneciklerin büyüklüğü artmış, tanecikler arası boşluklar azalmış, buna bağlı olarak tetragonal sistemin doluluk oranı da artmıştır.

XRD kırınım desenleri ve SEM görüntüleri incelendiğinde ultrasonik homojenizasyon cihazıyla daha küçük tanecikli yapılar oluştuğu (çalkalayıcı kullanılarak elde edilen taneciklerin ortalama büyüklüğü 76,6 nm; ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak elde edilen taneciklerin ortalama büyüklüğü 44,7 nm) buna bağlı olarak daha homojen seramik yüzeyler meydana geldiği, elde edilen XRD piklerinin daha net, sinyal/gürültü oranlarının yüksek olduğu görülmüştür. Bu avantajların yanı sıra 12 saat yerine 5 dakika içerisinde homojenizasyon işleminin ultrasonik homojenizasyon cihazıyla gerçekleştirilmiştir.

Kalsinasyon süresinin belirlenmesi: Bölüm 3.2.1.1’de verilen y nteme uygun olarak sentezlenen BaTiO₃ tozları 4 farklı s rede (4, 8, 12 ve 24 saat) kalsine edilmiřtir. Elde edilen  rneklerin XRD toz kırınım desenleri alınmıřtır (řekil 4.6).



řekil 4.6. 4-24 saat s reyle 1100 °C’de kalsine edilen BaTiO₃’ın XRD diyagramları



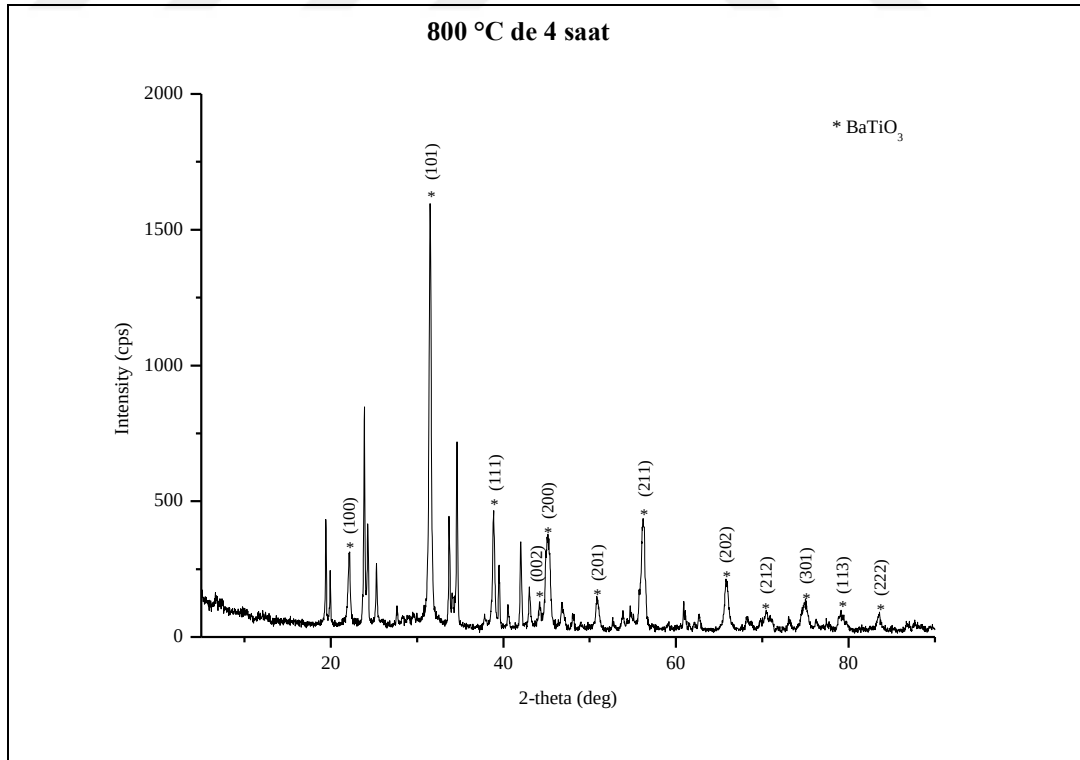
Şekil 4.6. (Devam) 4-24 saat süreyle 1100 °C'de kalsine edilen BaTiO₃'ın XRD diyagramları

BaTiO₃ tozlarının XRD kırınım desenleri incelendiğinde 4 saatten 24 saate kadar kalsinasyon işlemi uygulanana baryum titanat tozlarının 4-24 saat içerisindeki pik şiddetlerinde, sinyal/gürültü oranlarında bir farklılık olmadığı tespit edilmiştir. Bundan

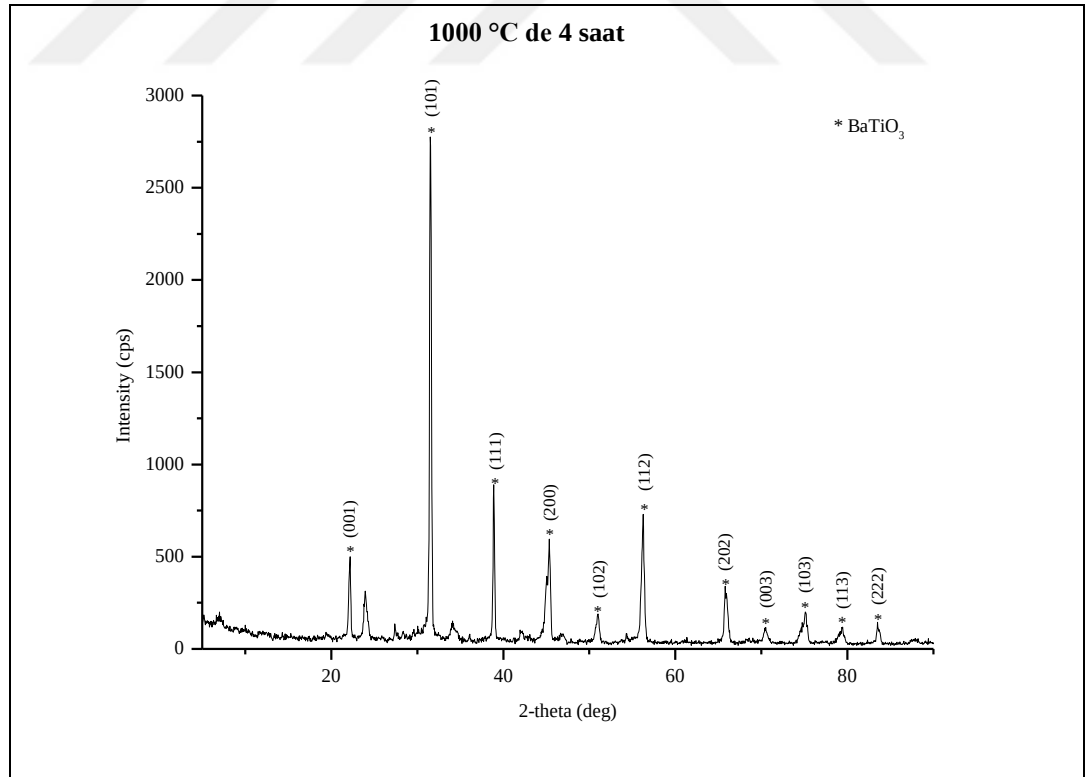
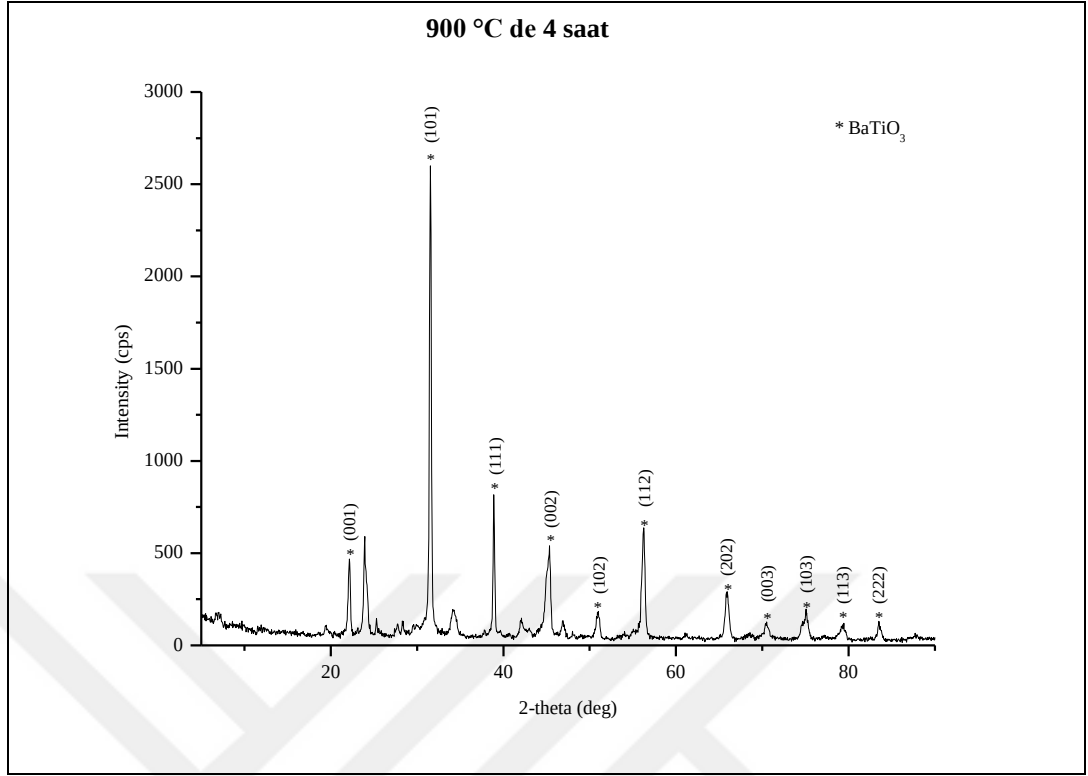
sonraki yapılacak çalışmalarda kalsinasyon süresinin 4 saat olarak belirlenmesi uygun görülmüştür.

Kalsinasyon sıcaklığının belirlenmesi: Katı hal sentez yöntemi kullanılarak Bölüm 3.2.1.1'deki gibi sentezlenen BaTiO_3 seramik tozları 800, 900, 1000, 1100, 1200 °C'de 4 saat kalsine edilmiştir. Kalsinasyon işlemi sonrasında elde edilen toz numunelerin XRD toz kırınım desenleri alınmıştır (Şekil 4.7).

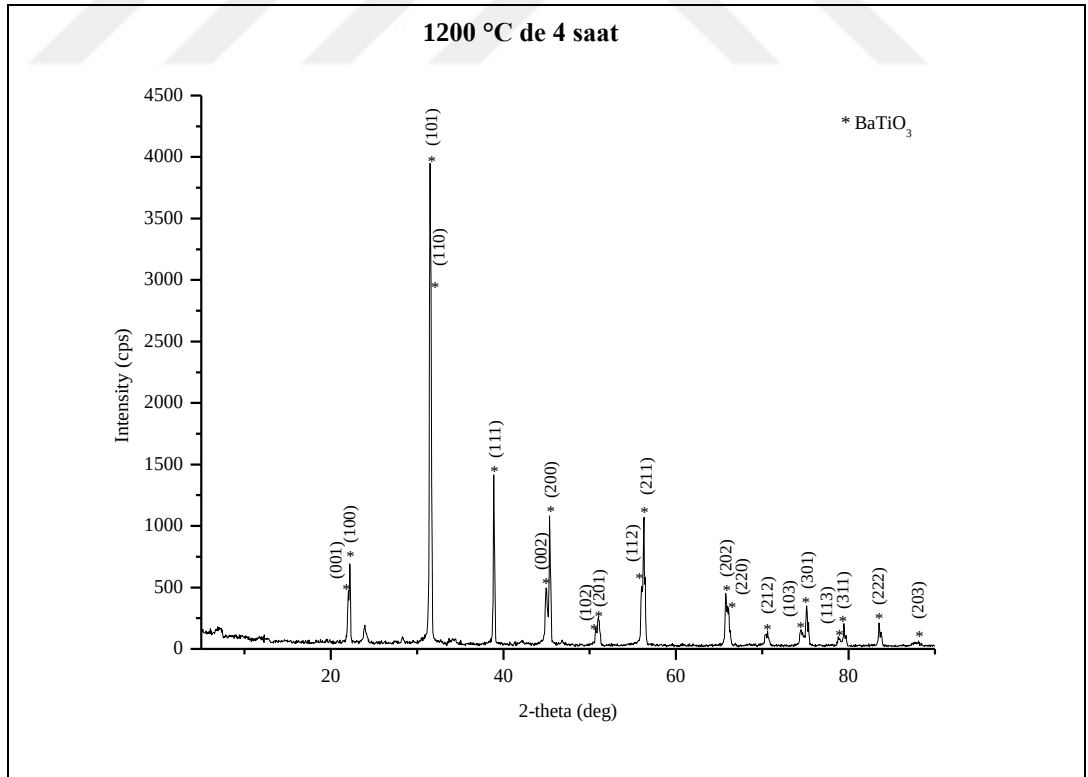
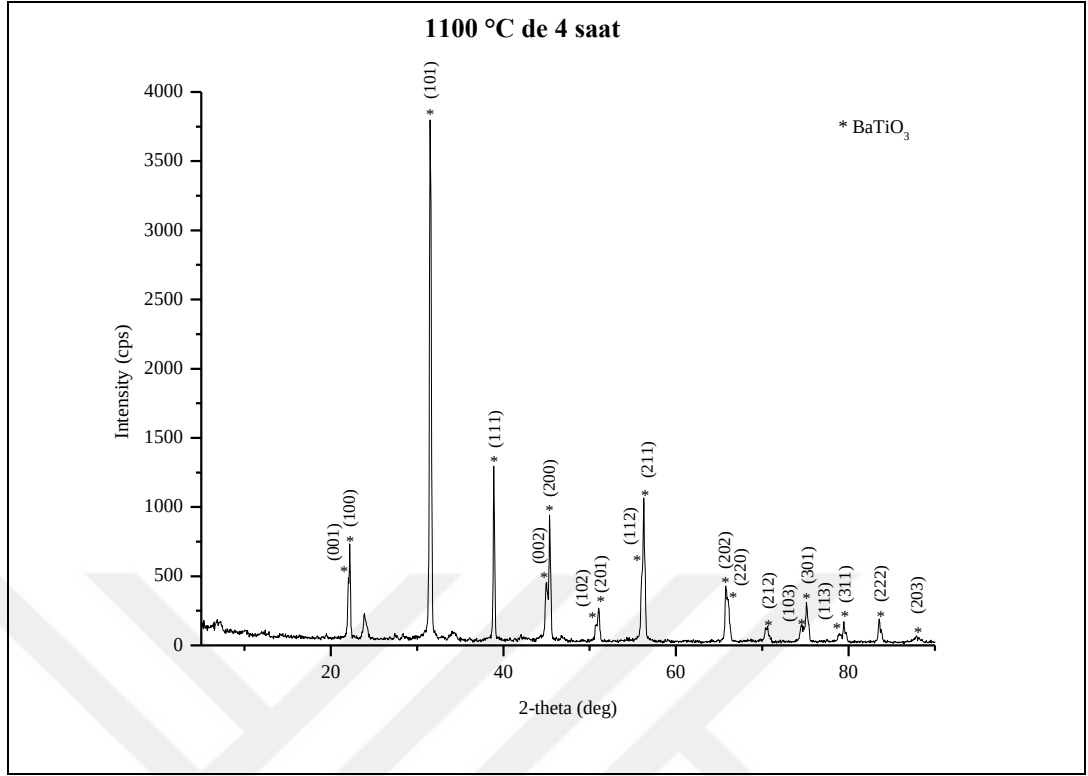
XRD diyagramlarına bakıldığında 800 °C'de gerçekleştirilen kalsinasyon işleminde yapının tam olarak elde edilemediği görülmektedir. BaTiO_3 'a ait piklerin yanı sıra BaTiO_3 'ün üretimi esnasında kullanılan BaCO_3 ve TiO_2 başlangıç malzemelerinin karakteristik piklerine de rastlanmıştır. Kalsinasyon sıcaklığının artırılmasıyla BaCO_3 ve TiO_2 'e ait piklerde azalma olduğu görülmüş ve 1100 °C ve üzerindeki sıcaklıklarda elde edilen XRD diyagramında BaTiO_3 'a ait bütün karakteristik pikler ((002), (200)..) görülmekle birlikte BaCO_3 ve TiO_2 'e ait pikler bulunmamaktadır. Aynı zamanda XRD diyagramındaki piklerin şiddeti, sinyal/gürültü oranı gibi parametrelere bakıldığında diğer kalsinasyon sıcaklıklarına göre daha iyi olduğu görülmektedir. Tüm bu nedenlerden dolayı BaTiO_3 'ün kalsinasyon sıcaklığı 1100 °C olarak seçilmiştir.



Şekil 4.7. 800 - 1200 °C'de 4 saat sürede kalsine edilen BaTiO_3 'ün XRD diyagramları

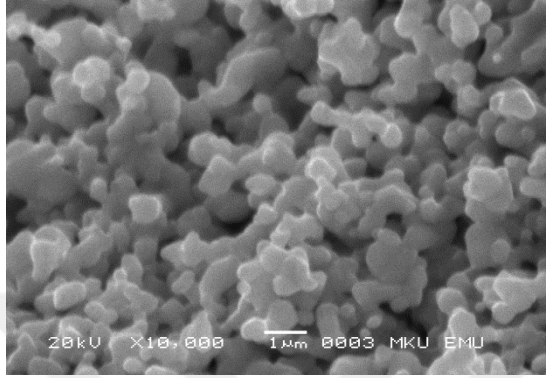


Şekil 4.7. (Devam) 800 - 1200 °C'de 4 saat sürede kalsine edilen BaTiO₃'ın XRD diyagramları

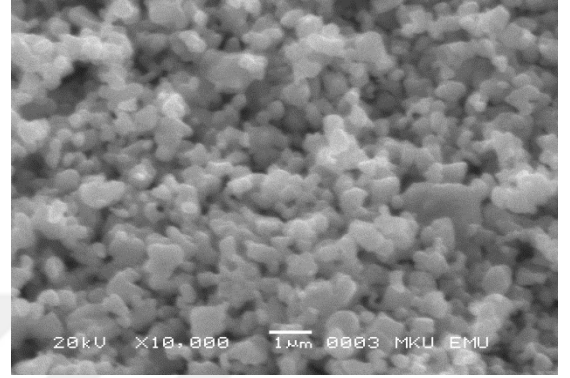


Şekil 4.7. (Devam) 800 - 1200 °C'de 4 saat sürede kalsine edilen BaTiO₃'ın XRD diyagramları

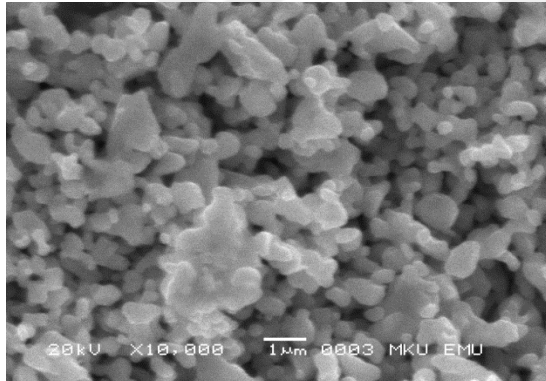
Sinterleme süresinin belirlenmesi: Katı hal sentez yöntemiyle sentezlenerek karakterize edilen BaTiO_3 tozları bölüm 3.2.1.1’de verilen y nteme g re 1400  C’de 6 farklı s rede (1, 2, 3, 4, 8 ve 11 saat) sinterlenmiřtir. Sinterlenen  rneklerin SEM g r nt leri řekil 4.8’de verilmiřtir.



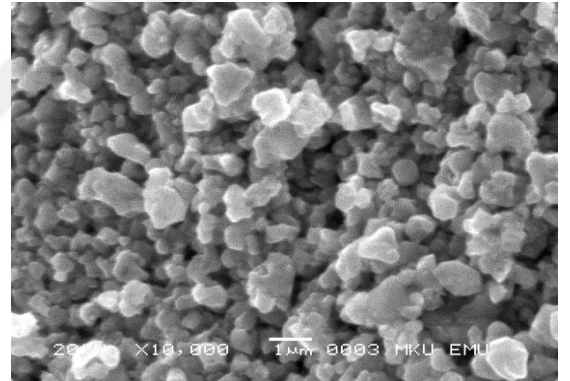
1400  C de 1 saat



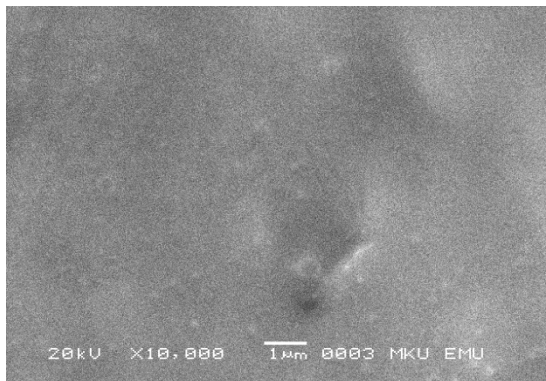
1400  C de 2 saat



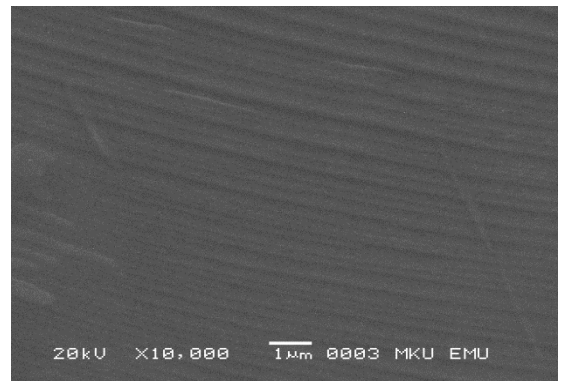
1400  C de 3 saat



1400  C de 4 saat



1400  C de 8 saat

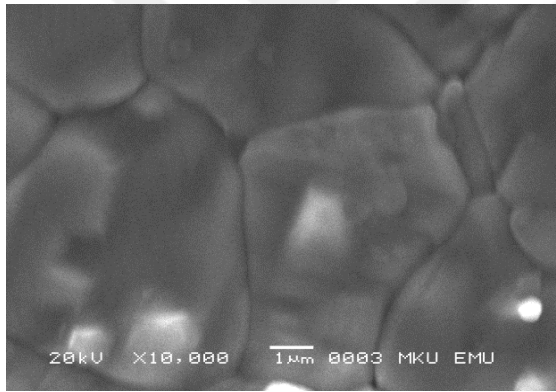


1400  C de 11 saat

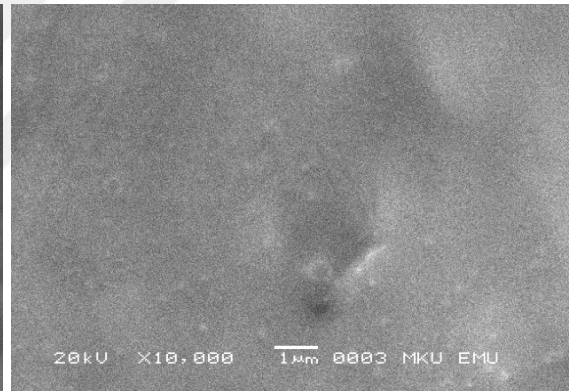
řekil 4.8. 1-11 saat s reyle 1400  C’de sinterlenen BaTiO_3 ’ın SEM g r nt leri

1400 °C’de 6 farklı sürede (1, 2, 3, 4, 8 ve 11 saat) sinterlenen BaTiO₃ tozlarının SEM görüntülerine bakıldığında 8 saatin altındaki sıcaklıklarda küçük taneciklerin gözenekli bir yapı oluşturduğu görülmektedir. Sinterleme süresi arttıkça (8 saat ve üzerindeki sürelerde) yapıyı oluşturan tanecikler birbirine tamamen yaklaşarak tanecikler arası boşluklar yok olmuş, buna bağlı olarak gözeneklilik azalmıştır. (Şekil 4.8). Tüm bu nedenlerden dolayı baryum titanat için sinterleme süresi 8 saat olarak belirlenmiştir.

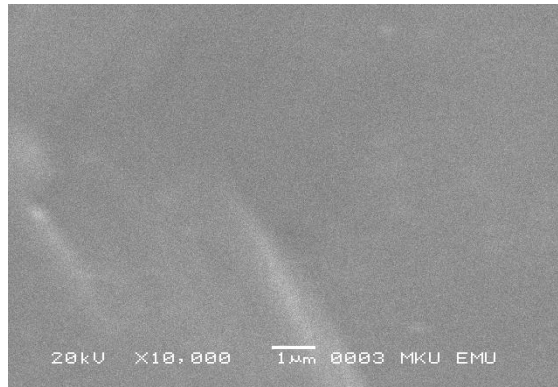
Sinterleme sıcaklığının belirlenmesi: 3 farklı sıcaklıkta (1300, 1400 ve 1500 °C) 8 saat sinterlenen BaTiO₃ tozlarının SEM görüntülerine bakıldığında 1400 °C ve üzerinde istenilen yapının (az gözenekli, tanecikler arası boşlukların yok olduğu) elde edildiği görülmektedir. Sinterleme sıcaklığının azalmasıyla tanecik sınırları daha belirgin bir hal almıştır. (Şekil 4.9).



1300 °C de 8 saat



1400 °C de 8 saat

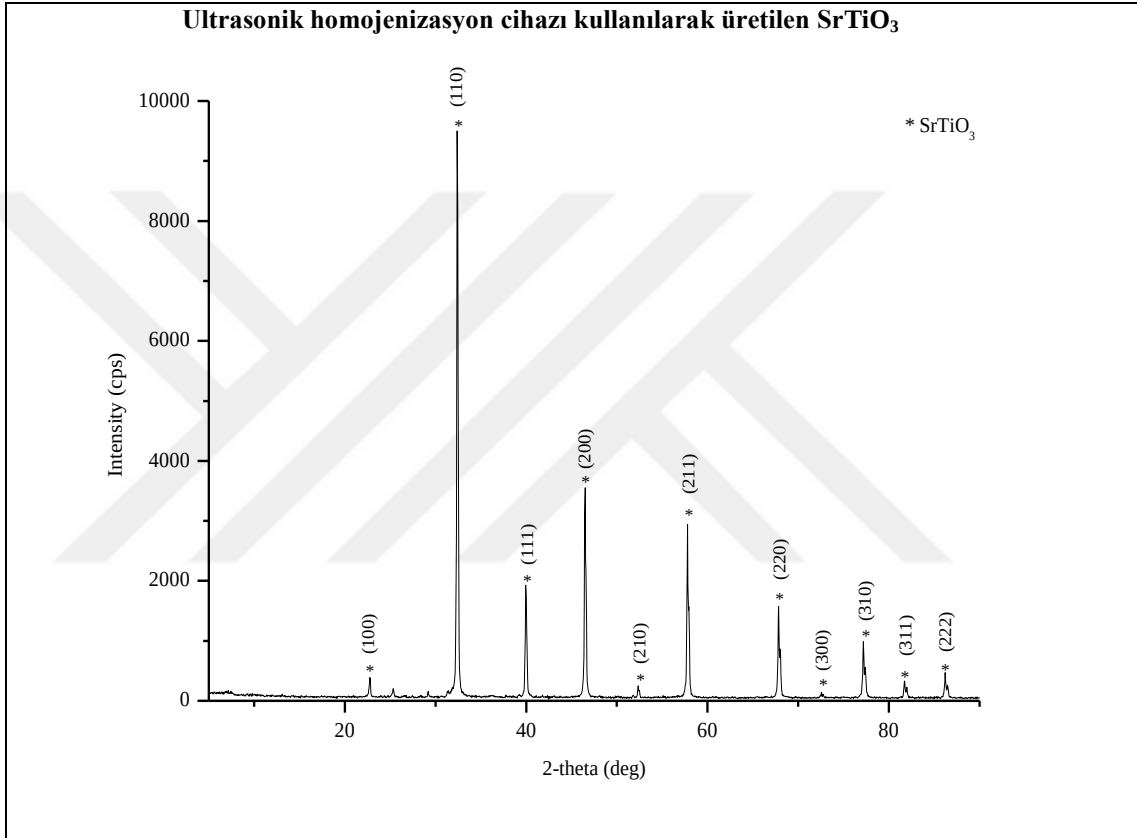


1500 °C de 8 saat

Şekil 4.9. 1300 - 1500 °C'de 8 saat sürede sinterlenen BaTiO₃'ın SEM görüntüleri

4.1.2. Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Sentezi ve Karakterizasyonu

Homojenizasyon işlemi: Bölüm 3.2.1’de verilen y nteme uygun olarak stronsiyum titanat seramiĐinin homojenizasyon işlemi ger ekleřtirilerek XRD toz kırınım deseni (řekil 4.10) ve SEM g r nt s  (řekil 4.12) alınmıřtır.



řekil 4.10. Ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak  retilen SrTiO₃’ın XRD diyagramı

 retilen SrTiO₃’ın XRD toz desenine bakıldığında 32°, 39°, 46°, 57°, 67°, 77° a ı deĐerlerindeki piklerin ticari SrTiO₃ pikleriyle birebir  rt řt Đ  g r lmektedir. Yapıda SrTiO₃’a ait olmayan bařlangı  malzemelerinin piklerine rastlanılmaması; pik řiddetlerinin y ksek olması; sinyal/g r lt  oranlarının d ř k olması yapının iyi bir řekilde oluřtuĐunun kanıtıdır. Elde edilen yapının ortalama tanecik b y kl Đ  Debye-Scherrer eřitliĐinden (Eřitlik 4.1) yararlanılarak 66,1 nm olarak hesaplanmıřtır.

$$D = \frac{0,9 \lambda}{\beta \cos \theta} \quad \lambda = 1,5400 \text{\AA} \quad (4.1)$$

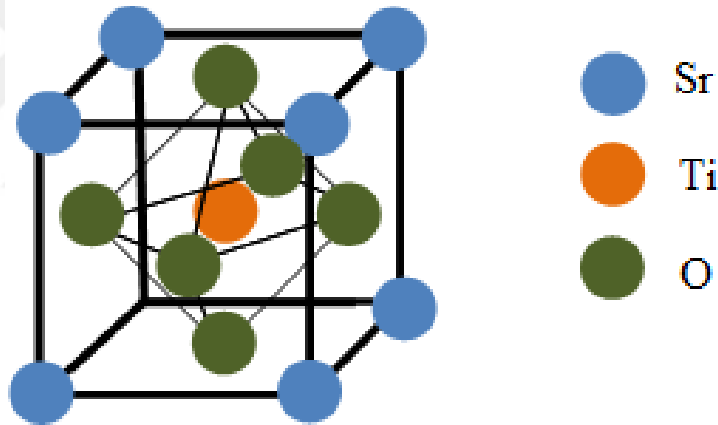
β : Maksimum şiddet pikinin yarı yükseklikteki genişliği

λ : X-ışını dalga boyu

θ : Bragg açısı

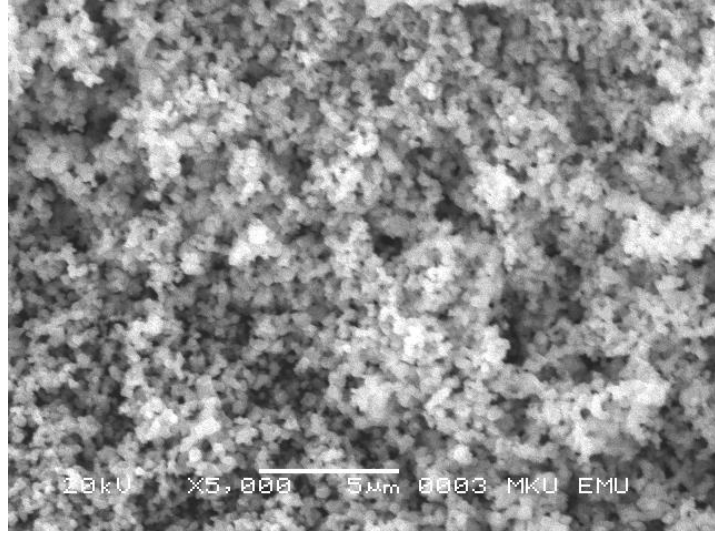
Eşitlik 4.1. Debye-Scherrer eşitliği

Stronsiyum titanatın kübik yapısına karşılık gelen pik (açısal konumu 32° olan (110) düzlemine ait yansıma) her iki diyagramda da en şiddetli pik olarak görülmektedir. Stronsiyum titanat oda sıcaklığında kübik ‘perovskite tipi’ bir yapıya sahiptir (Şekil 4.11). Stronsiyum atomları küpün orta noktasında bulunurken köşelerdeki her bir titanyum atomuna altı oksijen atomu bağlanmıştır (Kibar, 2007).



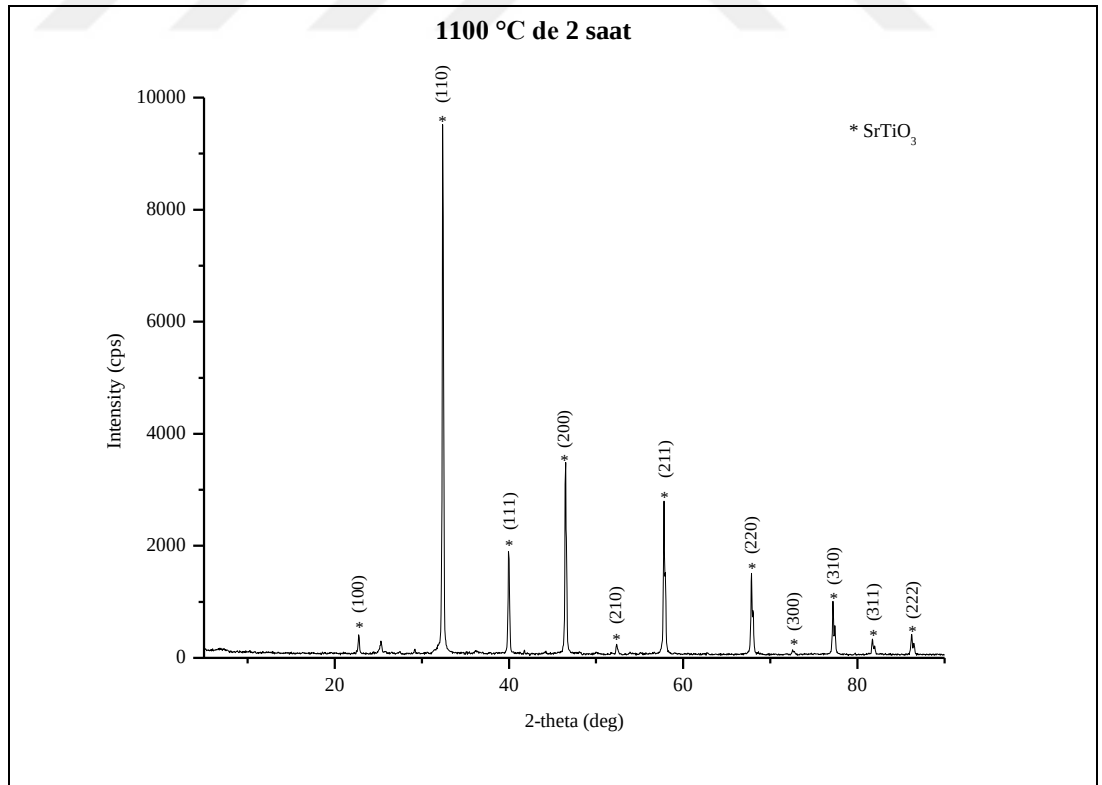
Şekil 4.11. SrTiO_3 'ın kübik yapısı

SrTiO_3 tozlarının SEM görüntüleri incelendiğinde yapının homojen bir şekilde elde edildiği görülmektedir (Şekil 4.12). Tanecik büyüklükleri ($< 1 \mu\text{m}$) yapı içinde hemen hemen aynı olmakla birlikte yapı içerisinde homojen bir dağılım göstermiştir.

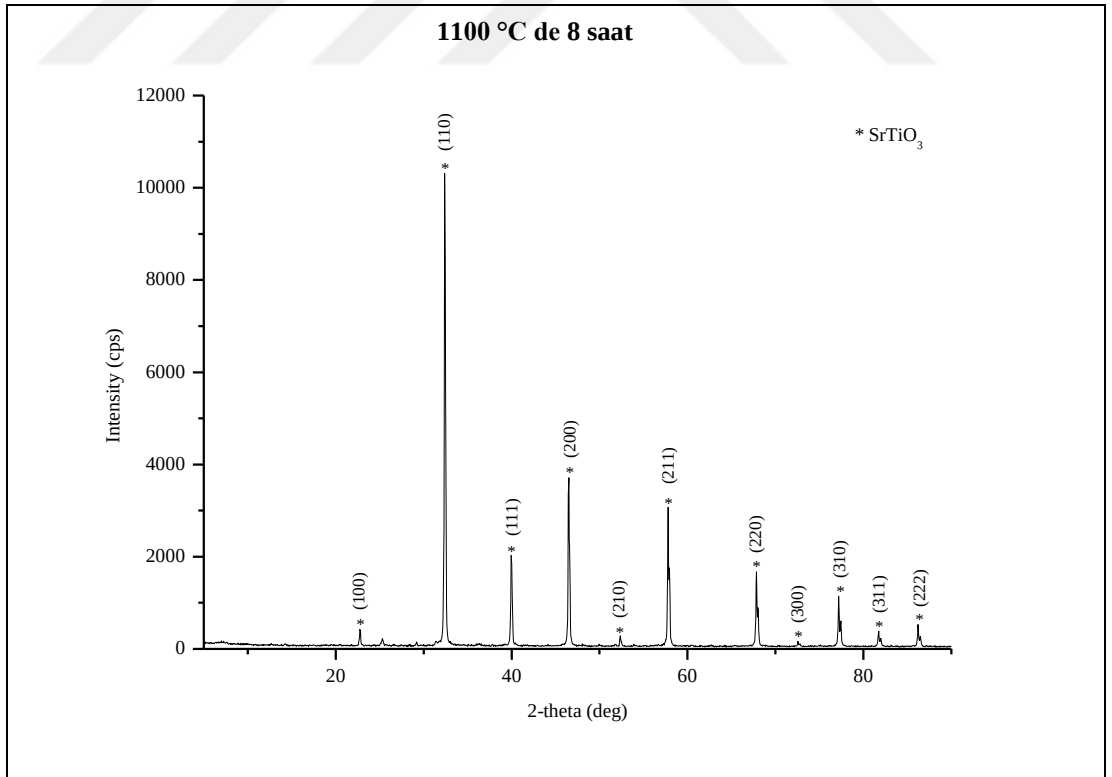
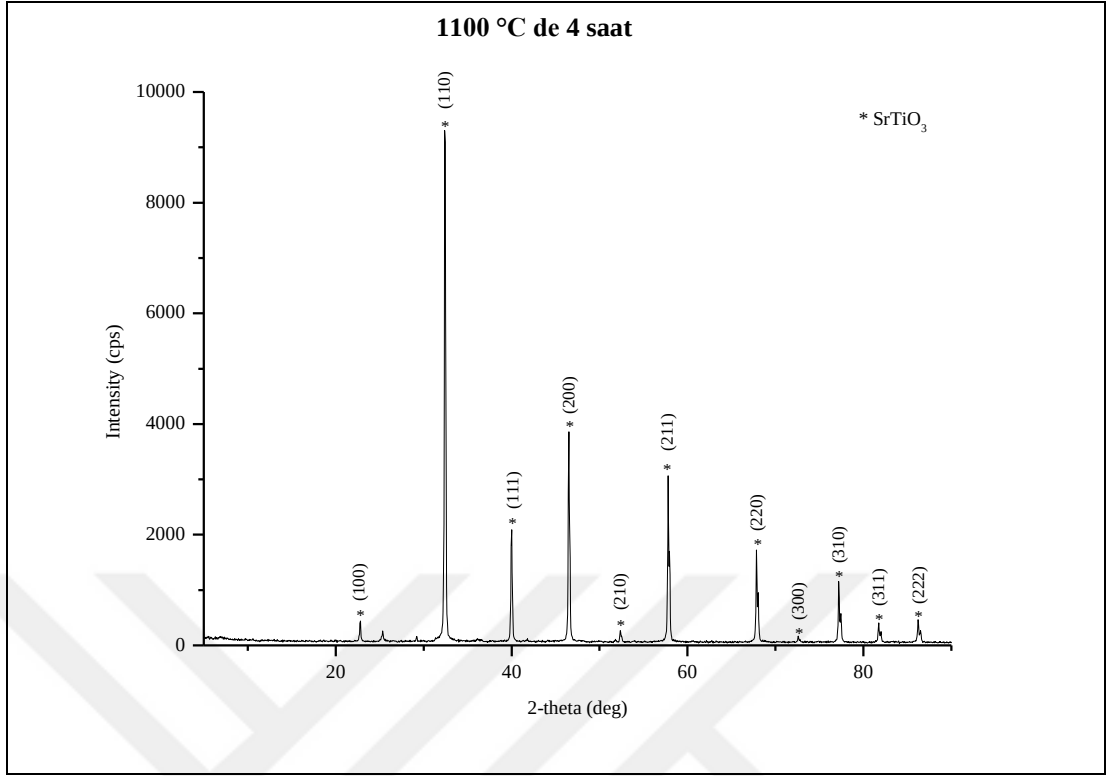


Şekil 4.12. Kalsinasyon işlemi sonrası ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak elde edilen seramik yapıya ait SEM görüntüsü

Kalsinasyon süresinin belirlenmesi: Bölüm 3.2.1.2’de verilen yönteme uygun olarak stronsiyum titanat sentezlenmiş ve 1100 °C’de 3 farklı sürede (2, 4 ve 8 saat) kalsine edilerek XRD toz kırınım desenleri alınmıştır (Şekil 4.13).



Şekil 4.13. 2-8 saat süreyle 1100 °C’de kalsine edilen SrTiO_3 ’ın XRD diyagramları

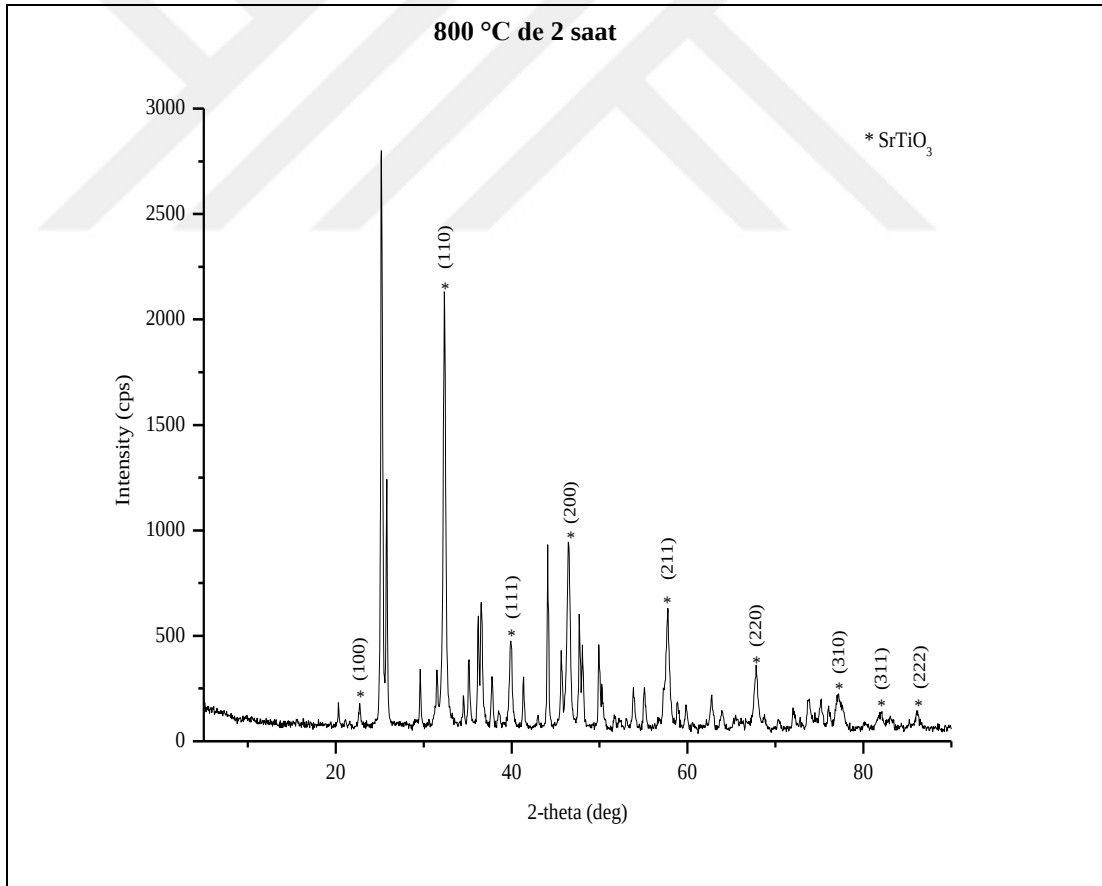


Şekil 4.13. (Devam) 2-8 saat süreyle 1100 °C'de kalsine edilen SrTiO₃'ün XRD diyagramları

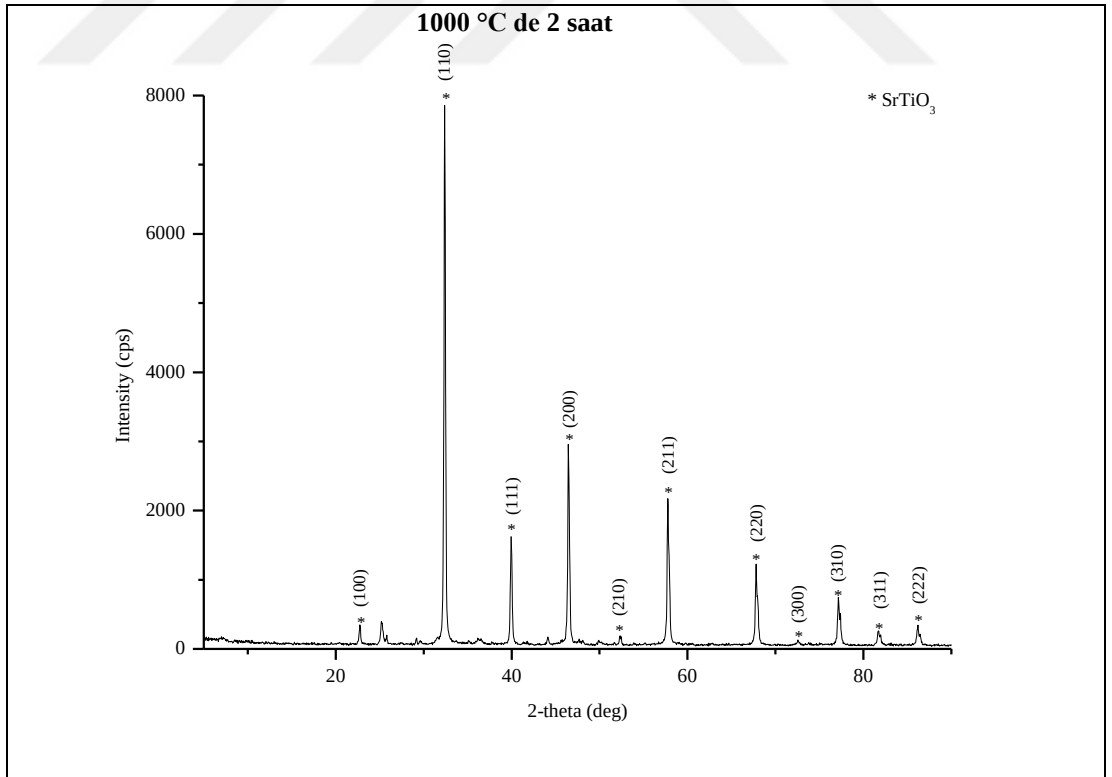
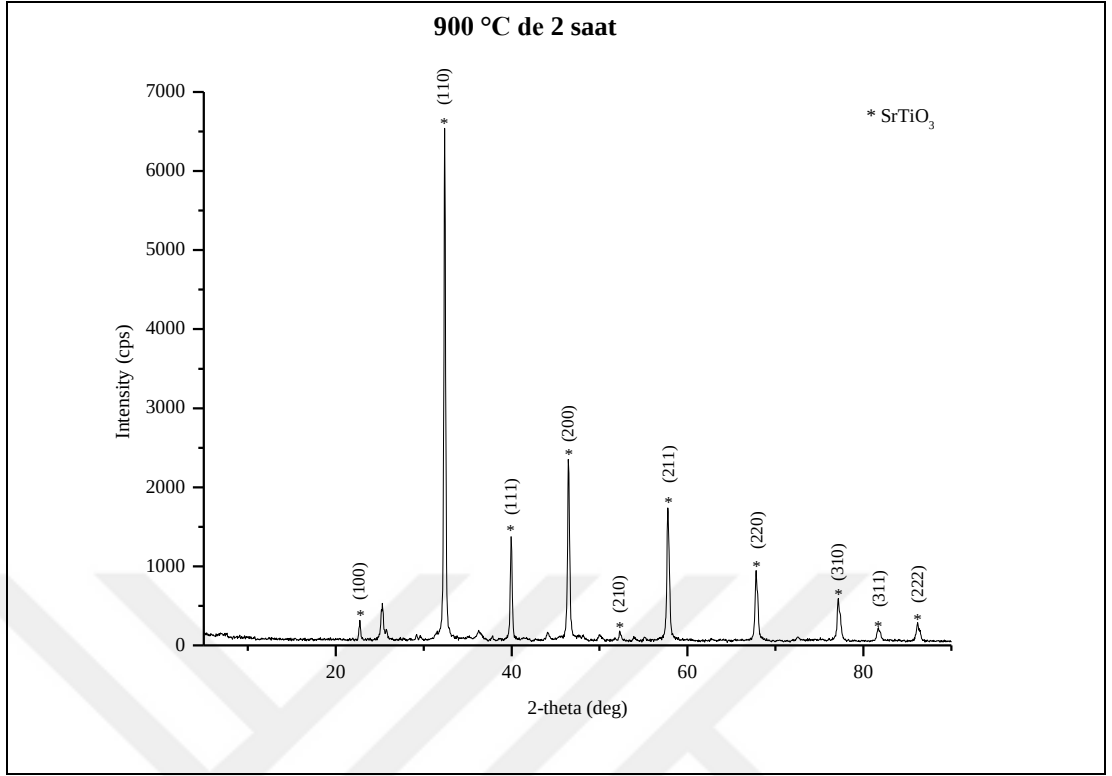
1100 °C’de 3 farklı sürede (2, 4 ve 8 saat) kalsine edilen stronsiyum titanat tozlarının XRD toz kırınım desenlerine bakıldığında 2 saatlik kalsinasyon süresinin yapı oluşumunda yeterli olduğu görülmüştür (Şekil 4.13). Sonraki çalışmalarda kalsinasyon süresi olarak 2 saat uygulanmıştır.

Literatüre bakıldığında Wang ve arkadaşları (2014) farklı mol oranlarında stronsiyum titanat ($\text{Sr}_{1\pm x}\text{TiO}_3$, x: 0; 0,002; 0,004; -0,002; -0,004; -0,006) seramik yapılarını katı hal sentez yöntemini kullanarak sentezlemişlerdir. Sentez sonrasında elde ettikleri bulamacı kurutmuşlar ve 1150 °C de 2 saat kalsine etmişlerdir (Wang ve ark., 2014).

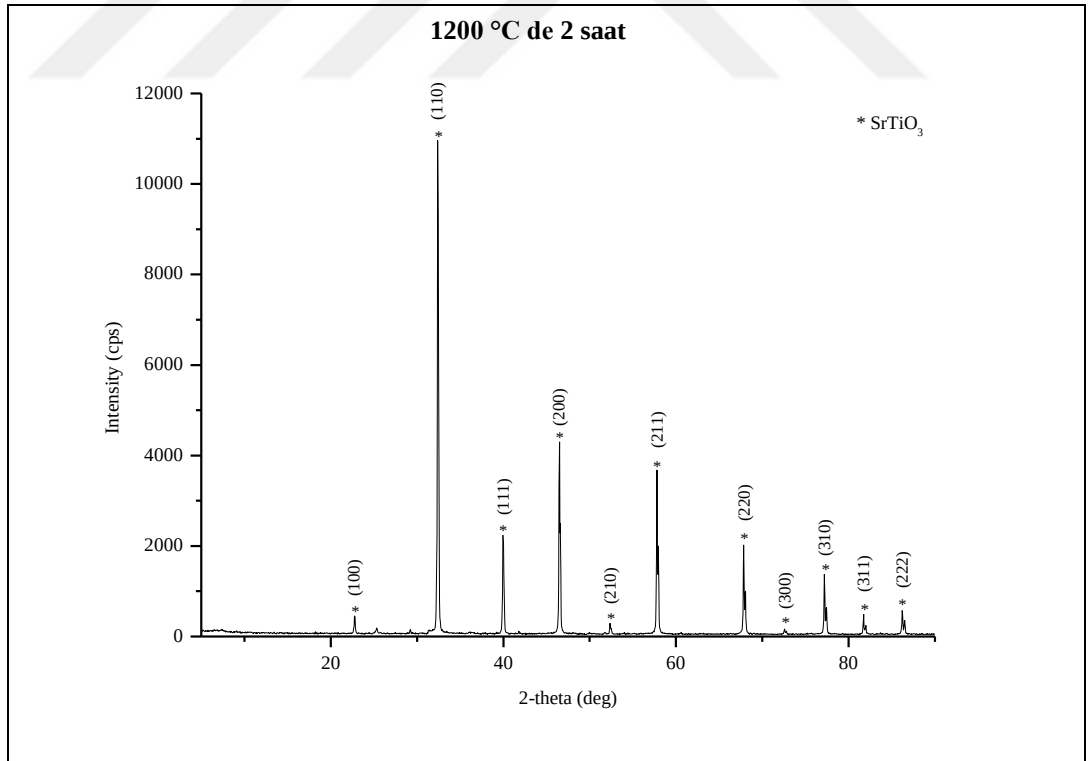
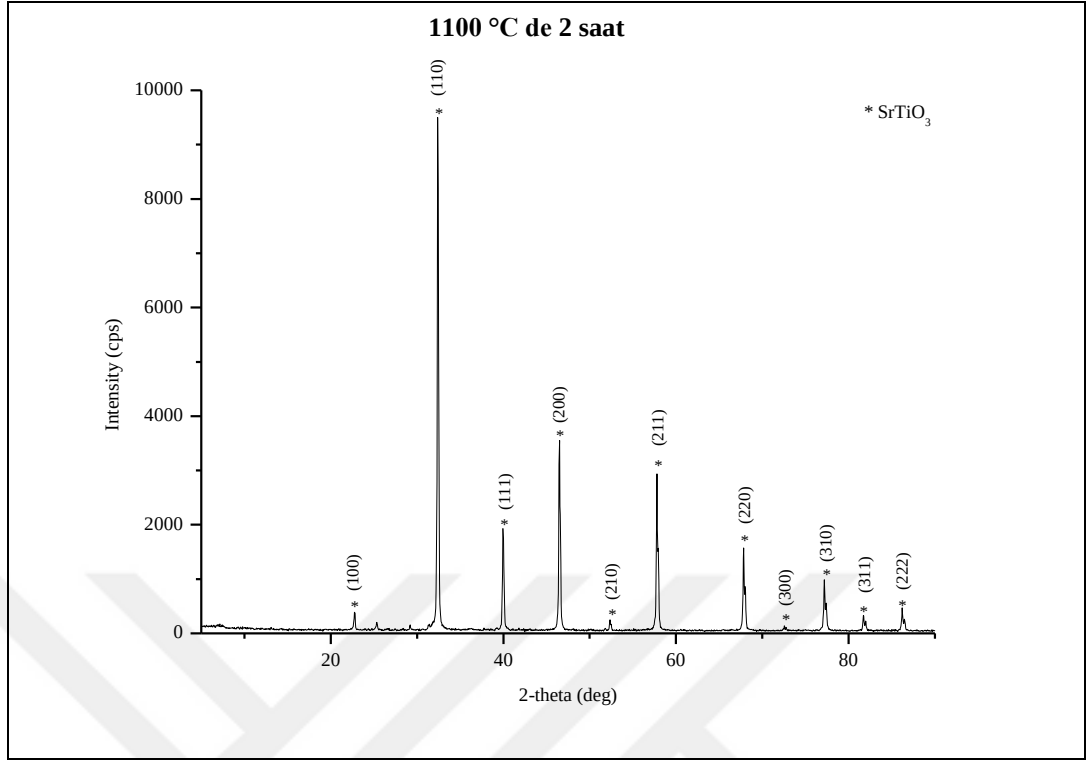
Kalsinasyon sıcaklığının belirlenmesi: Bölüm 3.2.1.2’de verilen yöntemine uygun olarak stronsiyum titanat sentezlenmiş ve 800, 900, 1000, 1100 ve 1200 °C olmak üzere 5 farklı sıcaklıkta kalsine edilerek XRD toz kırınım desenleri alınmıştır (Şekil 4.14).



Şekil 4.14. 800 - 1200 °C’de 2 saat sürede kalsine edilen SrTiO_3 ’ün XRD diyagramları



Şekil 4.14. (Devam) 800 - 1200 °C'de 2 saat sürede kalsine edilen SrTiO₃'ün XRD diyagramları

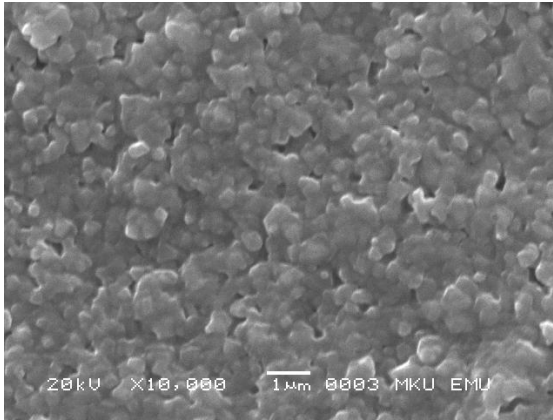


Şekil 4.14. (Devam) 800 - 1200 °C'de 2 saat sürede kalsine edilen SrTiO₃'ın XRD diyagramları

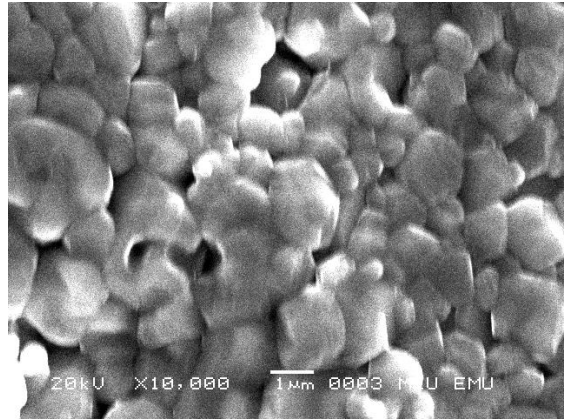
XRD diyagramları incelendiğinde 800 °C’de SrTiO_3 ’a ait karakteristik piklerin yanı sıra SrCO_3 ve TiO_2 ’e ait piklerinde yer aldığı görülmektedir. Başlangıç malzemelerine ait karakteristik piklerin var oluşu yapının tam olarak elde edilemediğinin göstergesidir. 1100 °C ve üzerindeki sıcaklıklarda elde edilen XRD diyagramında SrCO_3 ve TiO_2 ’e ait karakteristik pikler tamamen kaybolmuş sadece SrTiO_3 ’a ait karakteristik piklere rastlanılmaktadır. 1100 °C’de 2 saat kalsine edilen örneğin 32°’deki SrTiO_3 ’a ait karakteristik pikinin alanının ve yüksekliğinin, daha düşük sıcaklıklarda kalsine edilen seramik tozlarına göre daha iyi olması ve sinyal/gürültü oranının daha yüksek olması sebebiyle kalsinasyon sıcaklığı olarak 1100 °C seçilmiştir.

Sinterleme süresinin ve sıcaklığının belirlenmesi: 1400; 1500 ve 1600 °C’de 12 saat sinterlenen SrTiO_3 tozlarının SEM görüntülerine bakıldığında sinterleme sıcaklığı arttıkça taneciklerin gözenekli bir yapıdan daha az gözenekli bir yapıya doğru ilerlediği, ortalama tanecik büyüklüğünün arttığı, taneciklerin birbirleriyle kaynaşarak tanecik sınırlarının yok olduğu bir yapıya doğru değişim olduğu görülmüştür (Şekil 4.15).

Tkach ve arkadaşları katı hal sentez yöntemini kullanarak farklı mol oranlarında stronsiyum titanat seramiğini sentezlemişlerdir. Sentez sonrasında elde ettikleri toz numuneyi 1150 °C’de 2 saat kalsine ettikten sonra pelet haline getirmişler ve 1500 °C’de 5 saat sinterlemişlerdir (Tkach ve ark., 2005).

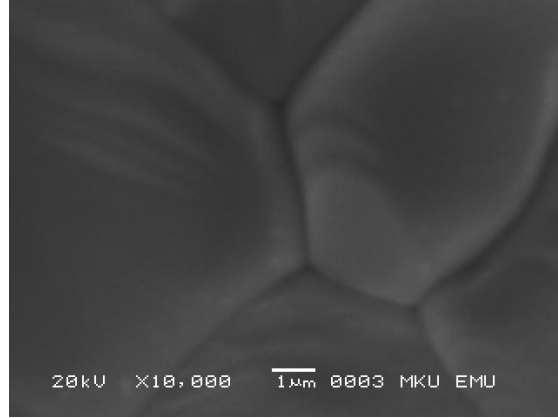


1400 °C de 12 saat



1500 °C de 12 saat

Şekil 4.15. 1400 - 1600 °C’de 12 saat süre sinterlenen SrTiO_3 ’ın SEM görüntüleri



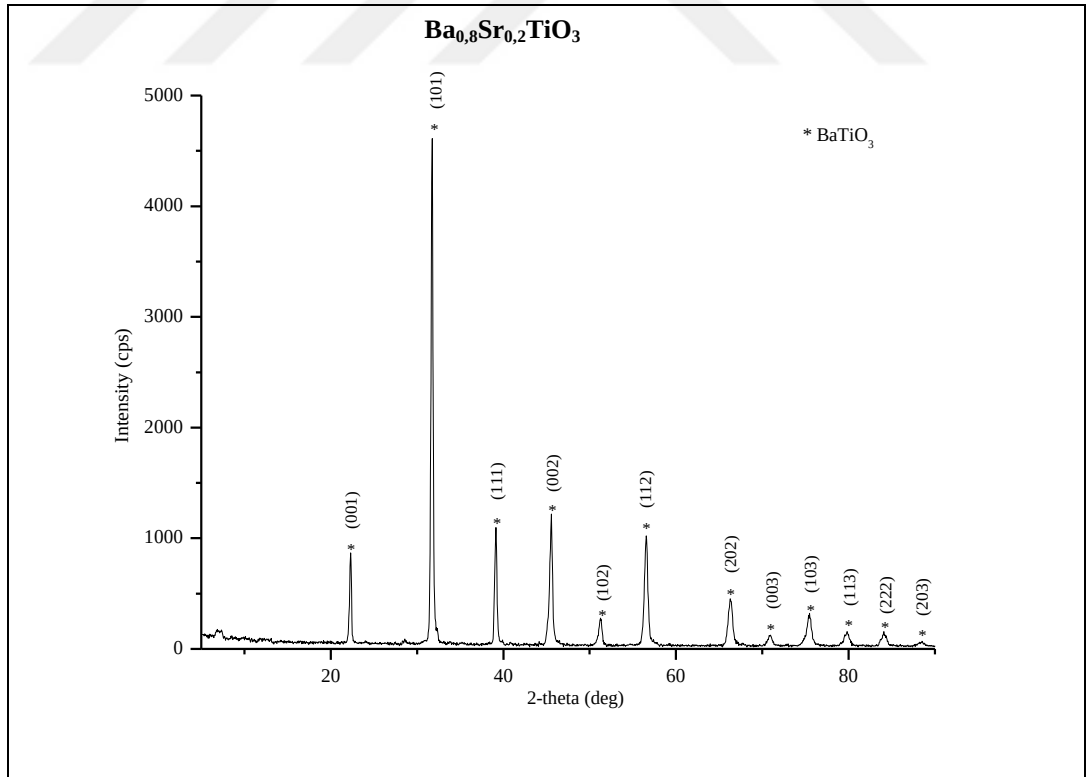
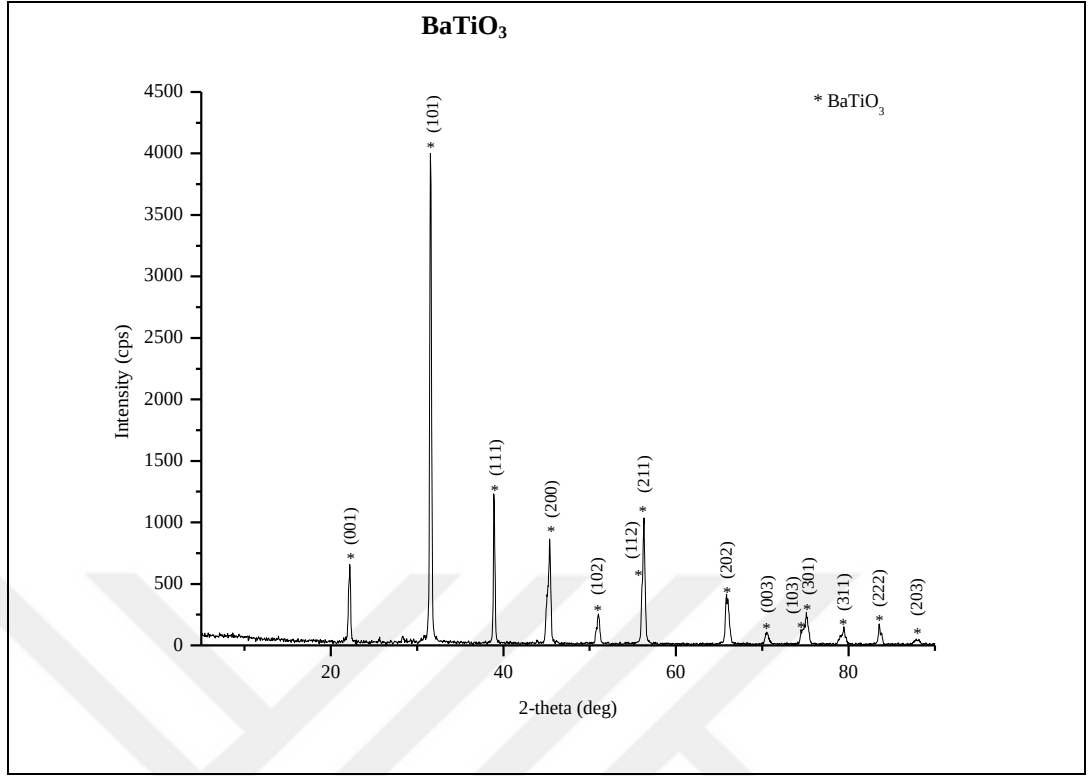
1600 °C de 12 saat

Şekil 4.15. (Devam) 1400 - 1600 °C'de 12 saat süre sinterlenen SrTiO₃'ın SEM görüntüleri

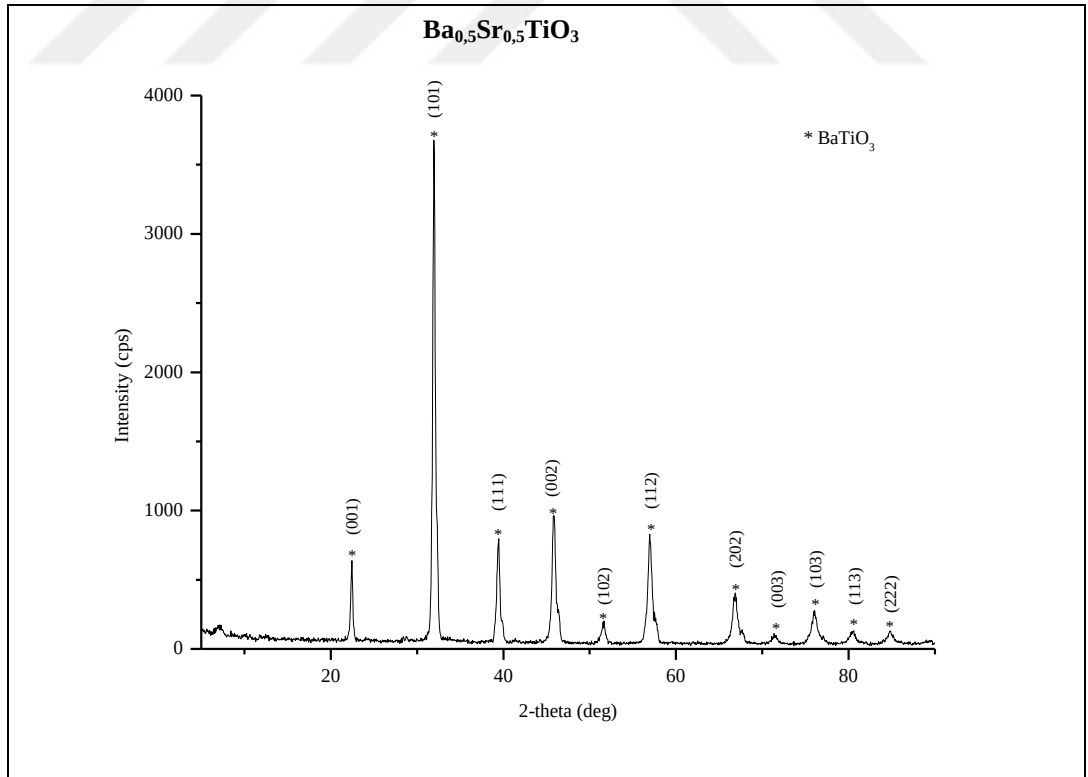
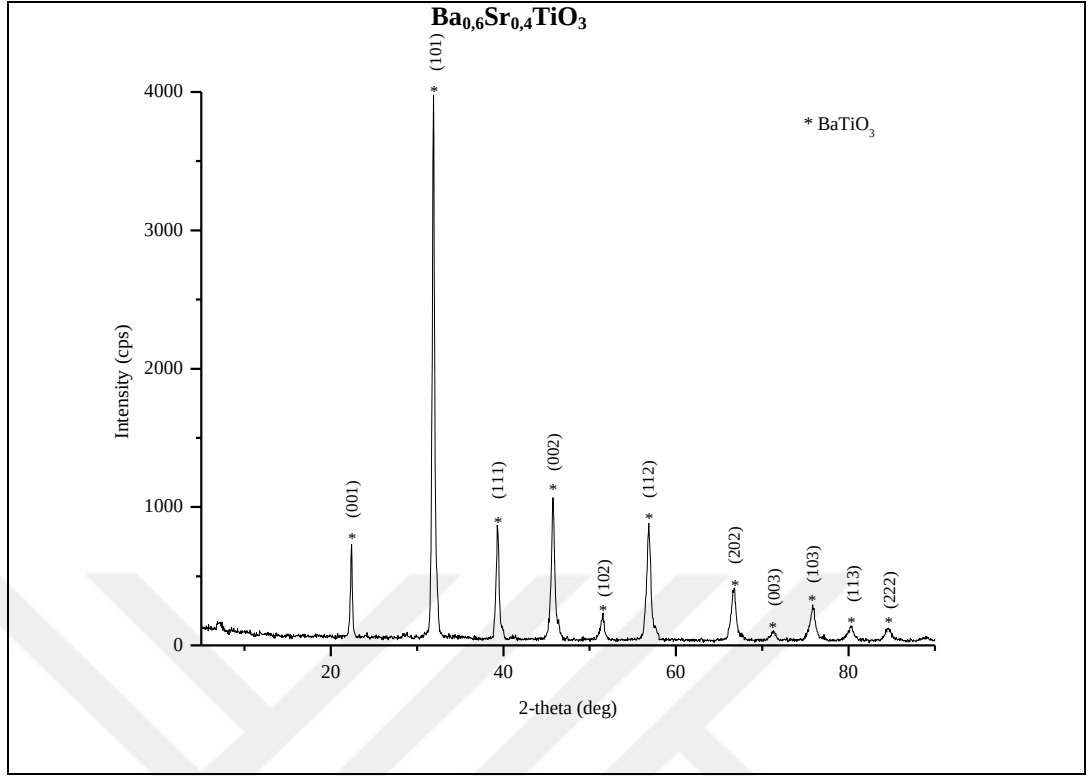
4.1.3. Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Sentezi ve Karakterizasyonu

Bölüm 3.2.1.3'de verilen yöntem uygun olarak farklı mol oranlarında (x: 0,2; 0,4; 0,6; 0,8) Ba_{1-x}Sr_xTiO₃ sentezlenmiştir. Elde edilen örneklerin XRD toz kırınım desenleri Şekil 4.16'da gösterilmiştir.

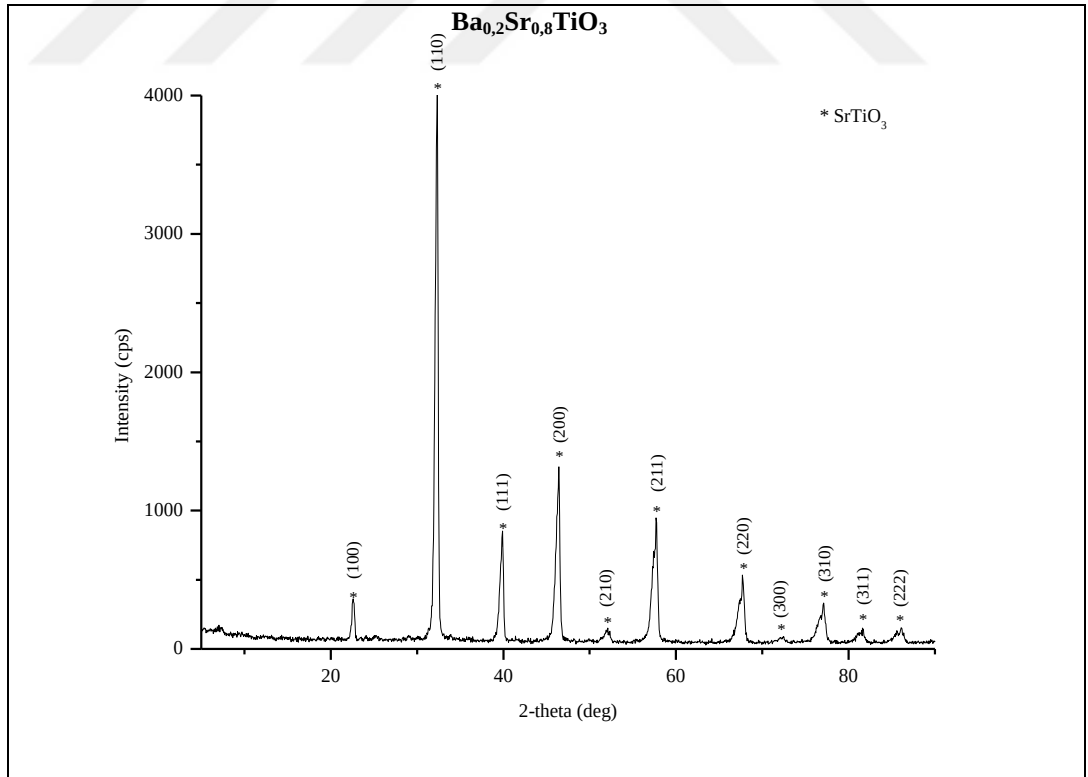
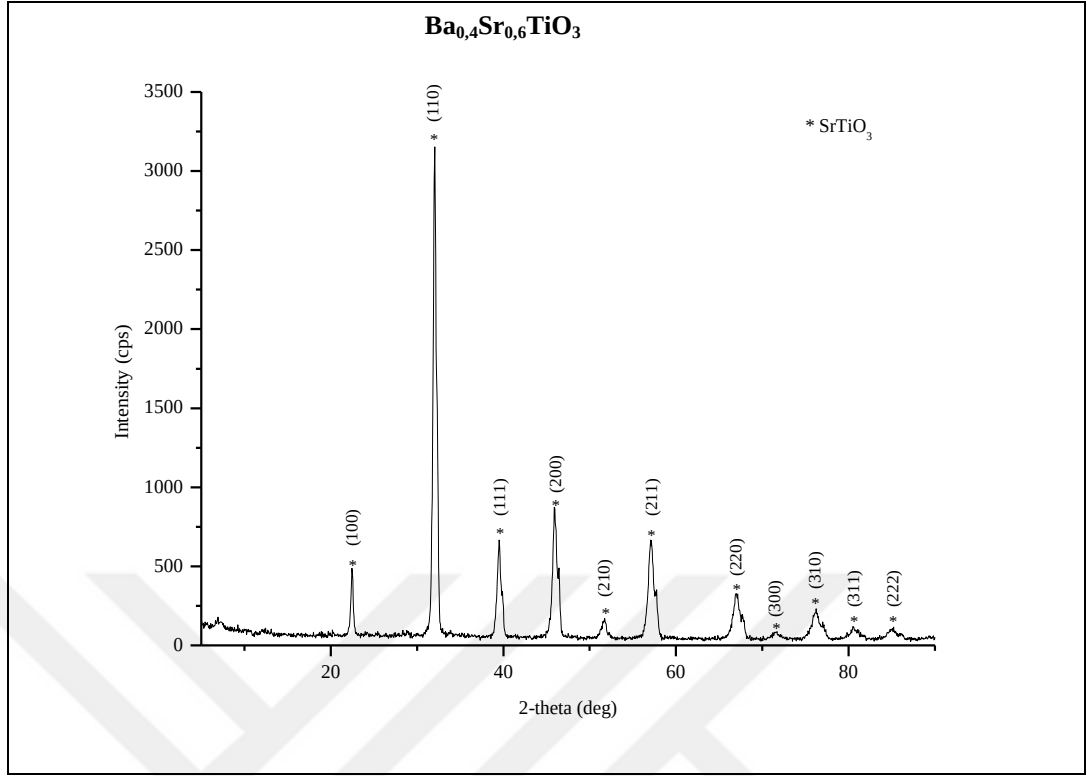
XRD diyagramları incelendiğinde ağırlıklı yapının baryum olduğu Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO₃ ve Ba_{0,6}Sr_{0,4}TiO₃ seramik tozlarında baryum titanata ait pikler daha net görülmektedir. Yapıdaki stronsiyum miktarının artışıyla bu piklerin şiddetinde azalma meydana gelmiş, yapının stronsiyum titanata doğru kaydığı görülmüştür. Her bir mol oranında üretilen Ba_xSr_{1-x}TiO₃ yapısında başlangıç malzemelerine ait piklere rastlanılmamıştır. Üretilmek istenen Ba_xSr_{1-x}TiO₃ seramik tozları için alınan XRD desenlerinin sinyal/gürültü oranı ve pik şiddetinin yüksek, kristallenme oranının iyi olduğu görülmektedir. Patel ve ark. (2017) nanokristal Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO₃ ve Ba_{0,4}Sr_{0,6}TiO₃ yapılarını sentezlemişler ve karakterize etmişlerdir. XRD diyagramlarına bakıldığında her iki yapıda da benzer açılar değerlerinde (32, 46, 57) pikler gözlenmiş ve bu piklerin baryum stronsiyum titanat yapısına ait olduğu ve elde ettiğimiz piklerin bunlarla uyumlu sağladığı ifade edilmektedir.



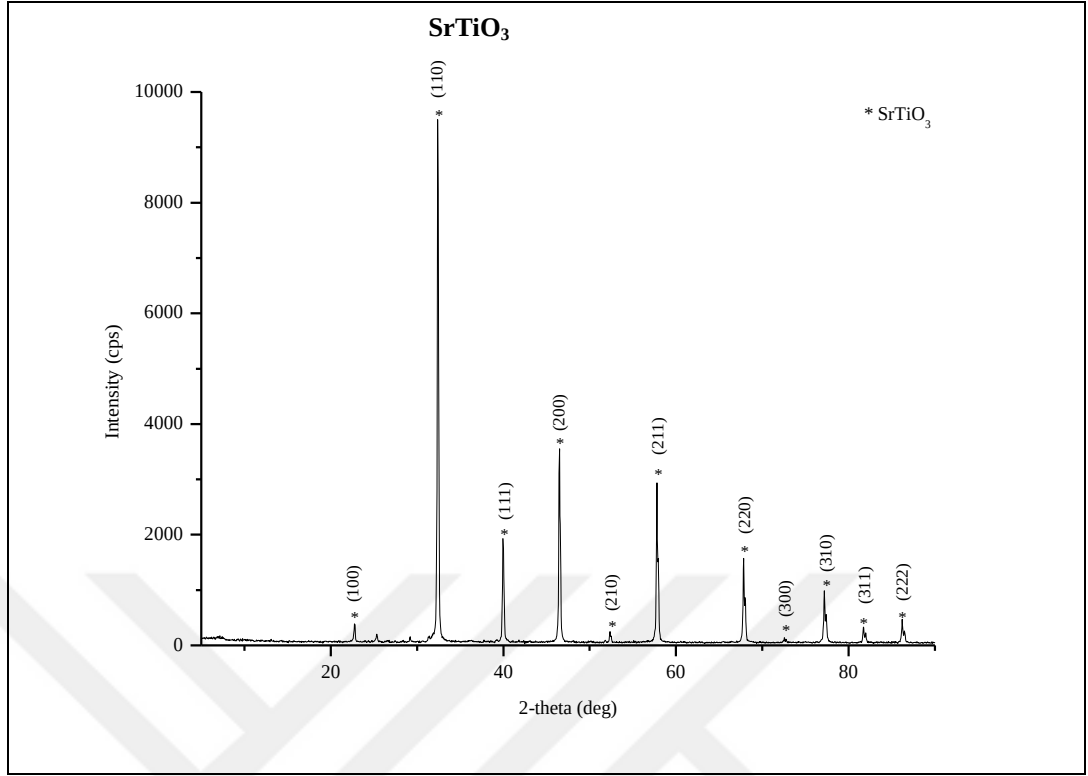
Şekil 4.16. Ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak üretilen Ba_{1-x}Sr_xTiO₃ (x: 0; 0,2; 0,4; 0,6; 0,8; 1,0) seramik yapılarına ait XRD diyagramları



Şekil 4.16. (Devam) Ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak üretilen Ba_{1-x}Sr_xTiO₃ (x: 0; 0,2; 0,4; 0,6; 0,8; 1,0) seramik yapılara ait XRD diyagramları



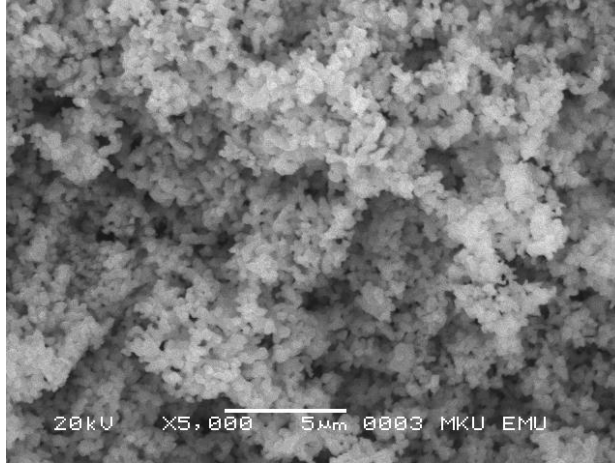
Şekil 4.16. (Devam) Ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak üretilen Ba_{1-x}Sr_xTiO₃ (x: 0; 0,2; 0,4; 0,6; 0,8; 1,0) seramik yapılara ait XRD diyagramları



Şekil 4.16. (Devam) Ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak üretilen $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ (x: 0; 0,2; 0,4; 0,6; 0,8; 1,0) seramik yapıları ait XRD diyagramları

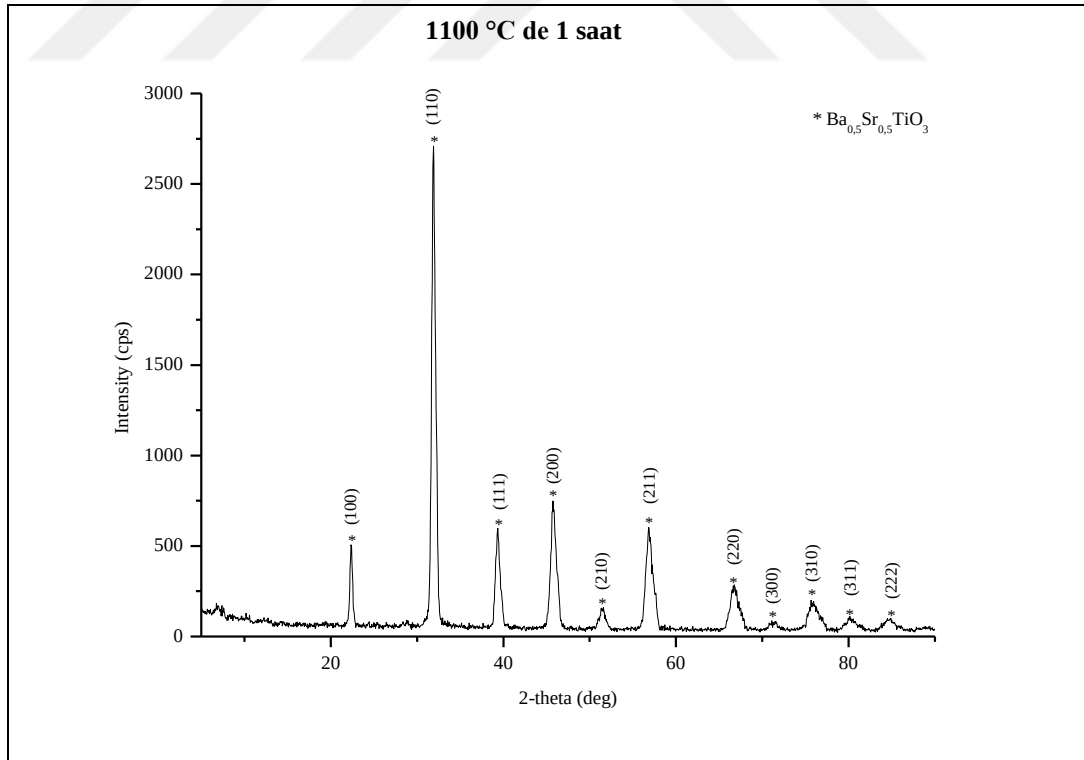
Aynı miktarda baryum ve stronsiyum alınarak üretilen $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ tozunun XRD diyagramı incelendiğinde her iki yapıya ait karakteristik piklerin yer aldığı görülmektedir. Elde edilen yapının ortalama tanecik büyüklüğü Scherrer formülünden yararlanılarak 20,8 nm olarak hesaplanmıştır. Patel ve ark. (2017) sentezlediği $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ toz numunesinin ortalama tanecik boyutu 200-250 nm aralığında olduğunu SEM görüntülerinden yola çıkarak belirlemişler ve bu bilgiyi elde ettikleri XRD analiz sonuçlarıyla desteklemişlerdir. Sentez sırasında kullanılan homojenizasyon yöntemindeki farklılık tanecik boyutlarında ciddi bir değişikliğin meydana gelmesine sebep olmaktadır. Yaptığımız çalışmada homojenizasyon tekniği olarak ultrasonik homojenizasyon tekniğini tercih etmemiz daha küçük tanecikli yapıları elde etmemizi sağlamıştır.

Katı hal sentez yöntemiyle üretilen $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ tozunun SEM görüntüleri incelendiğinde taneciklerin yapı içerisinde homojen bir dağılım gösterdiği görülmektedir (Şekil 4.17).

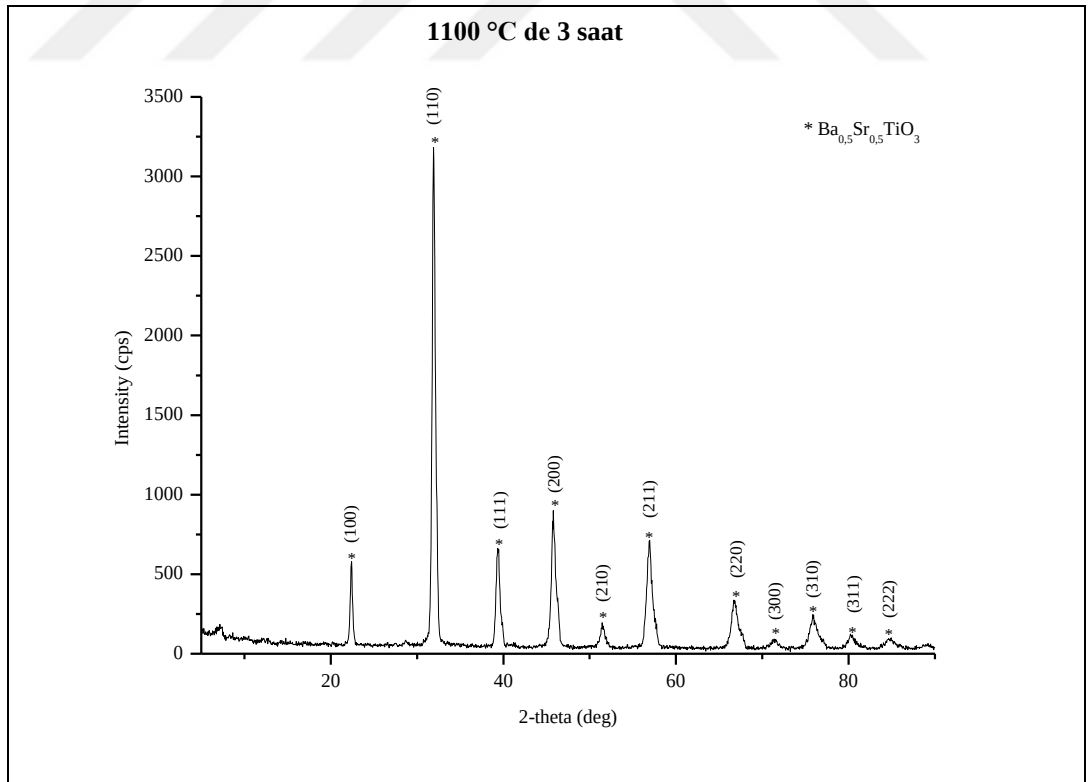
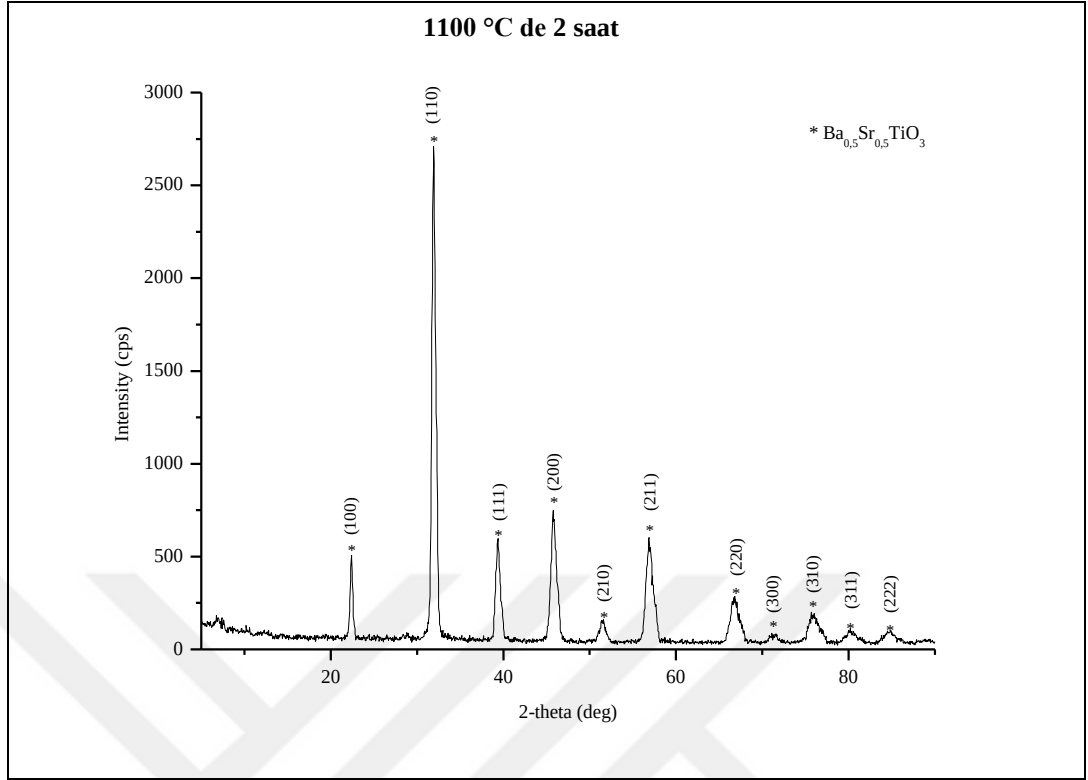


Şekil 4.17. Katı hal sentez yöntemiyle üretilen $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$ tozunun kalsinasyon işlemi sonrasına ait SEM görüntüsü

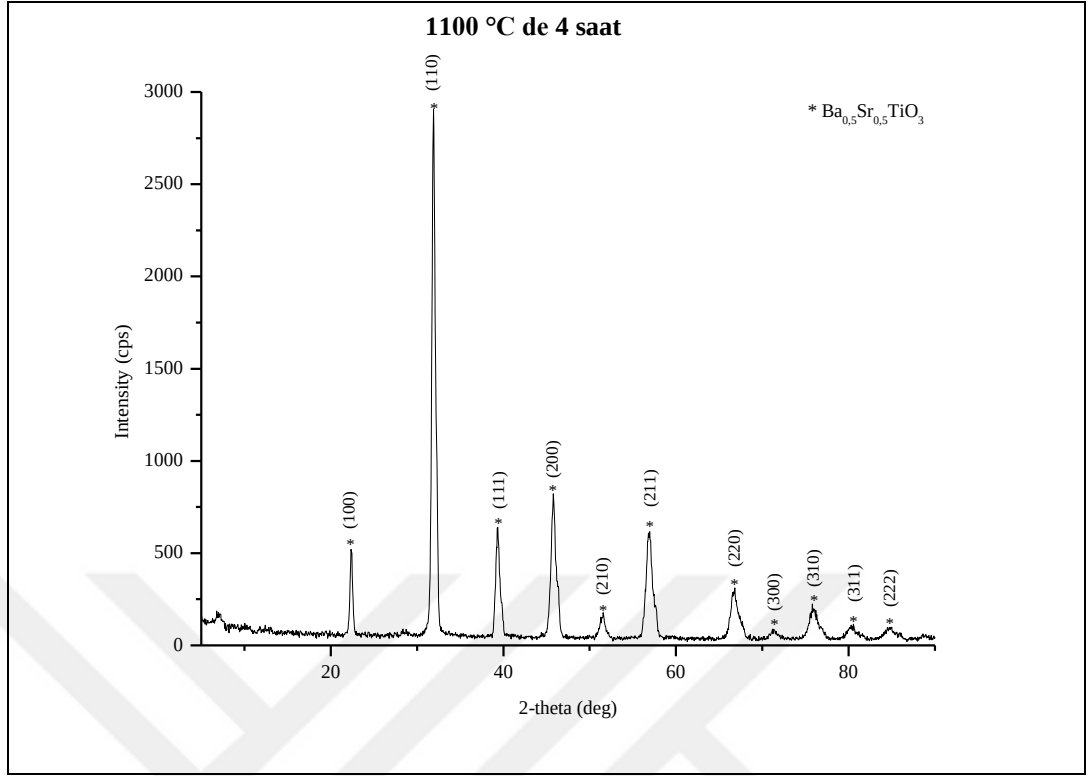
Kalsinasyon süresinin belirlenmesi: Bölüm 3.2.1.3’de verilen yönteme uygun olarak farklı mol oranlarında (x: 0,2; 0,4; 0,6; 0,8) $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$ sentezlenerek üretilen $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$ tozları 4 farklı sürede (1, 2, 3 ve 4 saat) 1100 °C’de kalsine edilmiştir. Kalsine edilen örneklerin XRD toz kırınım desenleri alınmıştır (Şekil 4.18).



Şekil 4.18. 1-4 saat süreyle 1100 °C de kalsine edilen $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$ ’ın XRD diyagramları



Şekil 4.18. (Devam) 1-4 saat süreyle 1100 °C de kalsine edilen $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$ 'ın XRD diyagramları

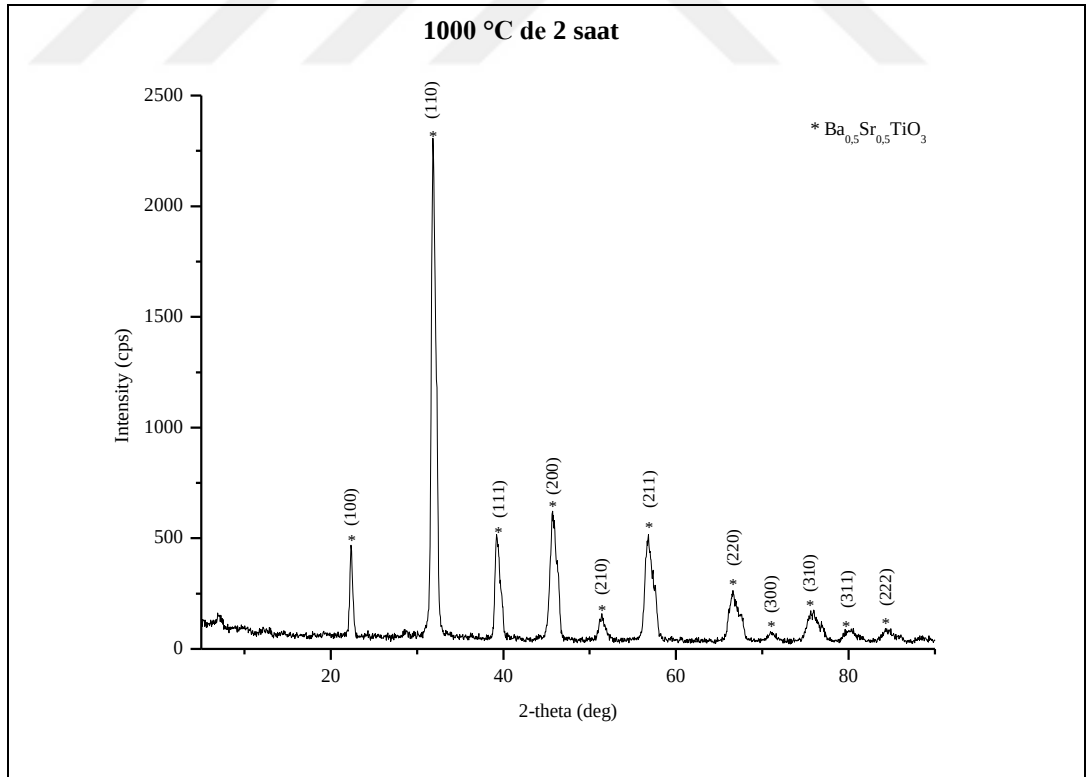
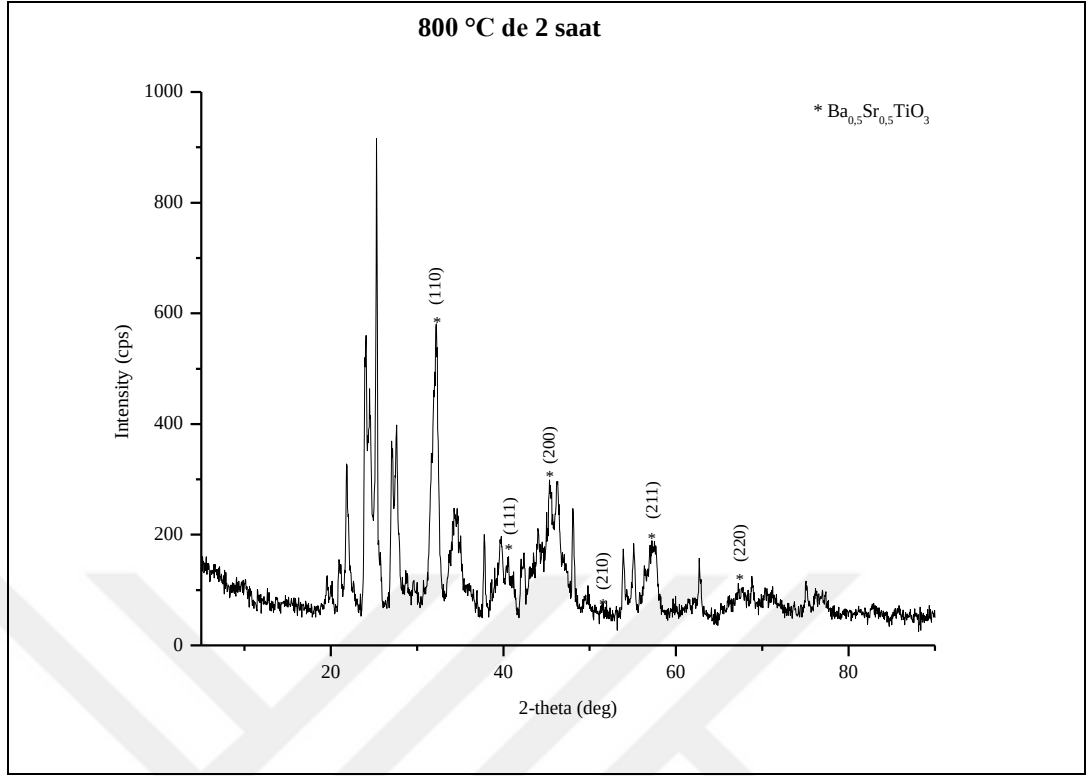


Şekil 4.18. (Devam) 1-4 saat süreyle 1100 °C de kalsine edilen $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ 'ın XRD diyagramları

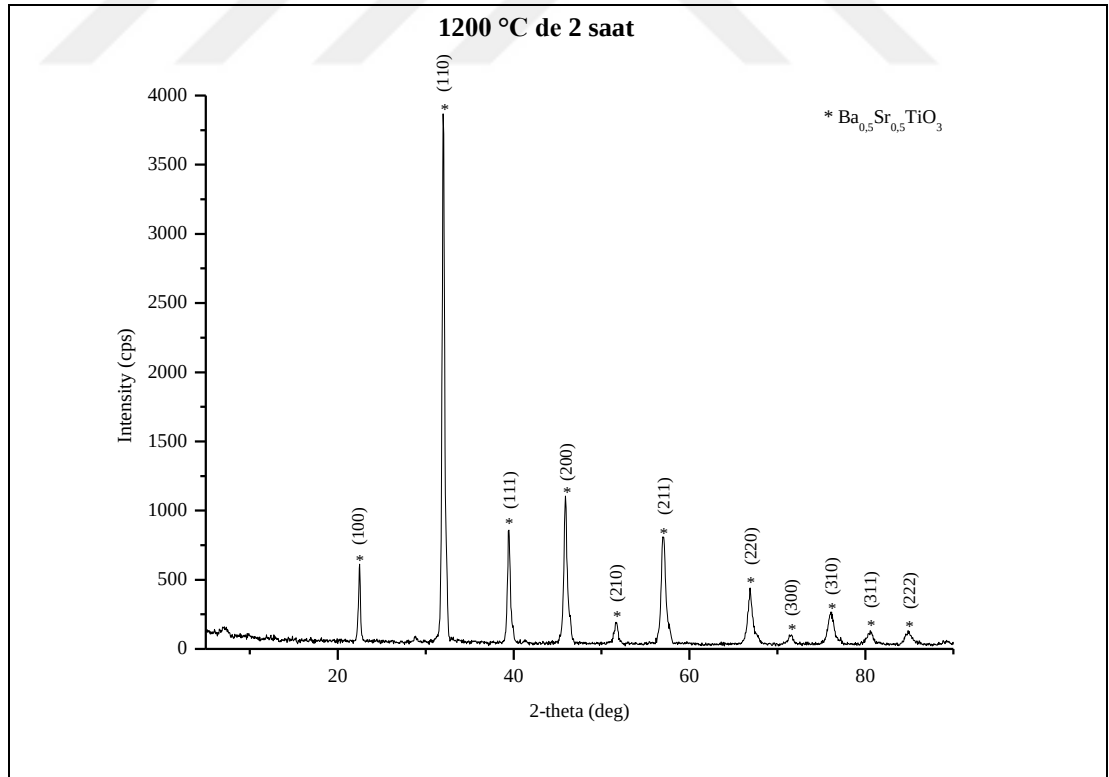
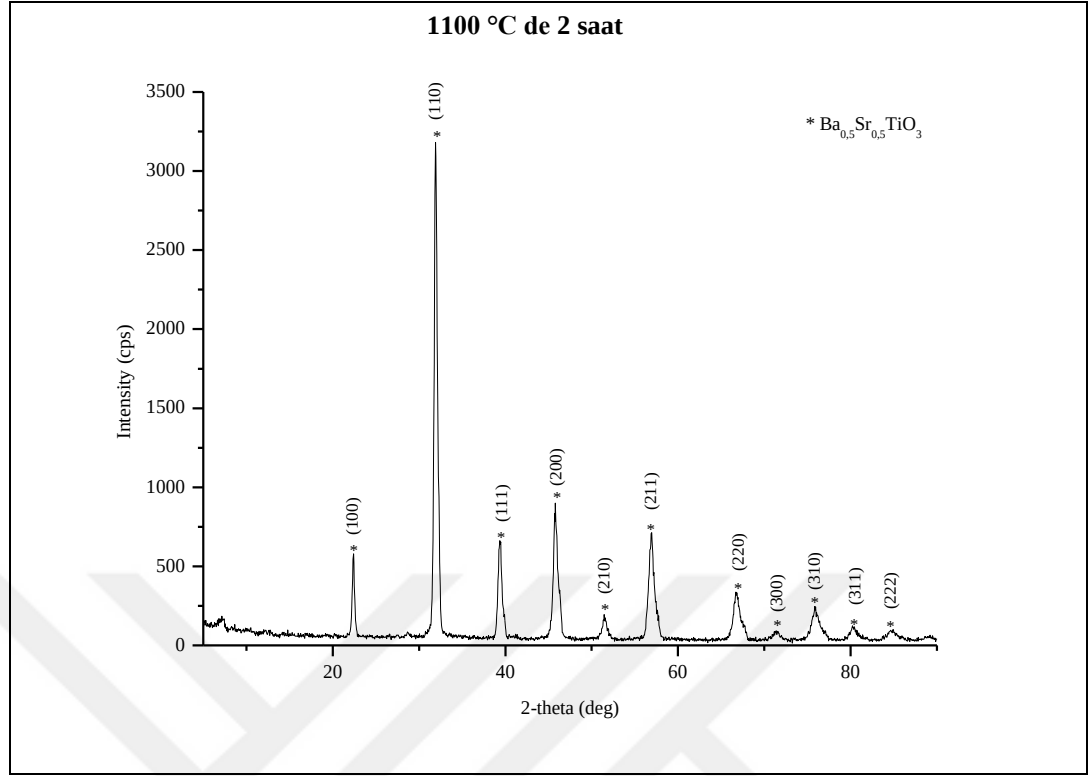
Farklı sıcaklıklarda kalsine edilen örneklerin XRD diyagramları incelendiğinde 2 saatlik kalsinasyon süresinin yapının oluşmasında yeterli olduğu, sinyal/gürültü oranının düşük olduğu ve pik şiddetinin daha yüksek sıcaklıklarla aynı olduğu görülmüştür. Bu nedenlerden dolayı bundan sonraki çalışmalarda 2 saatlik kalsinasyon süresi uygulanmıştır.

Kalsinasyon sıcaklığının belirlenmesi: Bölüm 3.2.1.3. de anlatıldığı gibi katı hal sentez yöntemi kullanılarak sentezlenen $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ seramik tozu 800, 1000, 1100 ve 1200 °C olmak üzere 4 farklı sıcaklıkta 2 saat kalsine edilmiştir. Kalsinasyon sonrasında elde edilen $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ seramik tozlarının XRD kırınım deseni alınmış, Şekil 4.19'da gösterilmiştir.

XRD desenleri incelendiğinde 1100 °C ve üzerindeki sıcaklıklarda yapının tam olarak elde edildiği, başlangıç malzemelerinin piklerine rastlanılmadığı görülmektedir. Bu sebepten ötürü bundan sonraki çalışmalarda kalsinasyon sıcaklığı olarak 1100 °C'de çalışılmıştır.



Şekil 4.19. 800 - 1200 °C de 2 saat sürede kalsine edilen $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$ 'ın XRD diyagramları



Şekil 4.19. (Devam) 800 - 1200 °C'de 2 saat sürede kalsine edilen $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$ 'ın XRD diyagramları

4.2. İyon Katkılı (Mn^{3+} , K^+ , In^{3+} , Rb^+ , Pr^+) Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu

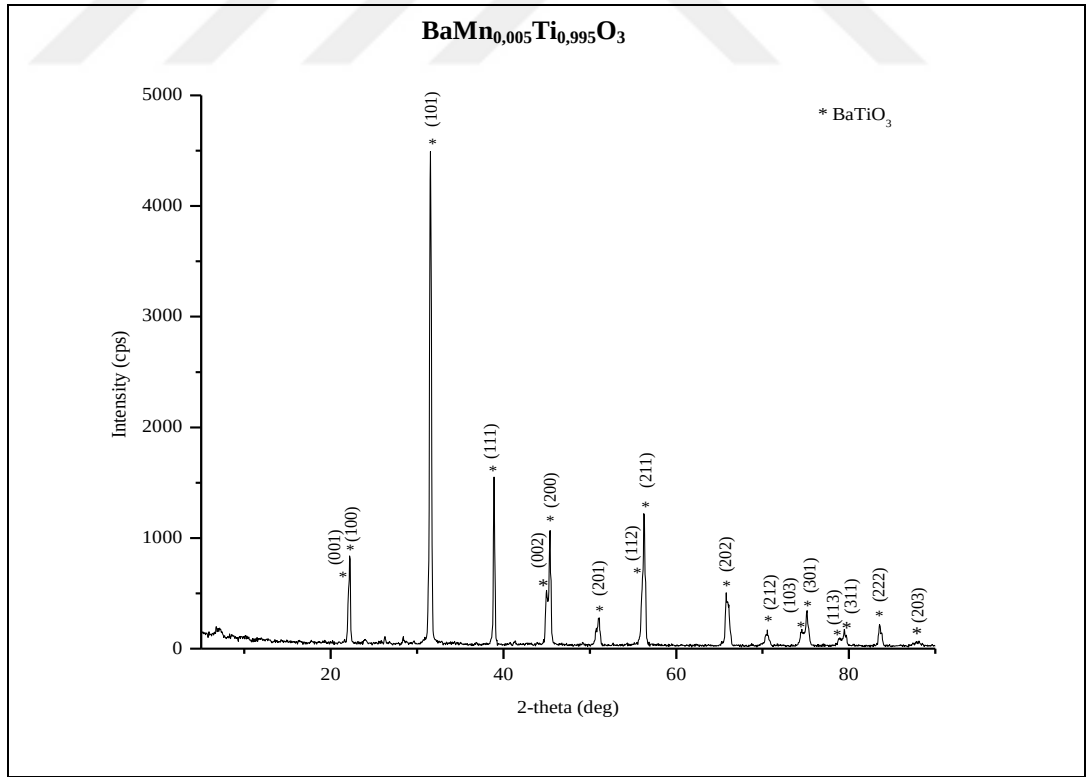
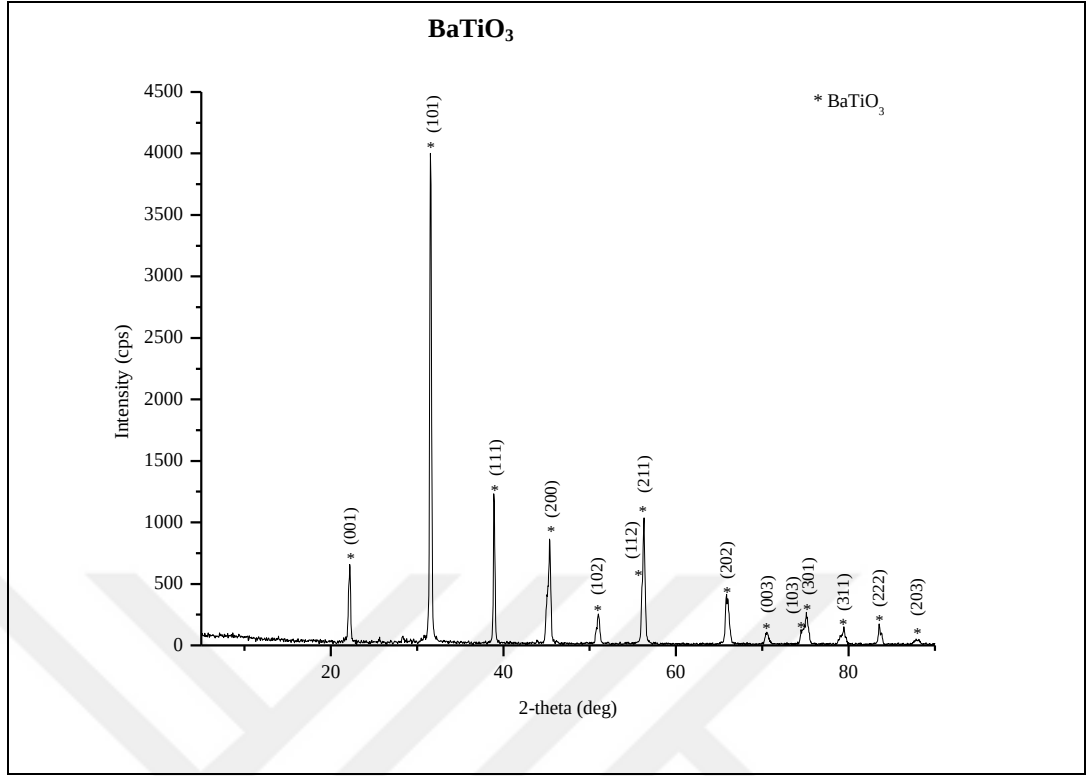
4.2.1. Mangan Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu

Materyal ve yöntem kısmının 3.2.3.1 kısmında anlatıldığı gibi katı hal sentez yöntemi kullanılarak farklı mol oranlarında mangan katkılı baryum titanat ($BaMn_xTi_{1-x}O_3$), stronsiyum titanat ($SrMn_xTi_{1-x}O_3$) ve baryum stronsiyum titanat ($Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_xTi_{1-x}O_3$) üretilmiştir.

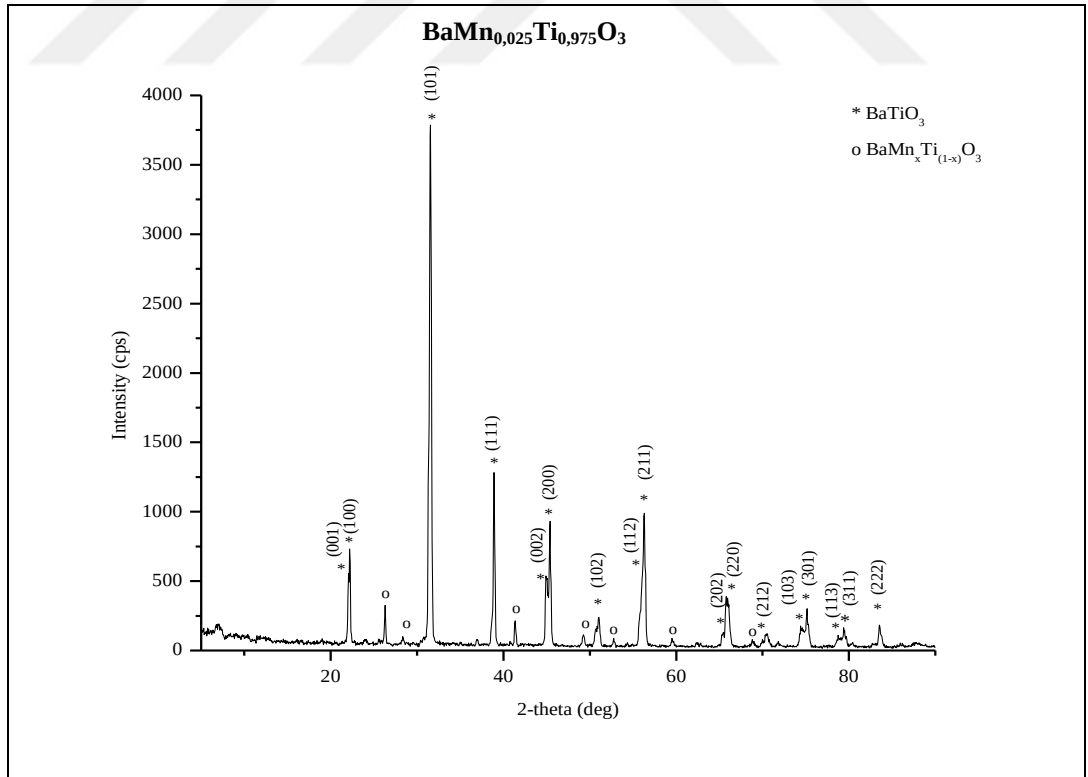
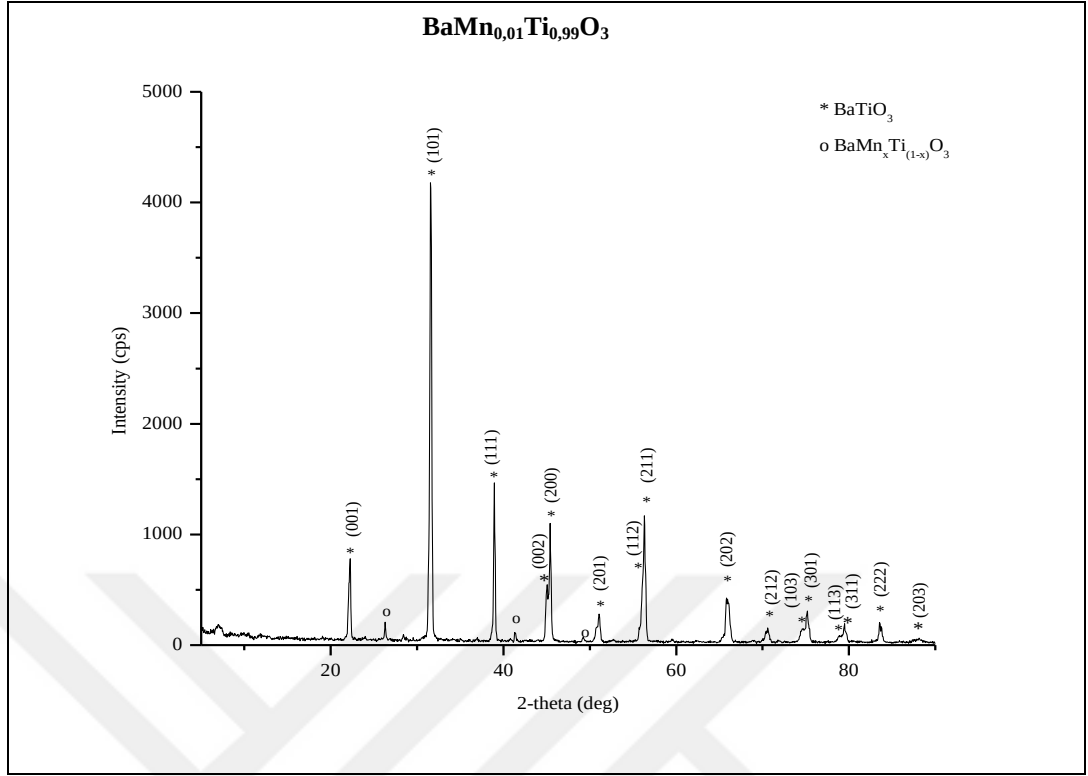
Mn^{3+} ($r = 72$ pm) iyonunun yarıçapı $BaTiO_3$ Ba^{2+} ($r = 149$ pm), $SrTiO_3$ Sr^{2+} ($r = 132$ pm), $Ba/SrTiO_3$ seramiklerindeki Ti^{3+} ($r = 81$ pm) iyonunun yarıçapına yakın olduğundan dolayı kristal yapıda titanyum iyonunun yerine geçeceği öngörülmüştür (Shihua ve ark., 2012).

Elde edilen yapılarda katkı miktarındaki artışa bağlı olarak seramik yapıların kristal yapı fazlarında değişim olduğu gözlenmiştir. Bu değişime bağlı olarak piklerde kaymalar, şiddet değerlerinde değişimler ve örgü parametrelerinde farklılıklar olduğu tespit edilmiştir. Piklerde meydana gelen bu değişimler katkılama sonucunda titanyum atomunun mangan atomunun yerine geçerek $BaTiO_3$; $SrTiO_3$; $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ yapılarına yerleşebildiğini ve yeni kristal yapıların oluştuğunu göstermektedir.

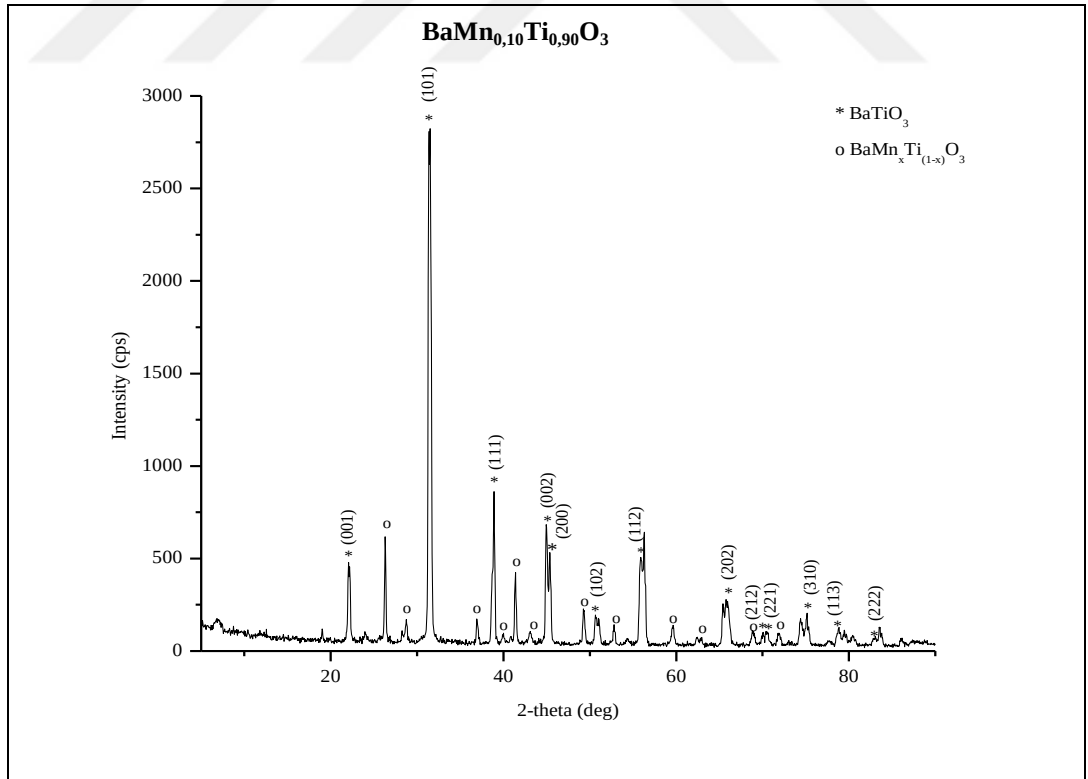
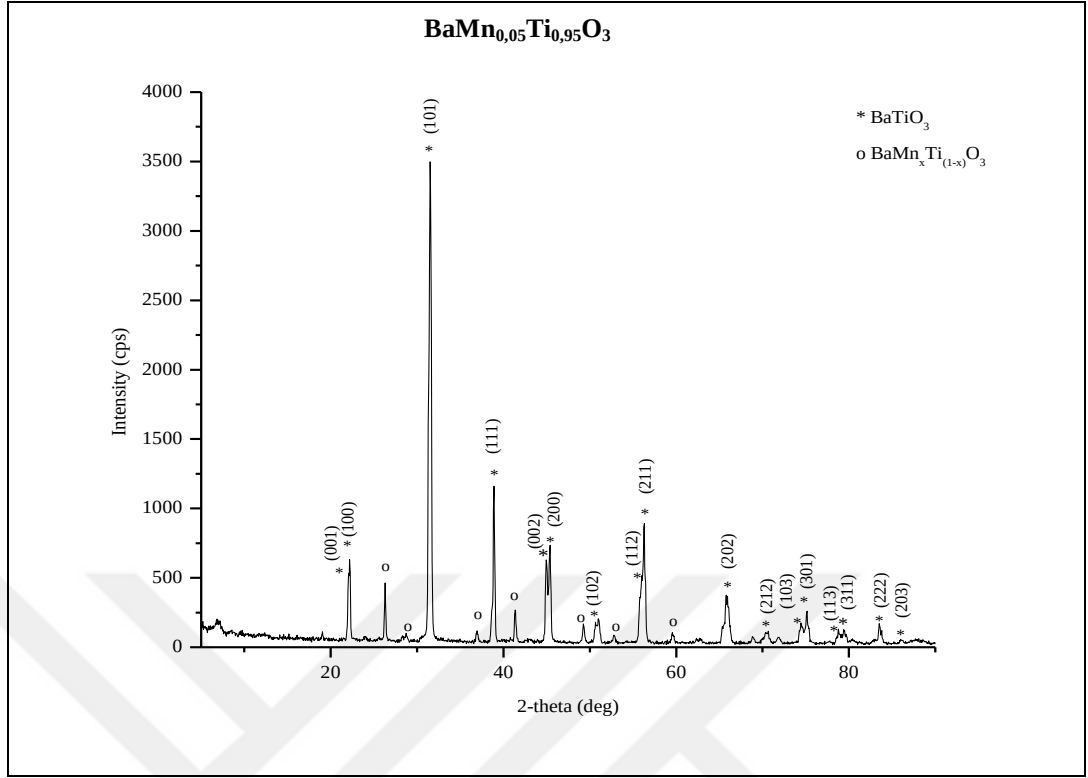
- **Mangan katkılı baryum titanatın katı hal sentez yöntemiyle elde edilişi:** Katı hal sentez yöntemi ile farklı mol oranlarında $BaMn_xTi_{1-x}O_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,1; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) katkılı seramik tozları bölüm 3.2.3.1’de anlatıldığı gibi sentezlenmiş ve kalsine edilmiştir. Elde edilen seramik tozların ve katkılanan Mn_2O_3 katkı maddesinin $5^\circ \leq 2\theta \leq 90^\circ$ aralığında ki X-ışını kırınım desenleri Şekil 4.20 ve Şekil 4.21’de; SEM görüntüleri ise Şekil 4.22’de verilmiştir.



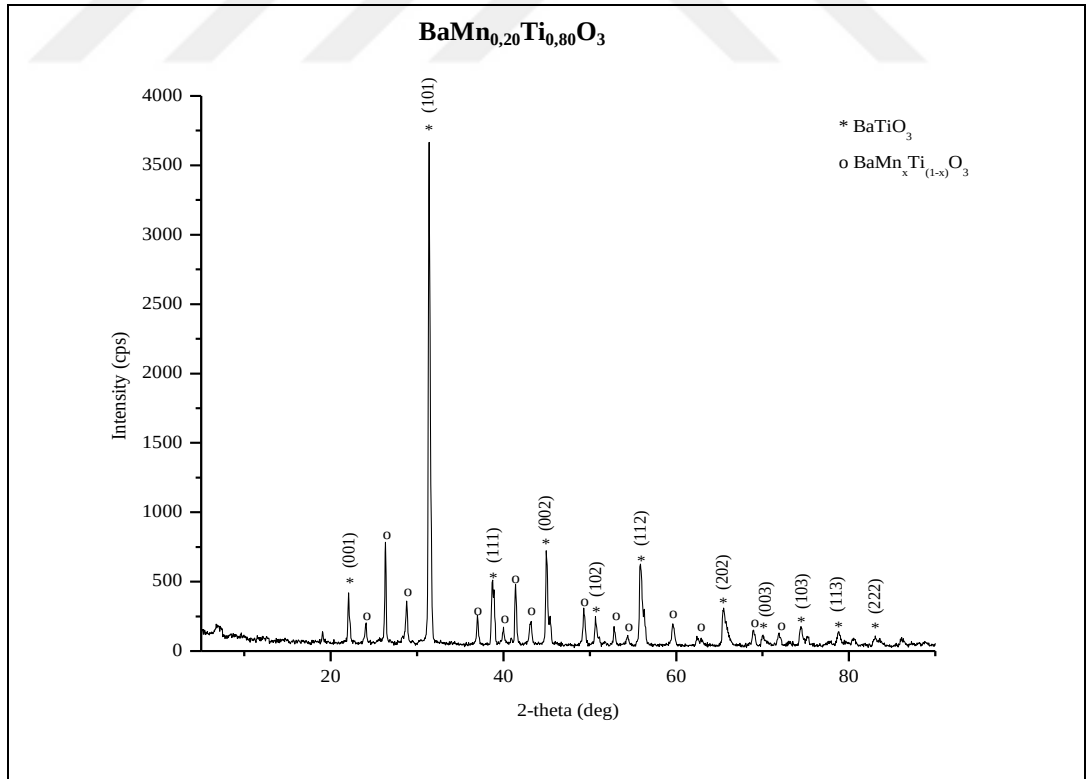
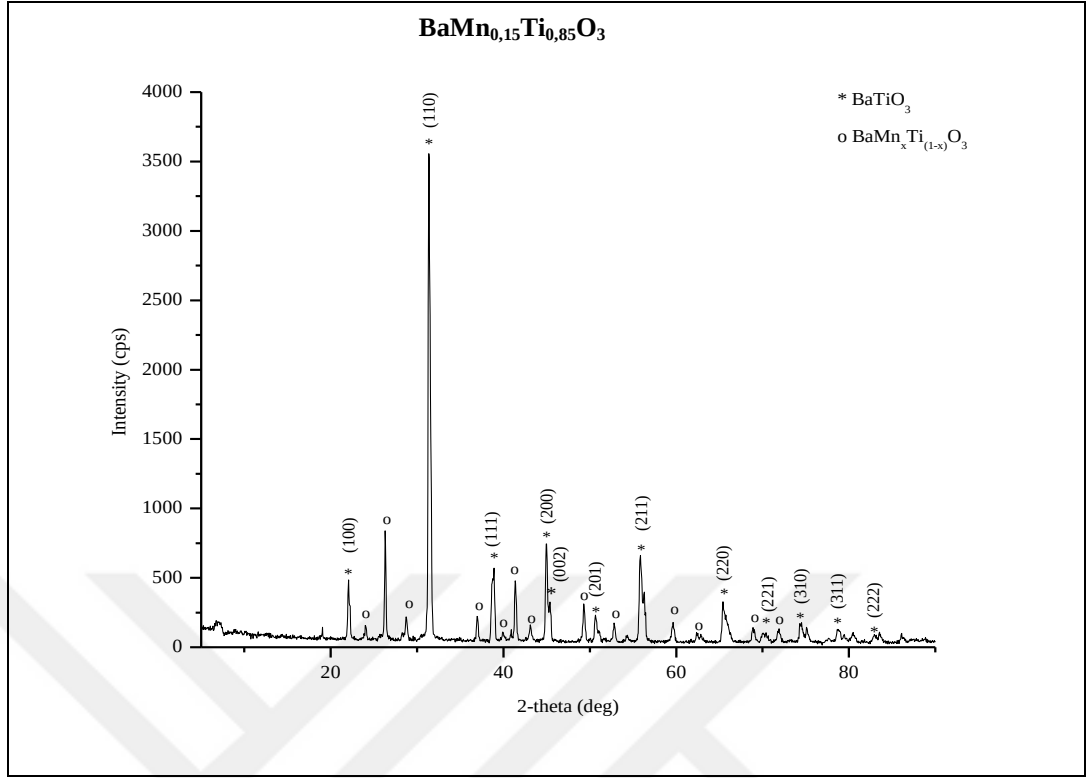
Şekil 4.20. BaMn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılarına ve Mn₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



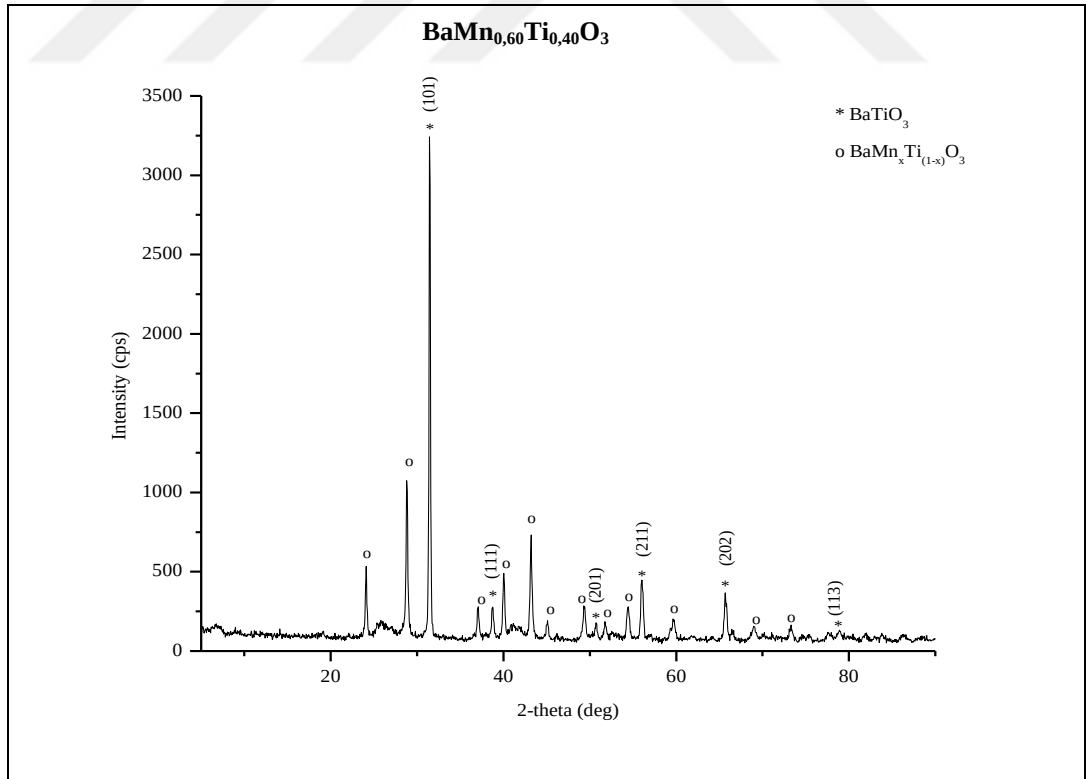
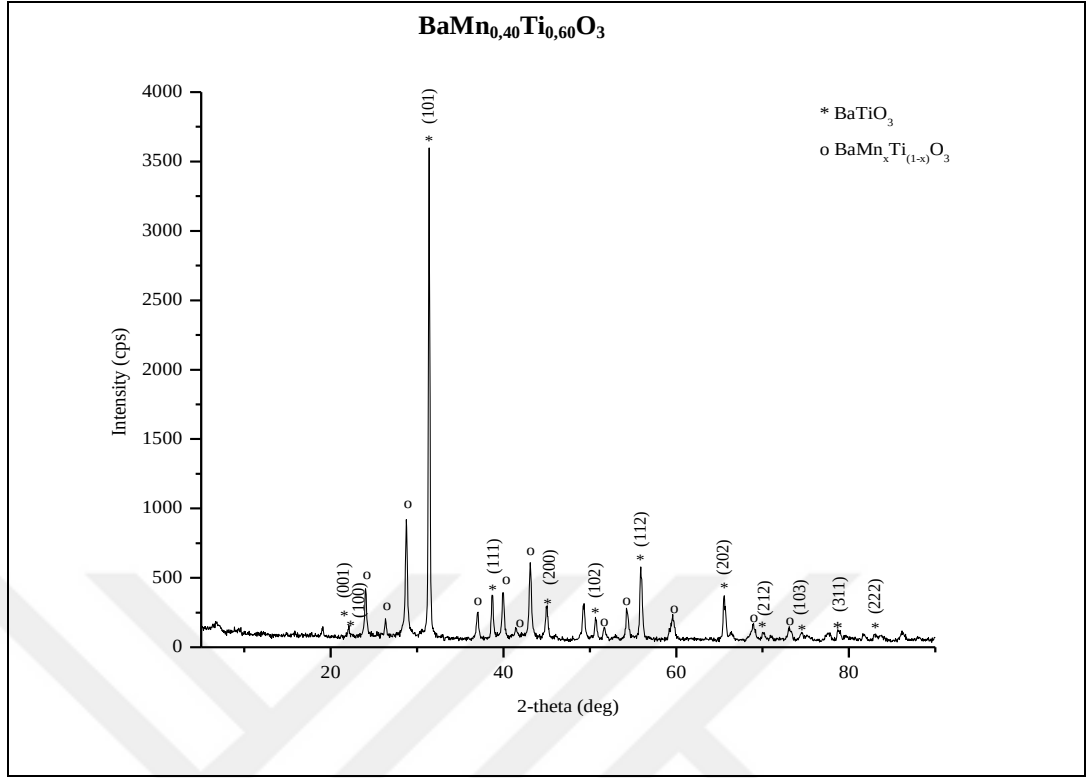
Şekil 4.20. (Devam) BaMn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapıları ve Mn₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



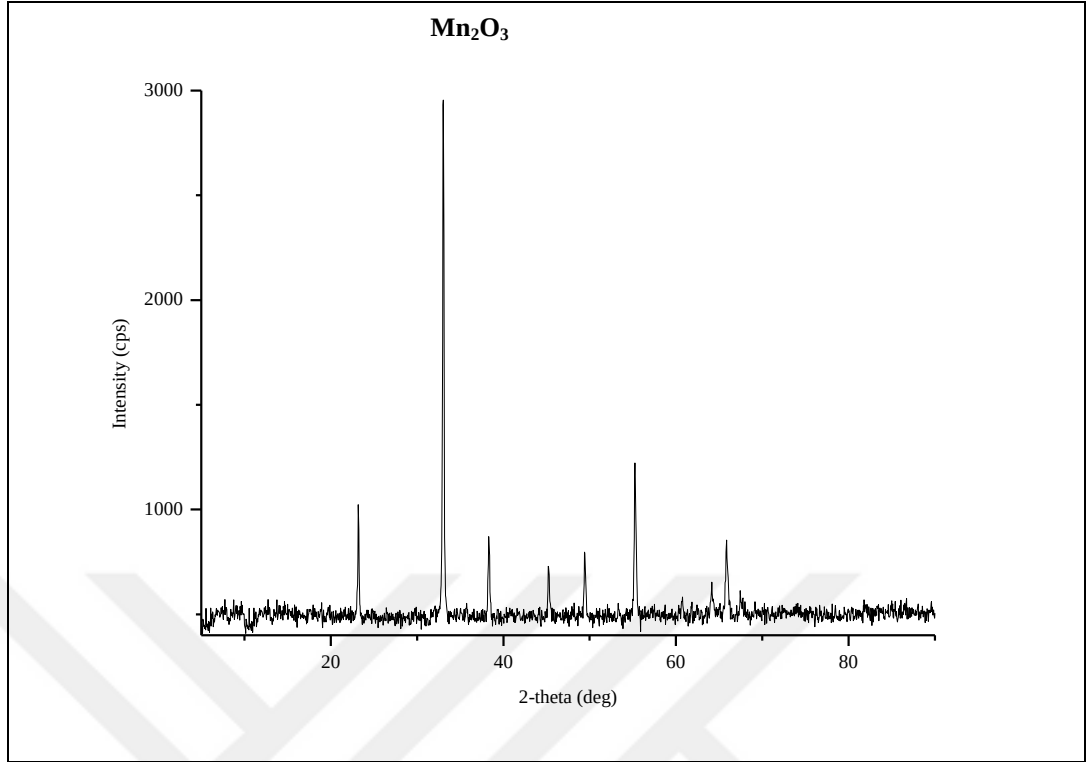
Şekil 4.20. (Devam) BaMn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ve Mn₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



Şekil 4.20. (Devam) BaMn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ve Mn₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



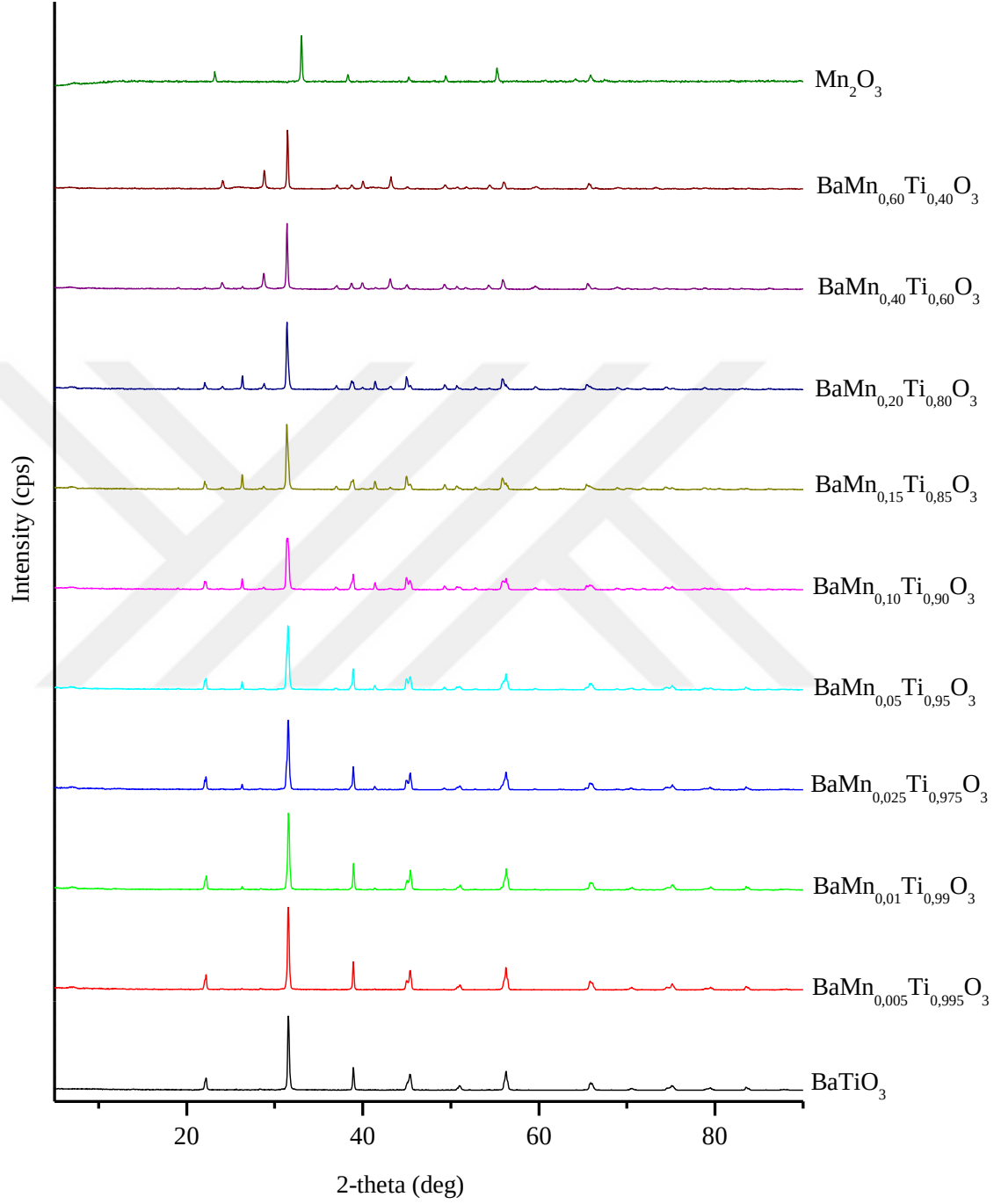
Şekil 4.20. (Devam) BaMn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapıları ve Mn₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



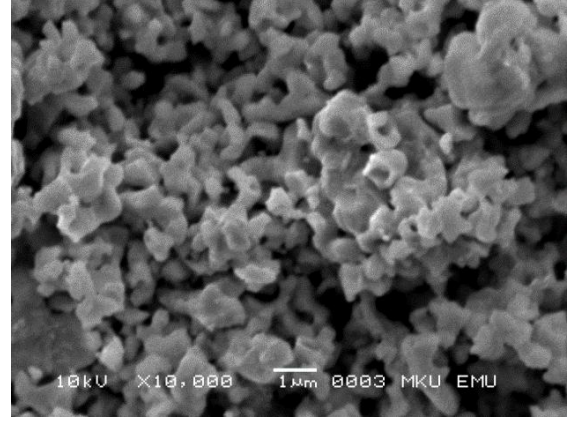
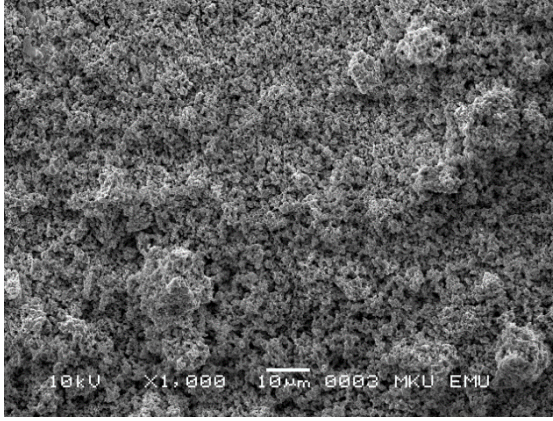
Şekil 4.20. (Devam) $\text{BaMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapıları ve Mn_2O_3 bileşiğine ait XRD diyagramları

Sentezlenen seramik yapıların XRD görüntüleri incelendiğinde; 0,005 mol Mn katkısında yapıda herhangi bir değişim gözlenmemiş, mangana ait piklere rastlanılmamıştır. Mn katkı miktarı 0,01 mol ve üstündeki miktarlarda baryum titanatın yapısında bozulmaların başladığı görülmüştür. Katkısız baryum titanatın XRD deseninde yer alan 22° ; 32° ; 39° ; 57° ; 66° açılı değerlerindeki piklerin şiddeti (yapıya katkılanan mangan miktarının artışıyla) azalmıştır. Aynı şekilde katkısız baryum titanatın XRD deseninde $45,375^\circ$ açılı değerinde yer alan yarık pik manganın katkılama miktarının artmasıyla iki ayrı pike dönüşmüştür. Katkı miktarının artışıyla yeni oluşan yapıya ait piklerin (26° ; 29° ; 37° ; 39° ; 41° ; 49° ; 53° ; 54° ; 59° ...) sayısı ve pik şiddetleri de artmıştır. Katkı miktarının artışıyla piklerde meydana gelen bu değişimler yeni bir kristal yapının oluşmaya başladığını göstermektedir.

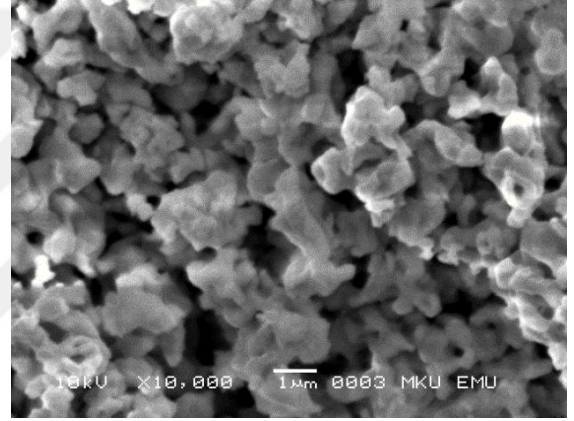
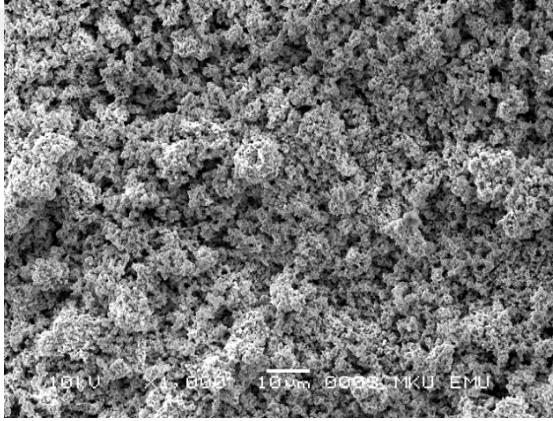
Literatüre bakıldığında Liu ve ark. yapmış olduğu benzer bir çalışmada baryum titanat seramiğine farklı mol oranlarında vanadyum iyonları katkılanmış ve % 1 mol ve daha yüksek vanadyum katkısında yeni oluşan yapıya ait piklerin varlığı XRD kırınım desenleri incelendiğinde tespit edilmiştir (Liu ve ark., 2007).



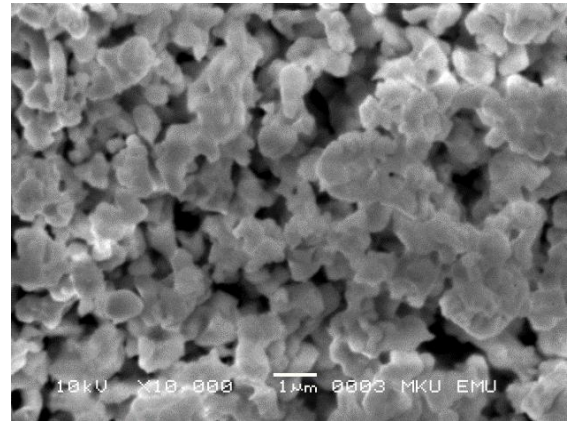
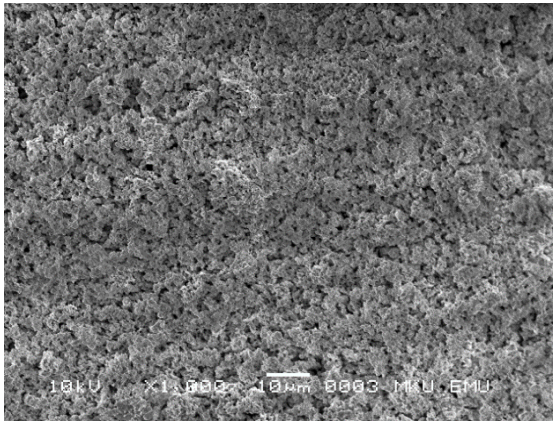
Şekil 4.21. $\text{BaMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapıları ve Mn_2O_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı



$\text{BaMn}_{0,005}\text{Ti}_{0,995}\text{O}_3$

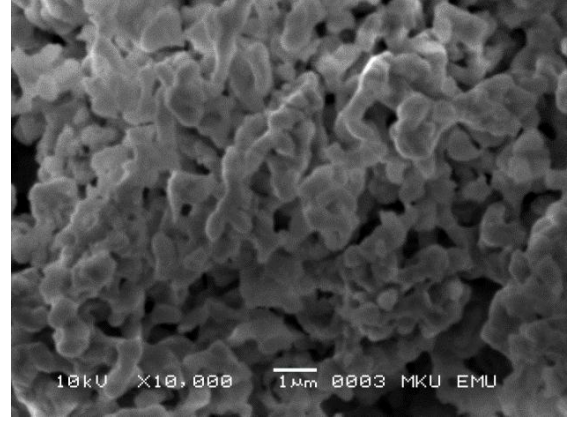
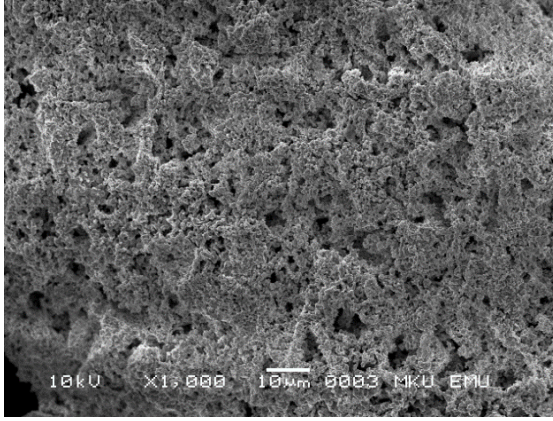


$\text{BaMn}_{0,01}\text{Ti}_{0,99}\text{O}_3$

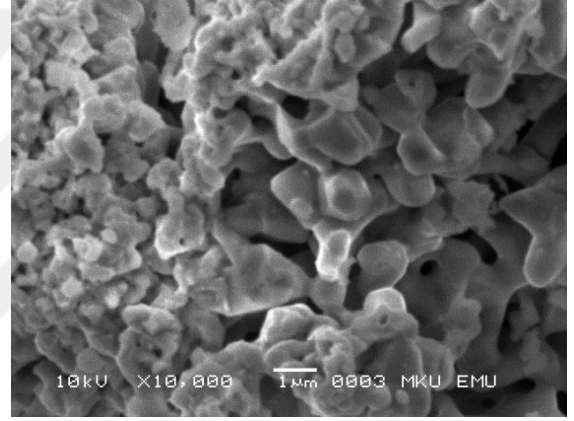
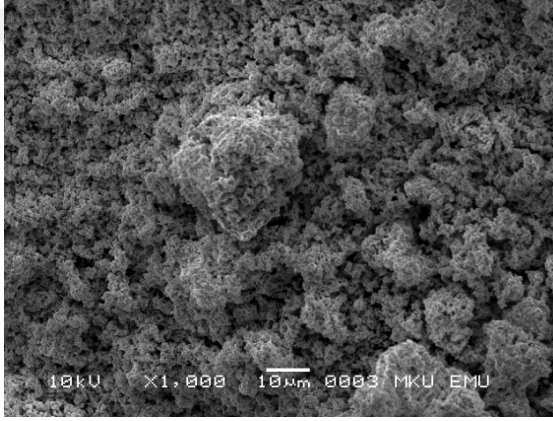


$\text{BaMn}_{0,025}\text{Ti}_{0,975}\text{O}_3$

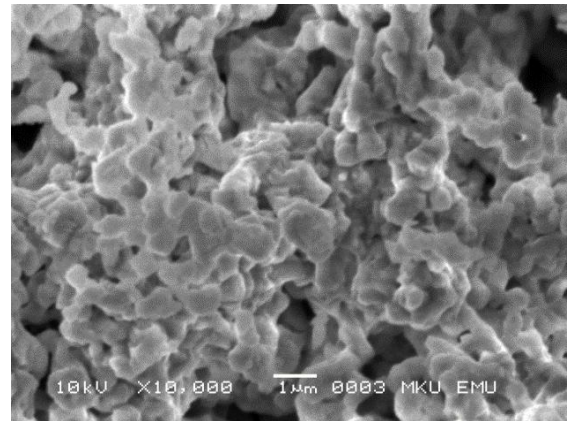
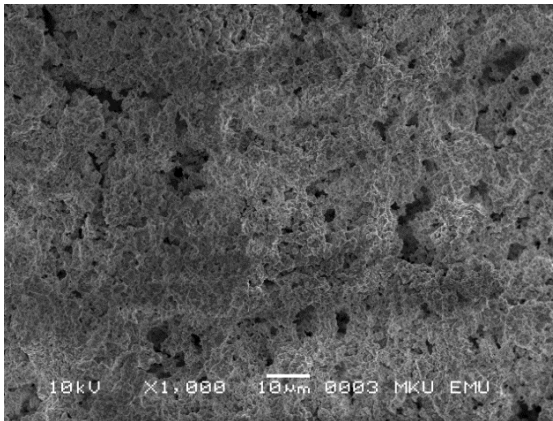
Şekil 4.22. $\text{BaMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



$\text{BaMn}_{0,05}\text{Ti}_{0,95}\text{O}_3$

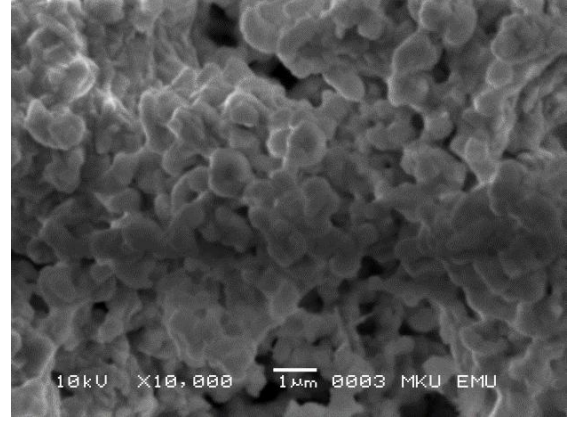
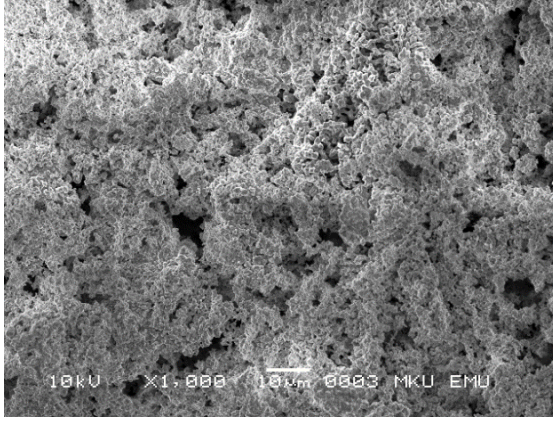


$\text{BaMn}_{0,1}\text{Ti}_{0,9}\text{O}_3$

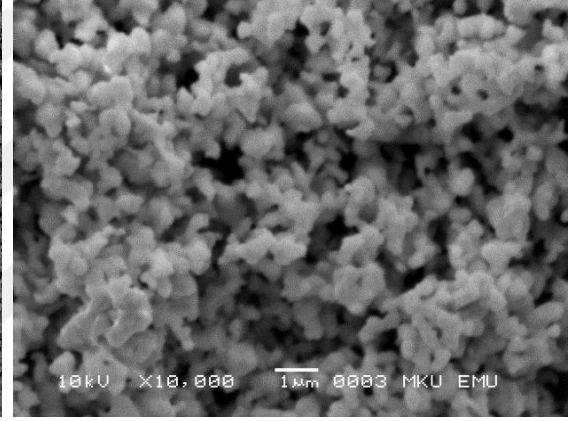
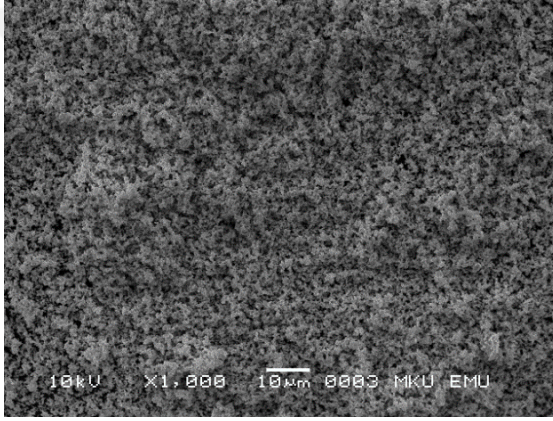


$\text{BaMn}_{0,15}\text{Ti}_{0,85}\text{O}_3$

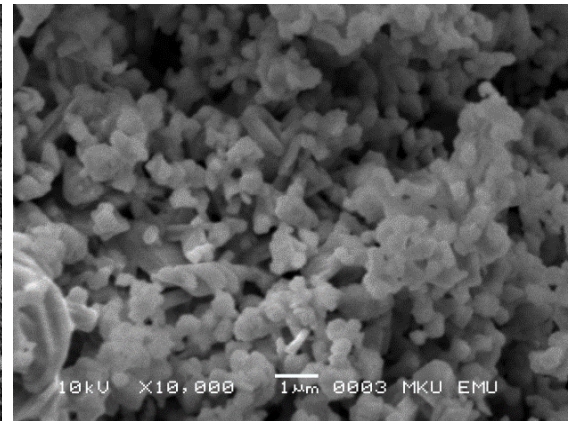
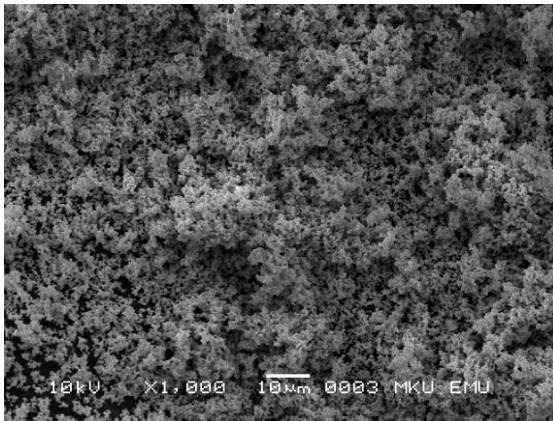
Şekil 4.22. (Devam) $\text{BaMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



$\text{BaMn}_{0,2}\text{Ti}_{0,8}\text{O}_3$

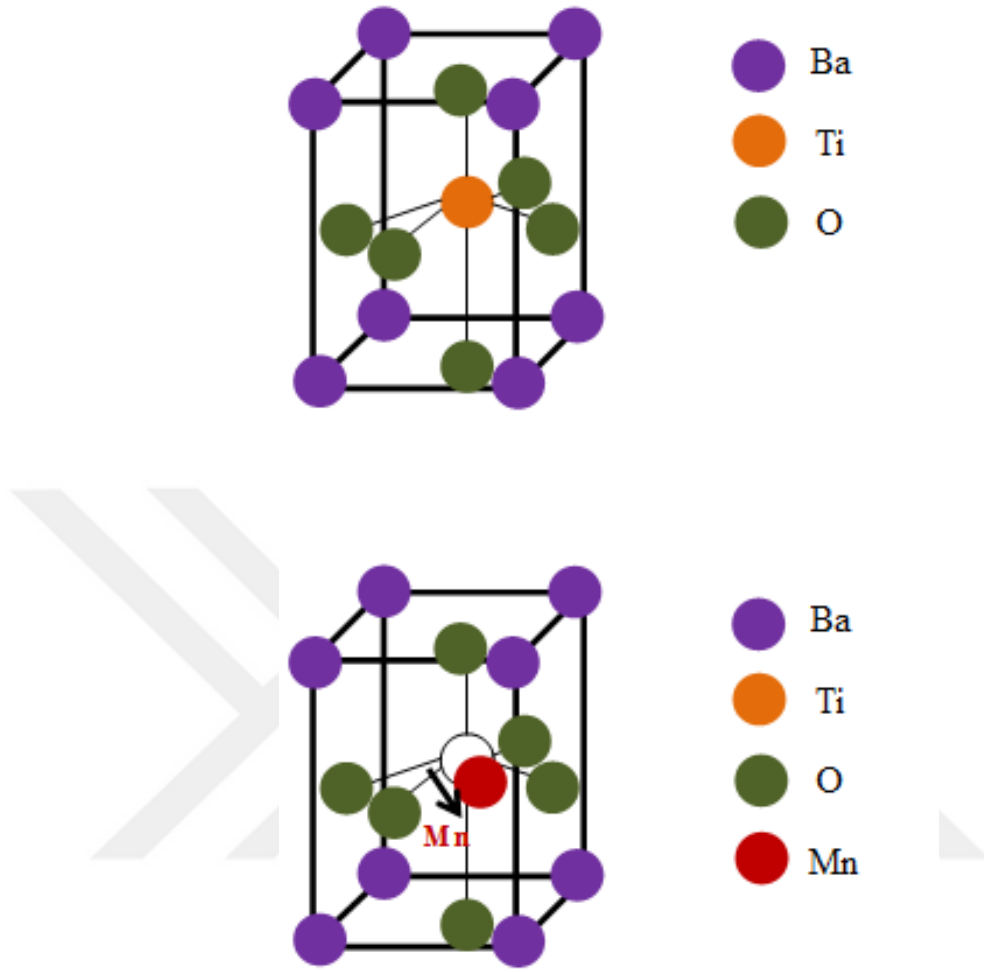


$\text{BaMn}_{0,4}\text{Ti}_{0,6}\text{O}_3$



$\text{BaMn}_{0,6}\text{Ti}_{0,4}\text{O}_3$

Şekil 4.22. (Devam) $\text{BaMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



Şekil 4.23. a) Tetragonal kristal yapı (BaTiO_3 seramiği kafes yapısı) b) Mn_2O_3 katkılı BaTiO_3 seramiğinde Mn iyonu ile Ti iyonunun yer değişimi

Katı hal sentez yöntemiyle farklı mol oranlarında üretilen $\text{BaMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ yapılarda Mn katkı miktarına bağlı olarak var olan yapı bozularak yeni fazlar meydana gelmiştir. Düşük mol oranlarında mangan katkısıyla elde edilen seramik yapıların ($\text{BaMn}_{0,005}\text{Ti}_{0,995}\text{O}_3$, $\text{BaMn}_{0,01}\text{Ti}_{0,99}\text{O}_3$, $\text{BaMn}_{0,025}\text{Ti}_{0,975}\text{O}_3$, $\text{BaMn}_{0,05}\text{Ti}_{0,95}\text{O}_3$) XRD kırınım desenleri ve SEM görüntüleri incelendiğinde yapıyı oluşturan taneciklerin yönelimlerinin değiştiği fakat baryum titanatın kristal yapısını (tetragonal yapı) tam olarak bozacak kadar etki etmediği görülmüştür. Katkı miktarının artışıyla elde edilen seramik yapıların ($\text{BaMn}_{0,1}\text{Ti}_{0,9}\text{O}_3$, $\text{BaMn}_{0,15}\text{Ti}_{0,85}\text{O}_3$, $\text{BaMn}_{0,2}\text{Ti}_{0,8}\text{O}_3$, $\text{BaMn}_{0,6}\text{Ti}_{0,4}\text{O}_3$) kristal yapı fazlarının hekzagonalliğe doğru kaydığı tespit edilmiştir. Baryum titanata

0,40 mol mangan katkılıandığında ise baryum titanatın kristal yapısının bozularak manganın kristal yapısı olan kübik yapıya dönüştüğü görülmüştür.

Literatüre bakıldığında Yue ve arkadaşları $Ba_{0,77}Ca_{0,23}TiO_3$ yapısına % 1 mol oranında mangan katkılıyarak ($Ba_{0,77}Ca_{0,23}Ti_{0,99}Mn_{0,01}O_3$) elde ettikleri yeni bileşiğin tetragonal kristal yapıya sahip olduğunu belirtmişlerdir. $Ba_{0,77}Ca_{0,23}TiO_3$ bileşiğinin kristal yapısının mangan katkısıyla değişmediği görülmüştür (Yue ve ark., 2014).

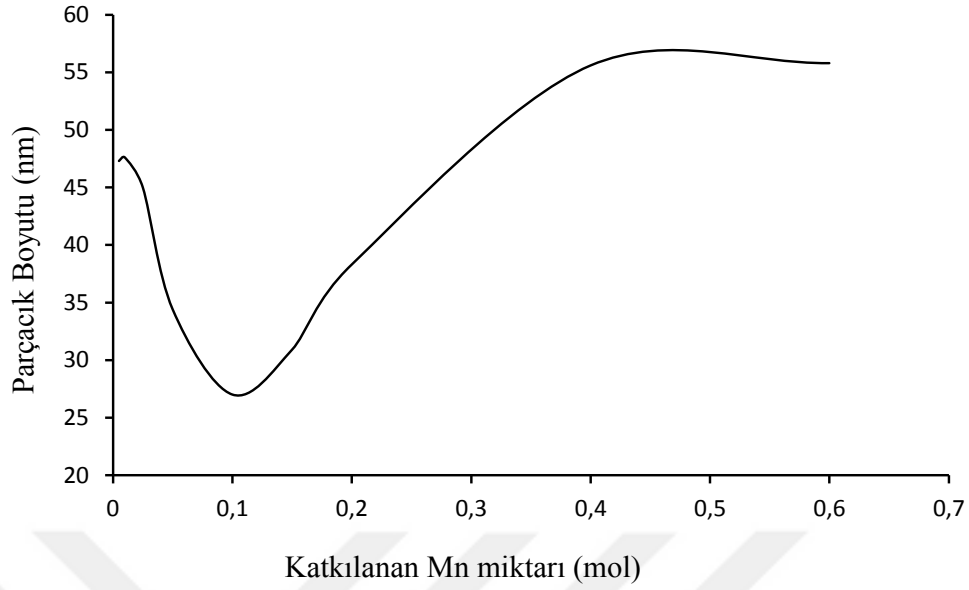
Farklı mol oranlarına Mn katkılanan $BaTiO_3$ seramiklerinin her bir katkılama sonucunda elde edilen yapılarının XRD kırınım desenlerinden yararlanılarak ortalama tanecik boyutları Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ve Çizelge 4.1’de verilmiştir.

$$D = \frac{0,9 \lambda}{\beta \cos \theta} \quad \lambda = 1,5400 \text{Å} \quad (4.2)$$

Çizelge 4.1. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları

Örnek	Ortalama Tanecik Boyutu (nm)
$BaMn_{0,005}Ti_{0,995}O_3$	47,3
$BaMn_{0,01}Ti_{0,99}O_3$	47,6
$BaMn_{0,025}Ti_{0,975}O_3$	45,0
$BaMn_{0,05}Ti_{0,95}O_3$	34,4
$BaMn_{0,1}Ti_{0,9}O_3$	27,0
$BaMn_{0,15}Ti_{0,85}O_3$	30,9
$BaMn_{0,20}Ti_{0,80}O_3$	38,3
$BaMn_{0,40}Ti_{0,60}O_3$	55,6
$BaMn_{0,60}Ti_{0,40}O_3$	55,8

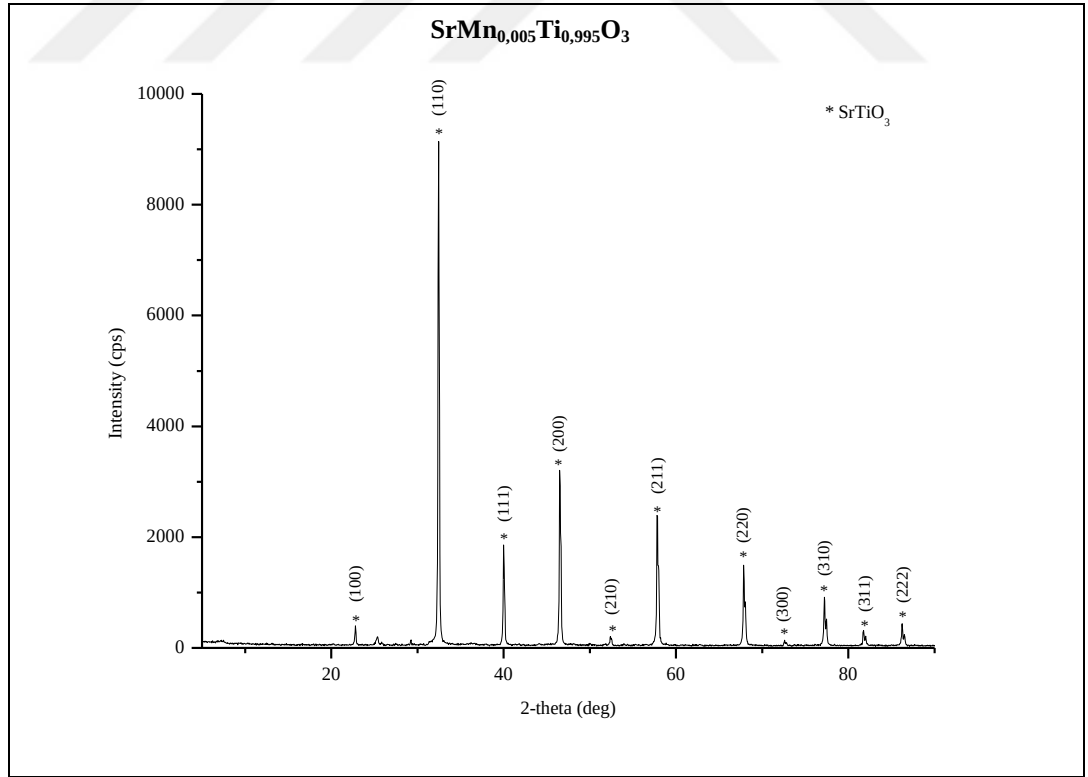
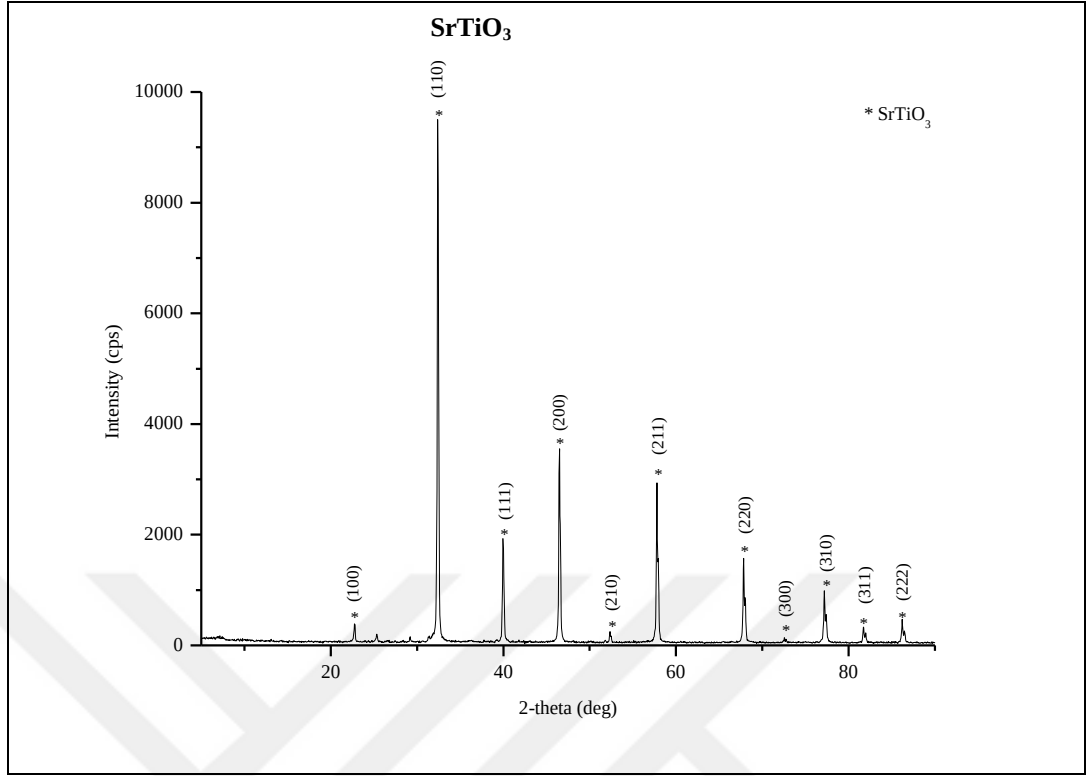
Tablodan görüldüğü gibi parçacık boyutları 27,0 - 55,8 nm aralığında değişen değerler almıştır. Katkılama miktarına bağlı olarak ortalama tanecik boyutundaki değişim Şekil 4.24’deki grafikte gösterilmiştir.



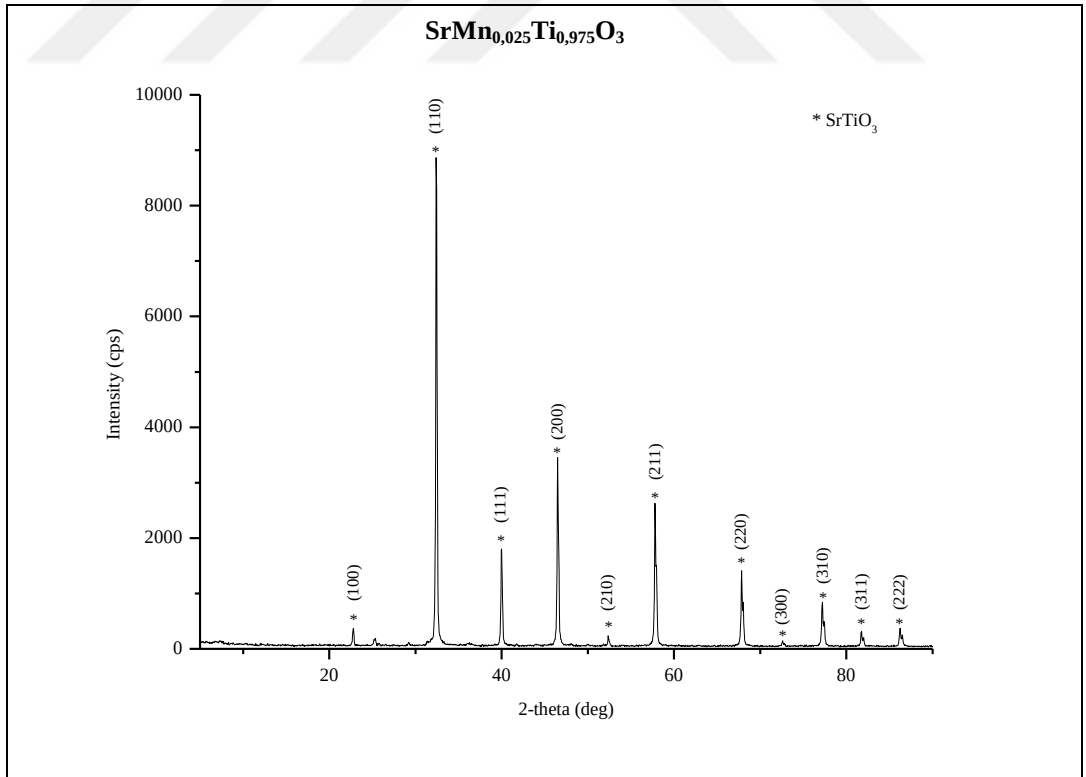
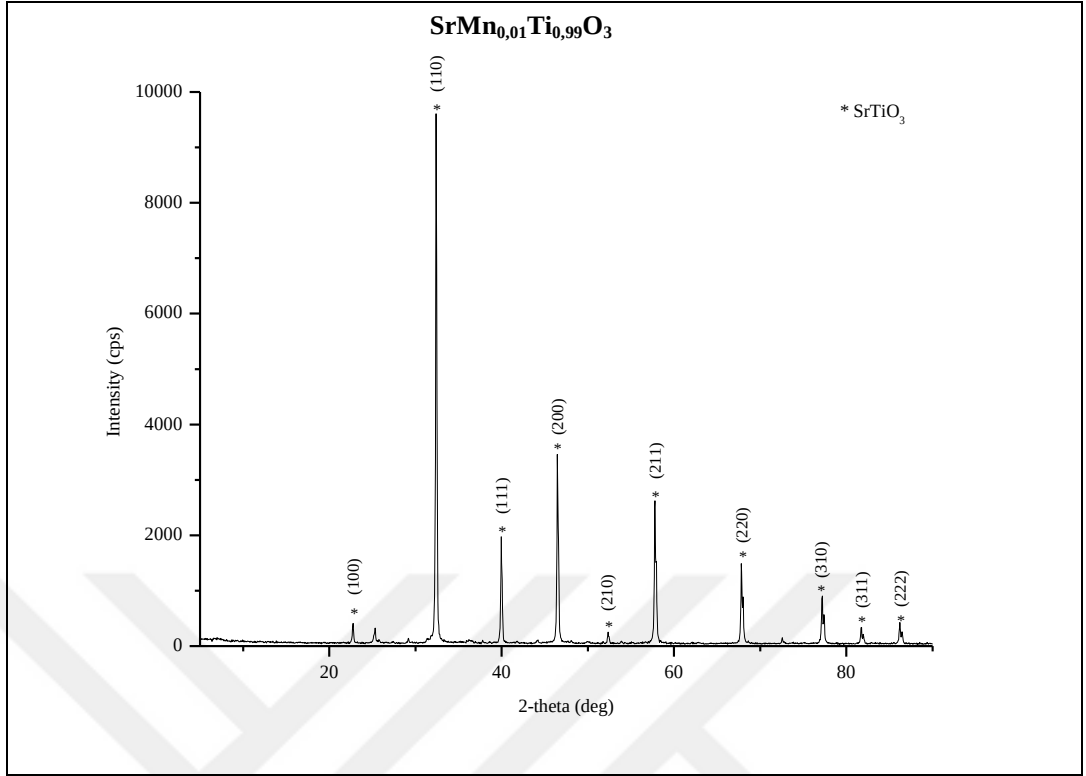
Şekil 4.24. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi

Baryum titanata 0,005 - 0,6 mol oranında mangan iyonunun katkılanmasıyla elde edilen seramik yapılarda mangan iyonlarının baryum titanat yapısındaki titanyum iyonlarıyla yer değiştirmiştir. Baryum titanatın karakteristik piklerinin mangan katkısıyla şiddetinin azaldığı, yeni oluşan kristal yapıya ait piklerin ortaya çıktığı XRD kırınım desenleri incelenerek belirlenmiştir. Bununla birlikte katkısız baryum titanatın kristal yapısı düşük mol oranlarında mangan katkısıyla değişmezken katkı miktarı artırıldığında hekzagonal yada kübik kristal yapı fazlarının oluştuğu belirlenmiştir. Oluşan kristal yapılara ait taneciklerin ortalama boyutunun 27,0 - 55,8 nm aralığında değerler aldığı Debye Scherrer eşitliği kullanılarak hesaplanmıştır (Liu ve ark., 2007; Yue ve ark., 2014).

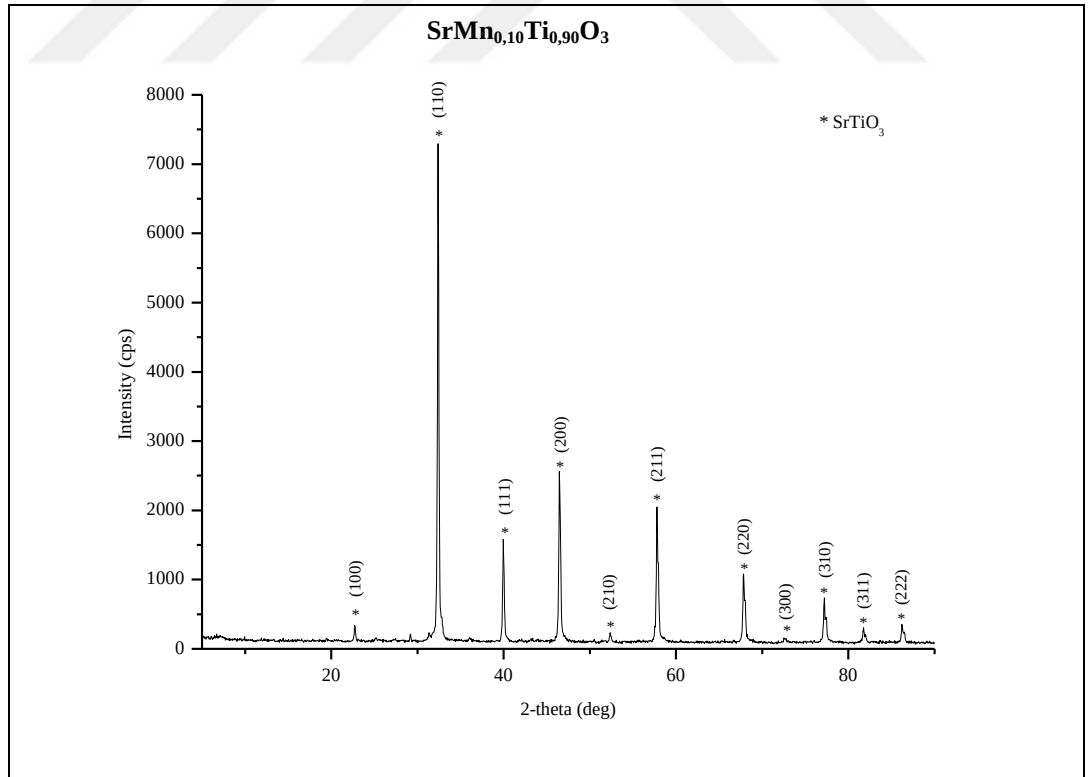
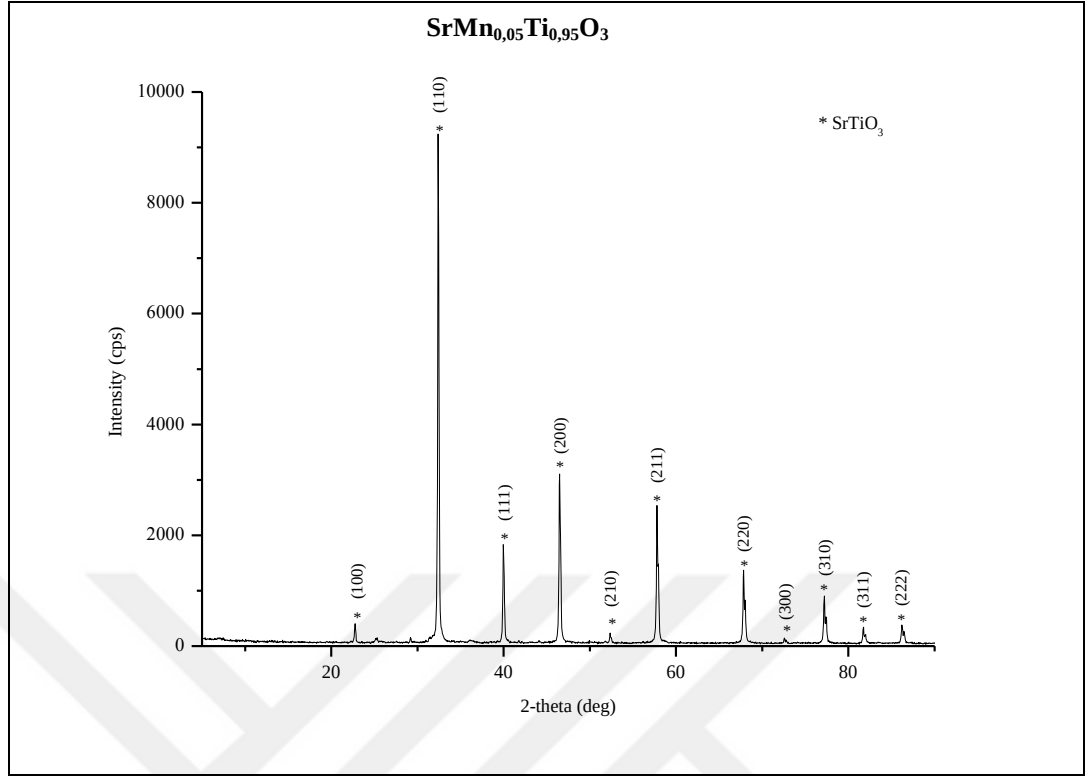
- **Mangan katkılı stronsiyum titanatın katı hal sentez yöntemiyle elde edilişi:** Katı hal sentez yöntemi kullanılarak farklı mol oranlarında $\text{SrMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,1; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) katkılı seramik tozları bölüm 3.2.3.1’de anlatıldığı gibi sentezlenmiş ve kalsine edilmiştir. Katkılı seramik tozların ve katkılanan Mn_2O_3 katkı maddesinin $5^\circ \leq 2\theta \leq 90^\circ$ aralığında ki X-ışını kırınım desenleri Şekil 4.25 ve Şekil 4.26’da; SEM görüntüleri ise Şekil 4.27’de verilmiştir.



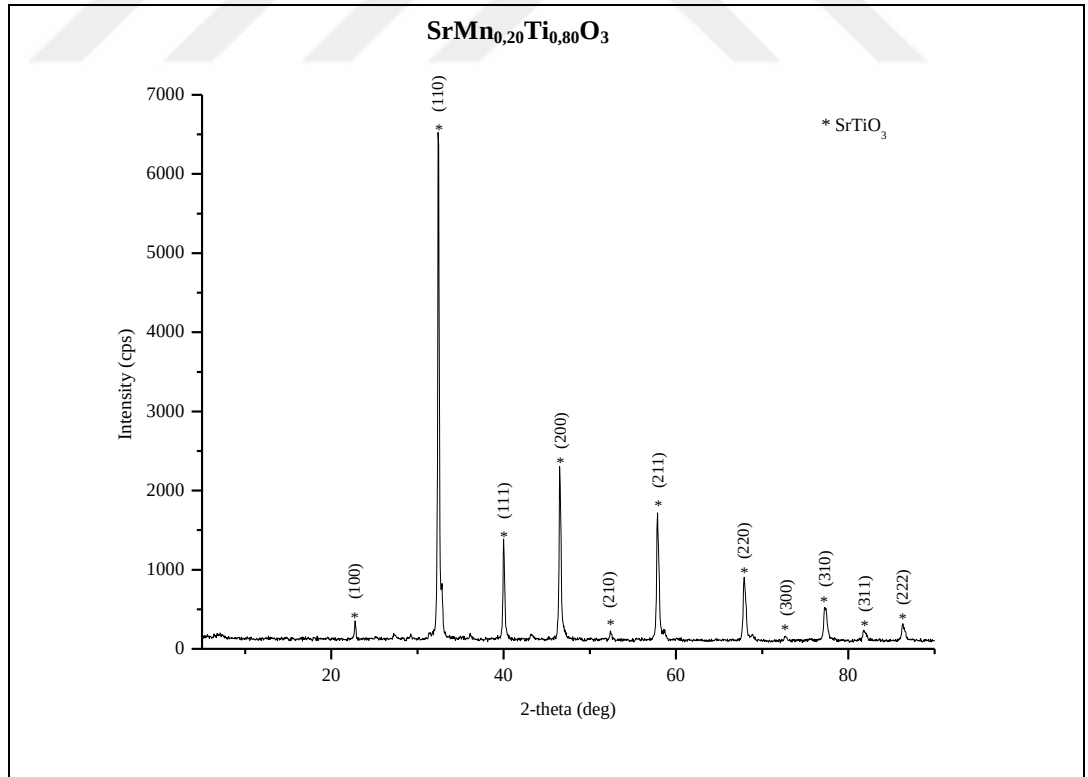
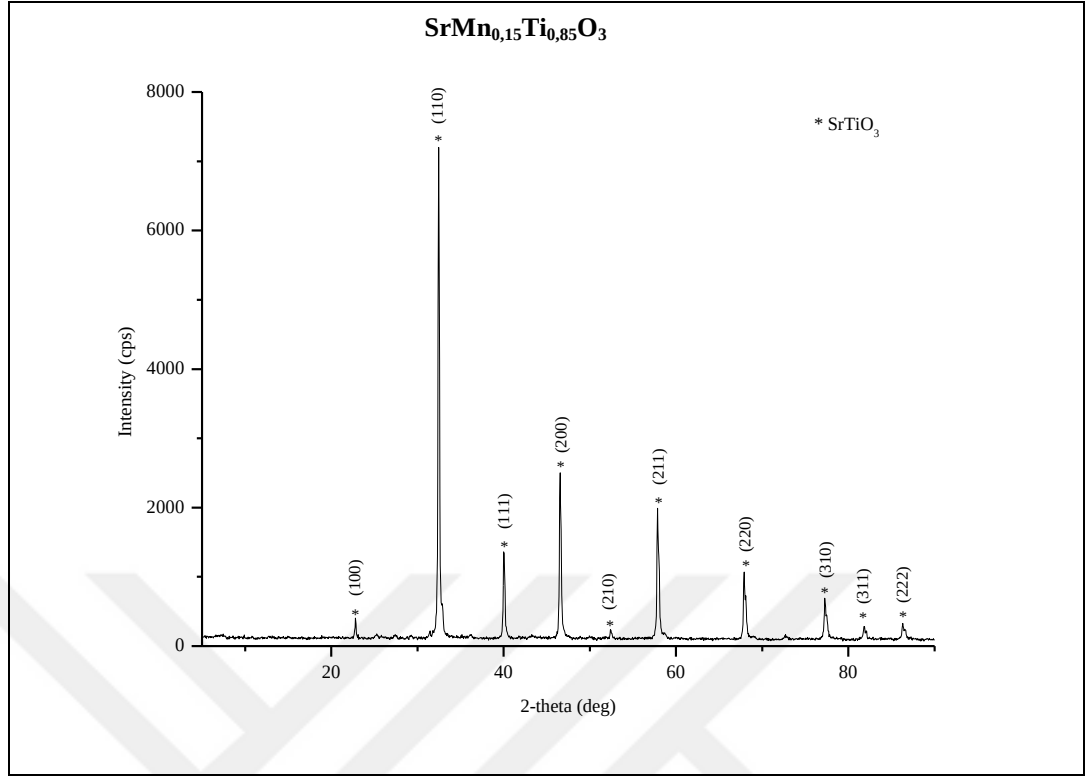
Şekil 4.25. SrMn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılarına ve Mn₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



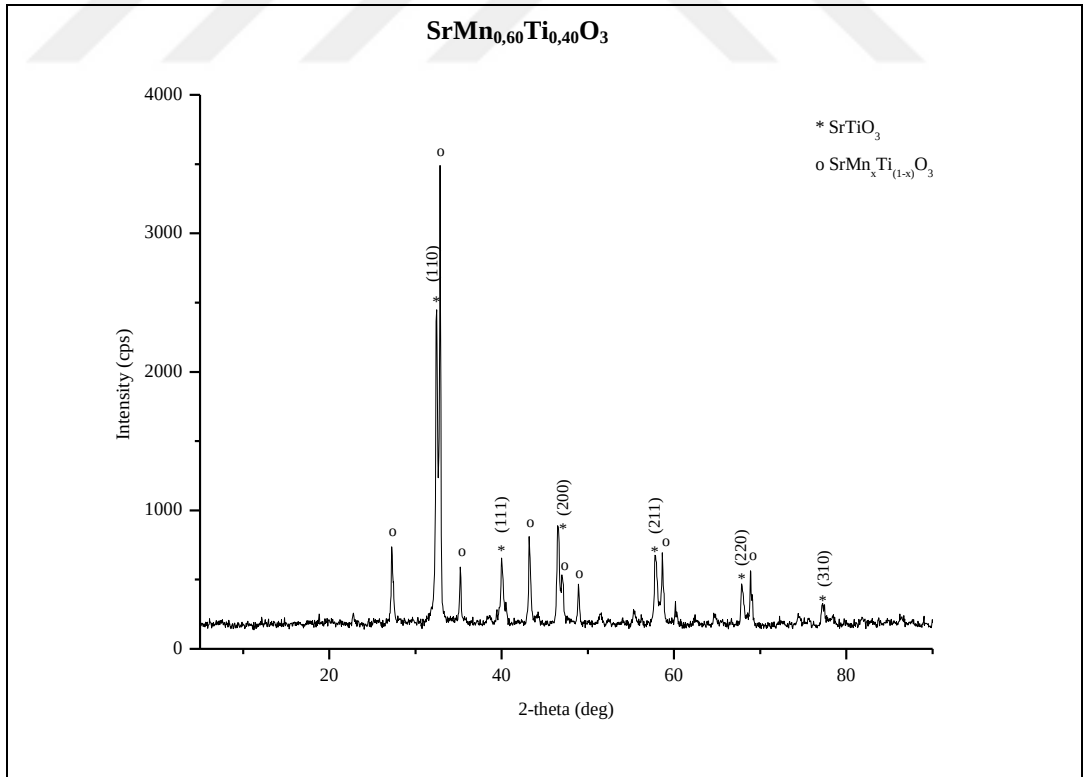
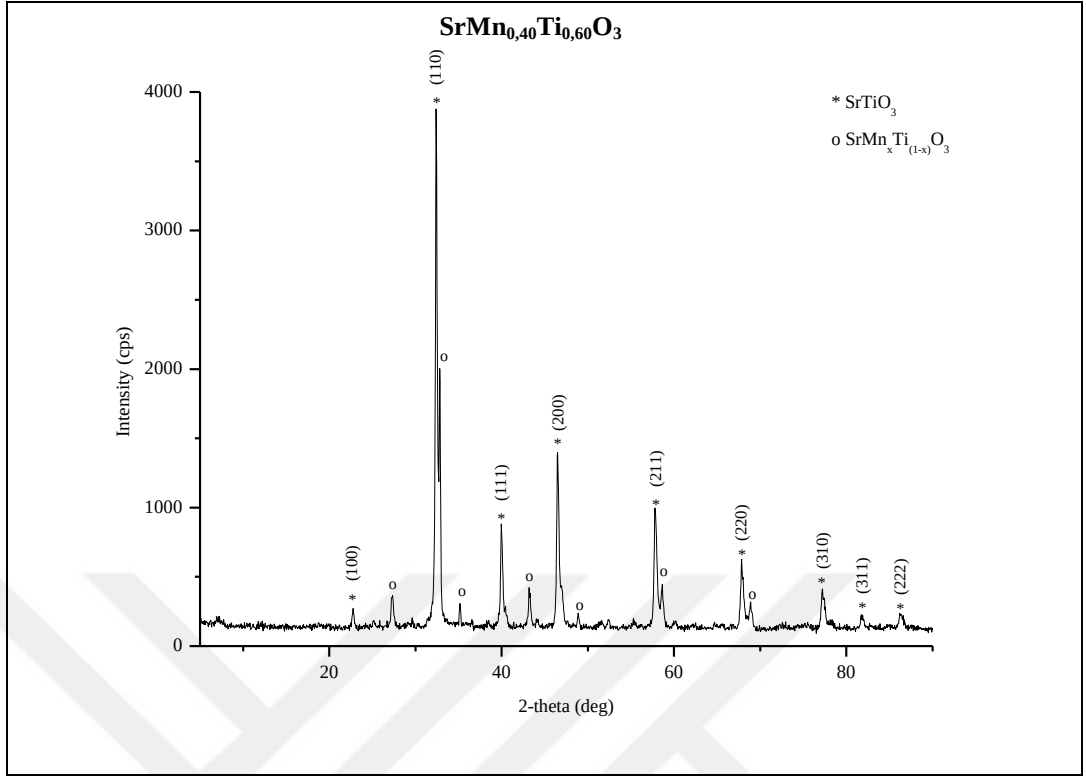
Şekil 4.25. (Devam) SrMn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılarına ve Mn₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



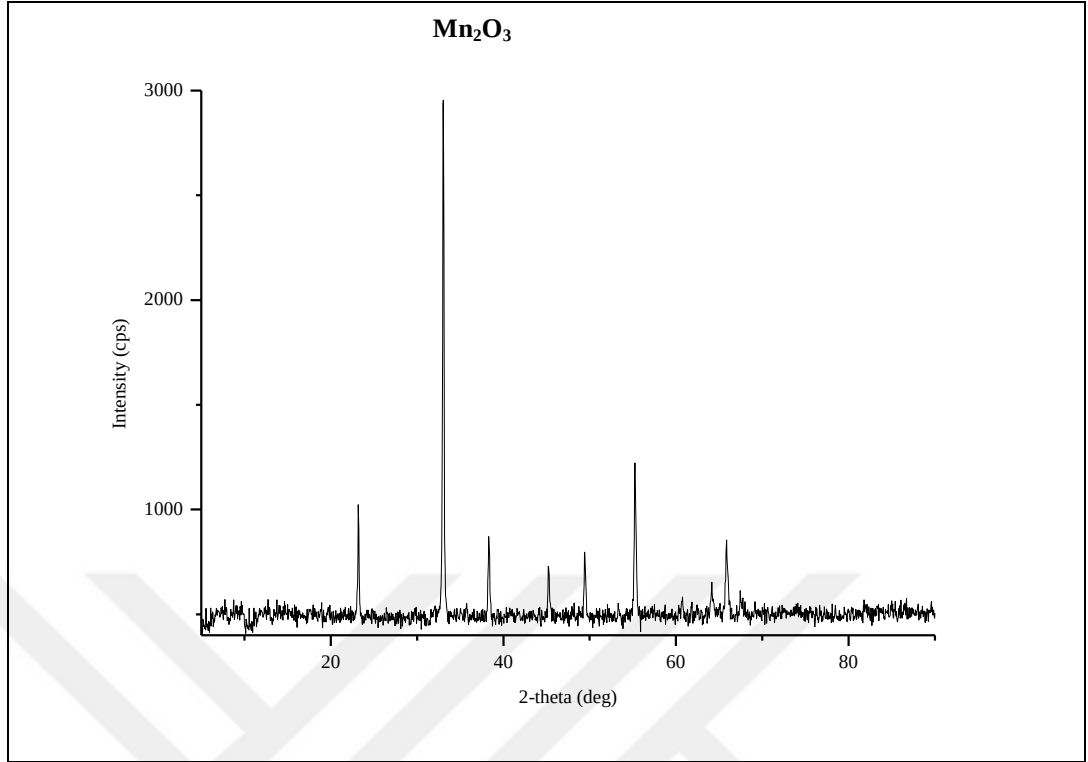
Şekil 4.25. (Devam) SrMn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapıları ve Mn₂O₃ bileşimine ait XRD diyagramları



Şekil 4.25. (Devam) SrMn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ve Mn₂O₃ bileşimine ait XRD diyagramları

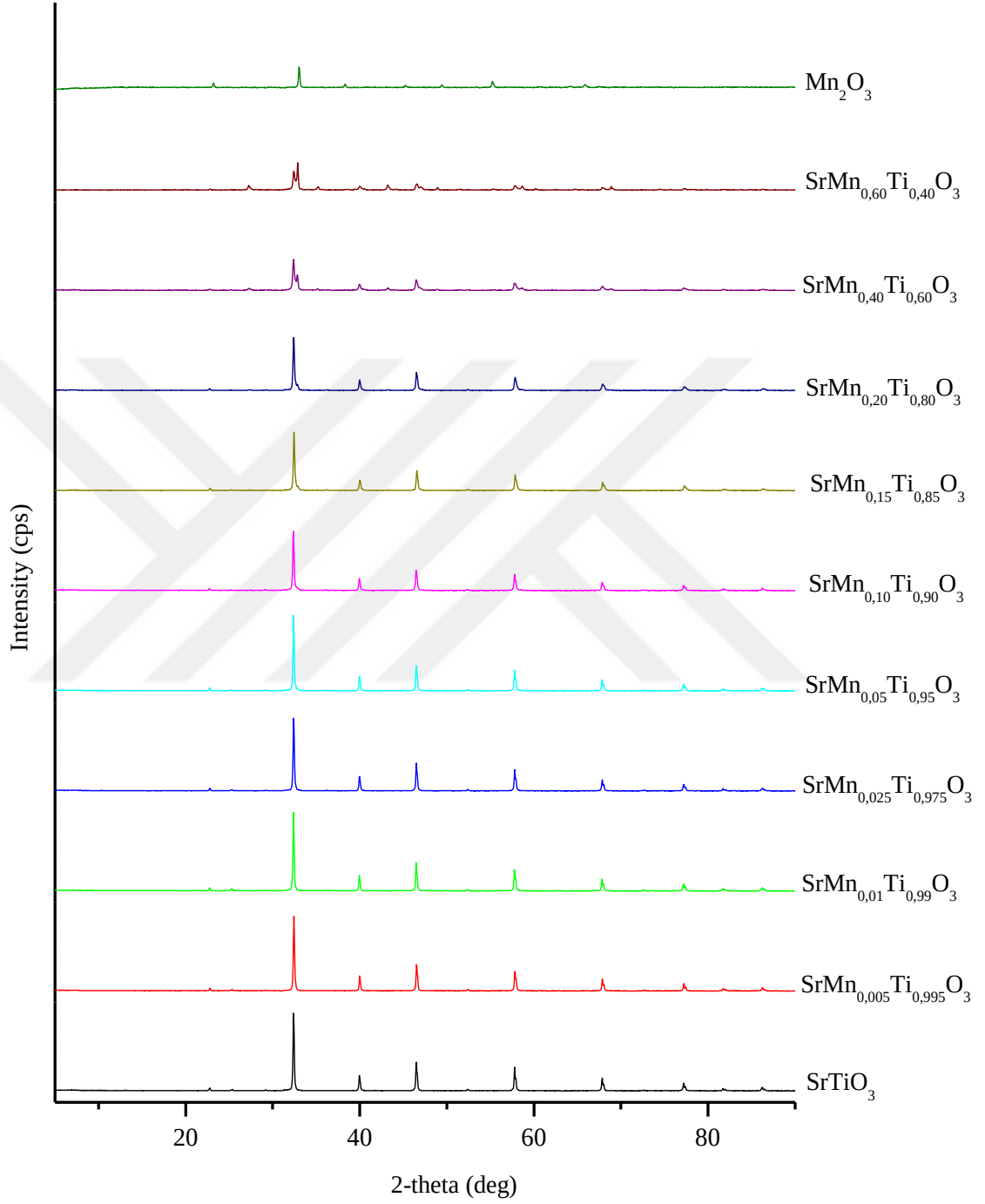


Şekil 4.25. (Devam) SrMn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapıları ve Mn₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



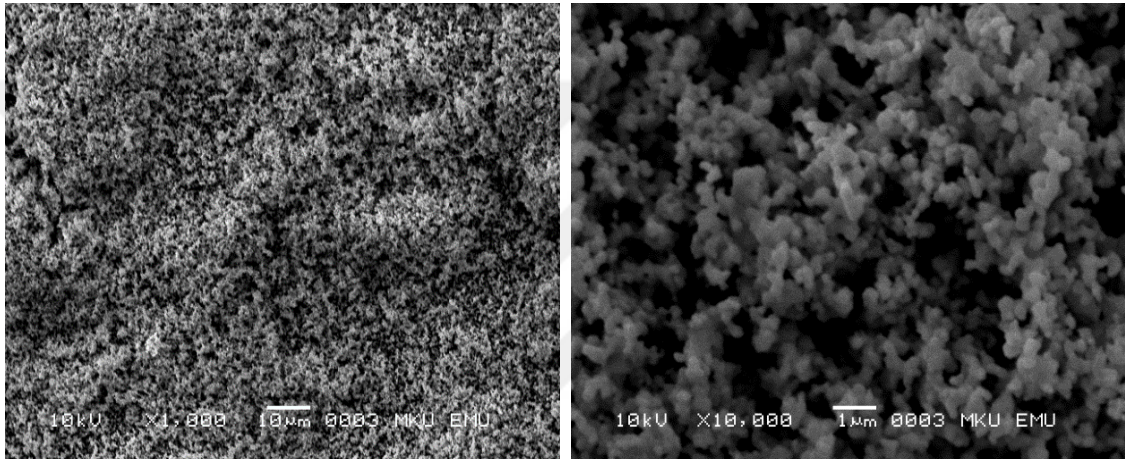
Şekil 4.25. (Devam) $\text{SrMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ve Mn_2O_3 bileşiğine ait XRD diyagramları

Katı hal sentez yöntemiyle sentezlenen seramik yapıların XRD desenleri incelendiğinde; 0,005 mol – 0,05 mol aralığında ki Mn katkısı ile mangan titanyumla yer değiştirerek SrTiO_3 kristal yapısını bozmamış, yapıda herhangi bir deformasyona sebep olmamıştır. XRD deseni incelendiğinde Mn, Mn_2O_3 ve bozunmuş SrTiO_3 yapılarına ait pikler gözlenmemiştir. 0,1 mol Mn stronsiyum titanat yapısına katkılандığında; katkısız stronsiyum titanatın kübik yapısına karşılık gelen en şiddetli pikin (açısal konumu 32° olan (110) düzlemine ait yansıma) şiddetinde azalma olduğu görülmüştür. Katkısız stronsiyum titanatın XRD deseninde yer alan 22° ; 39° ; 52° ; 57° ve 77° açı değerlerindeki piklerin şiddetinde yapıya katkılanan mangan miktarının artışıyla azalma; $46,848^\circ$ ve $67,831^\circ$ açı değerindeki piklerde ise ikiye yarıma meydana gelmiştir. Katkı miktarının artışıyla yeni oluşan kristal yapıya ait piklerin (27° ; 35° ; 43° ; 55° ; 60° ..) sayısı ve pik şiddetleri de artmıştır (Şekil 4.25 (f, g, h, i, j)). Pik sayıları ve şiddetlerindeki artış; piklerde meydana gelen yarılmalar SrTiO_3 yapısının mangan tarafından deforme edildiğini ve yeni bir kristal yapı fazının oluşmaya başladığını göstermektedir.

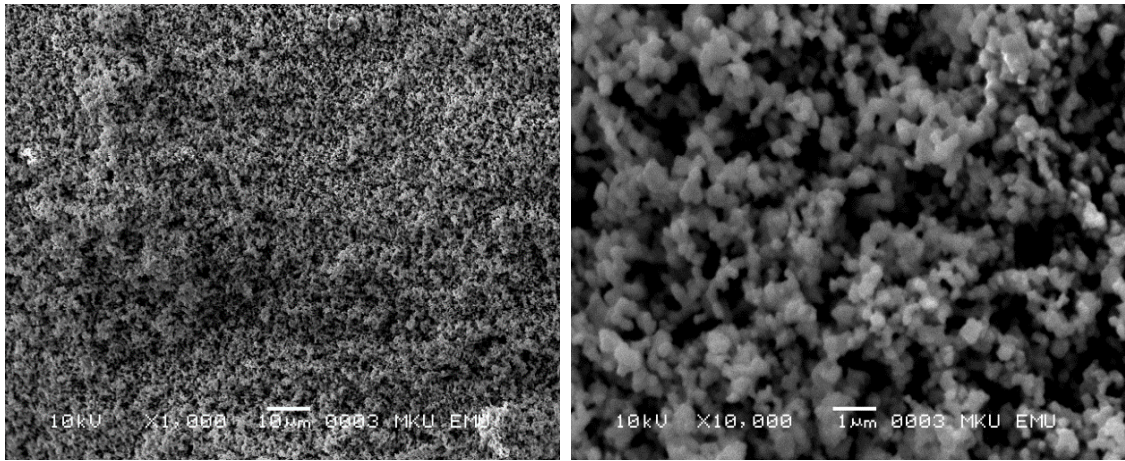


Şekil 4.26. $\text{SrMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapıları ve Mn_2O_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı

Literatüre bakıldığında Wu ve arkadaşları stronsiyum titanata hidrotermal sentez metodunu kullanarak farklı atomik oranlarda (%3-7) mangan iyonunu katkılar ve yeni seramik yapıların X-ışını kırınım deseni analizini yapmışlardır. Elde ettikleri X-ışını kırınım deseni sonuçlarına göre mangana ait karakteristik piklerin yapıda yer almadığını fakat mangan iyonlarının titanyum iyonlarıyla yer değiştirerek yapıya yerleştiğini belirtmişlerdir. Bununla birlikte 32° açı değerindeki pikin mangan katkısının artmasıyla daha yüksek açı değerine doğru kaydığını ifade etmişlerdir (Wu ve ark., 2015).

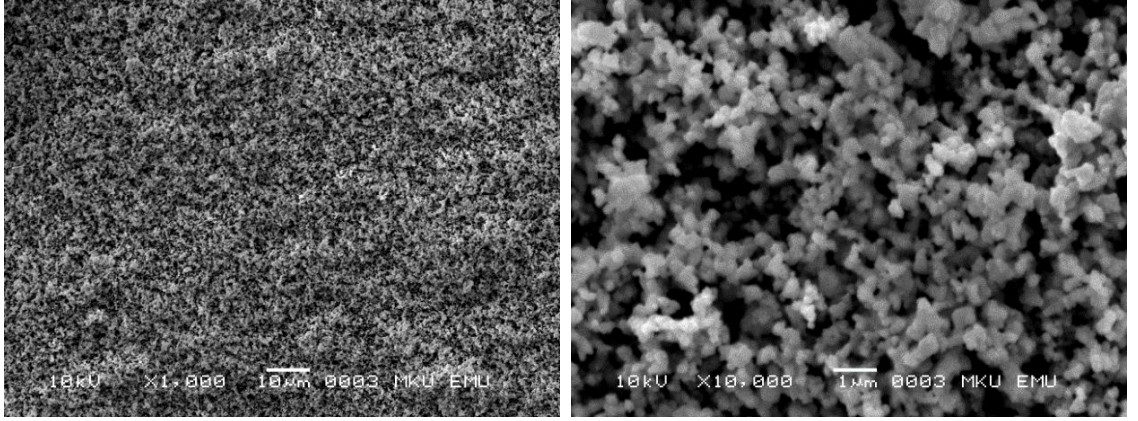


$\text{SrMn}_{0,005}\text{Ti}_{0,995}\text{O}_3$

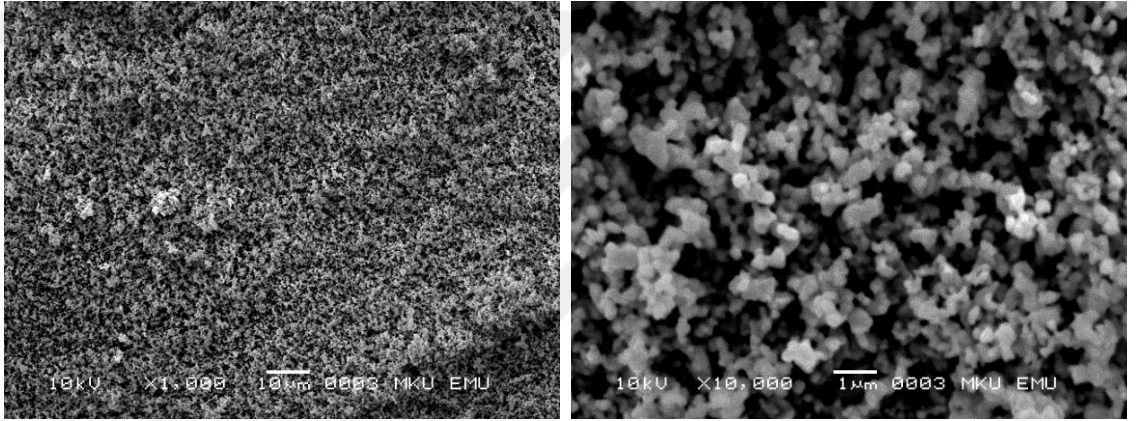


$\text{SrMn}_{0,01}\text{Ti}_{0,99}\text{O}_3$

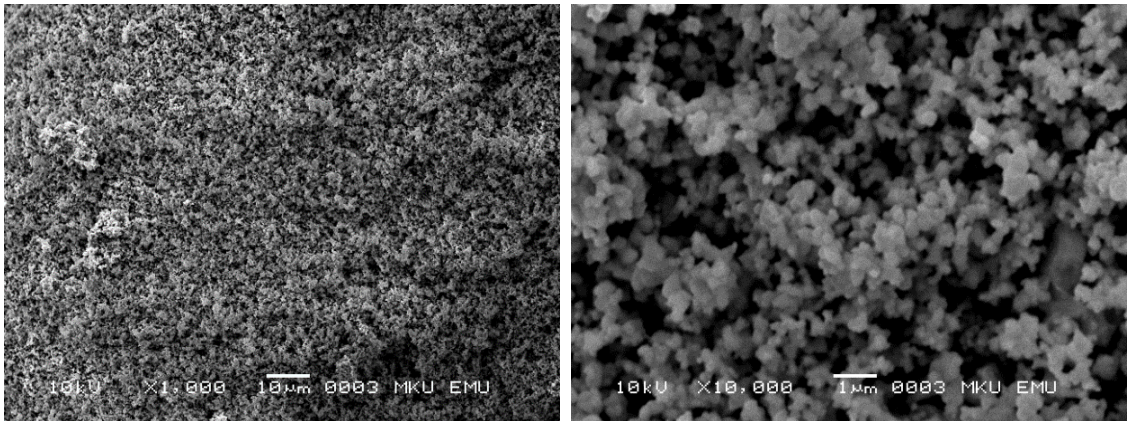
Şekil 4.27 $\text{SrMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



$\text{SrMn}_{0,025}\text{Ti}_{0,975}\text{O}_3$

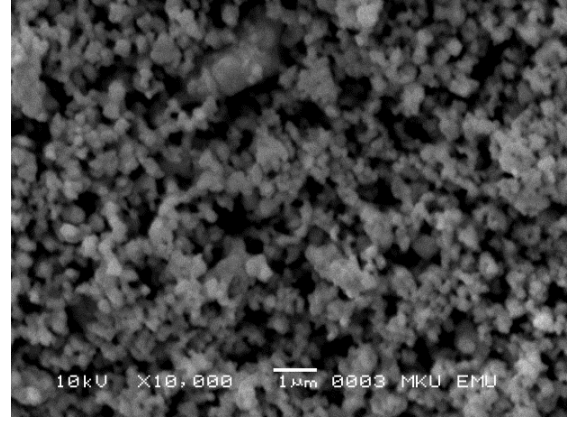
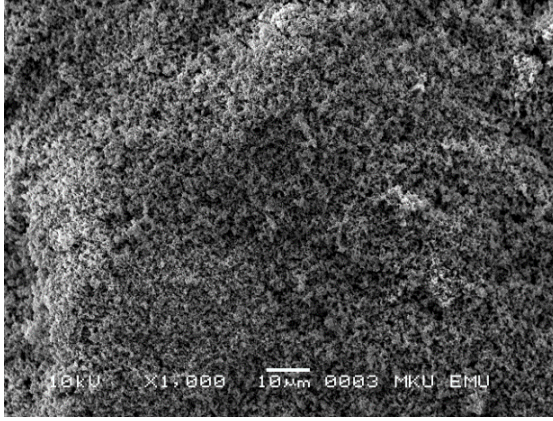


$\text{SrMn}_{0,05}\text{Ti}_{0,95}\text{O}_3$

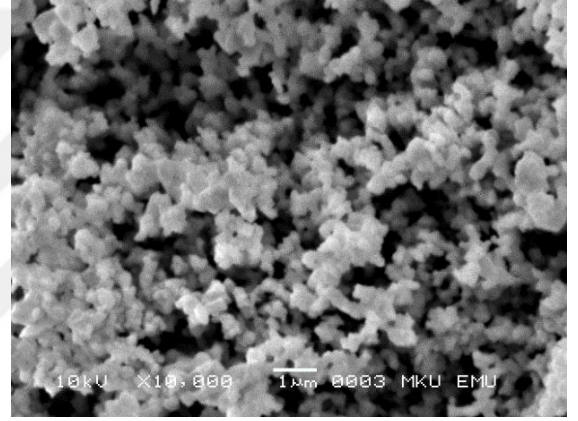
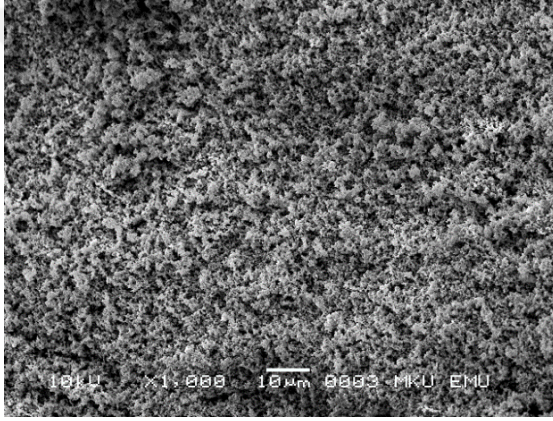


$\text{SrMn}_{0,1}\text{Ti}_{0,9}\text{O}_3$

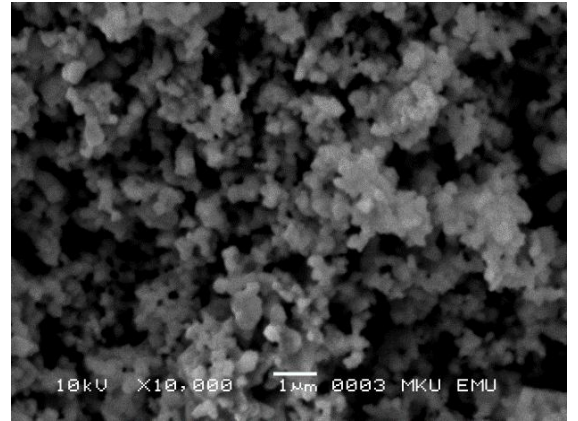
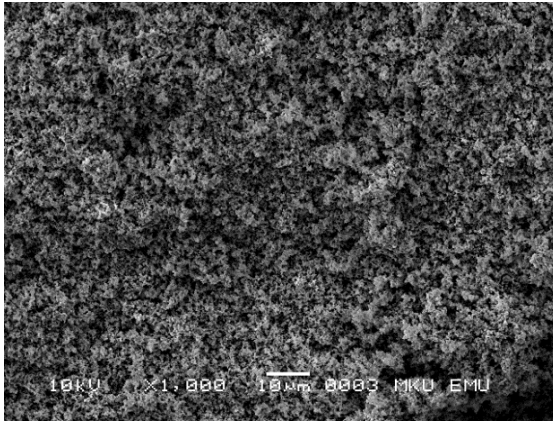
Şekil 4.27. (Devam) $\text{SrMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılarına ait SEM görüntüleri



$\text{SrMn}_{0,15}\text{Ti}_{0,85}\text{O}_3$

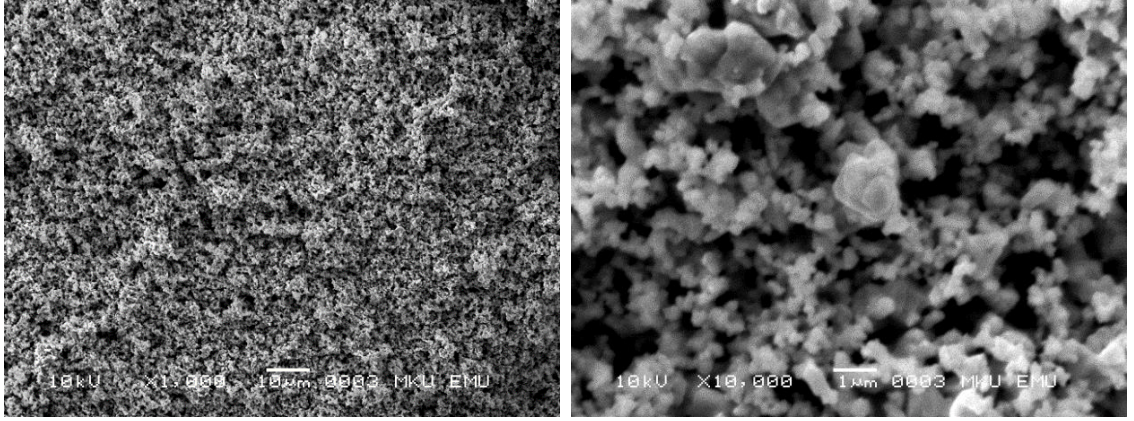


$\text{SrMn}_{0,2}\text{Ti}_{0,8}\text{O}_3$



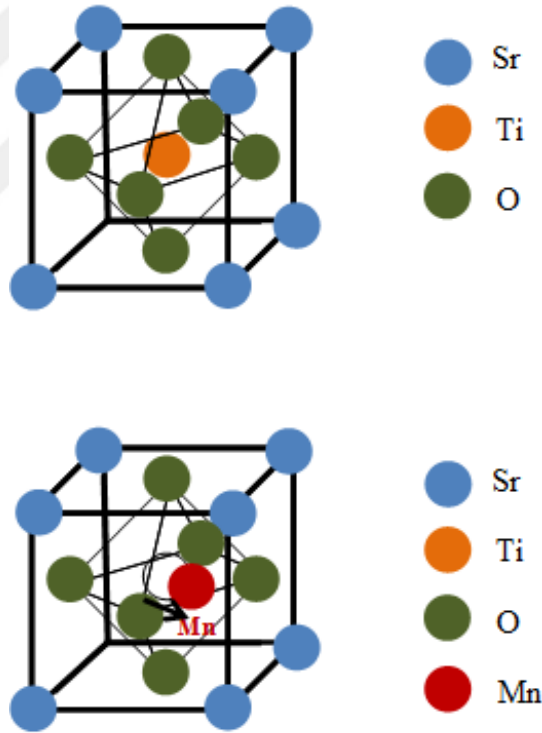
$\text{SrMn}_{0,4}\text{Ti}_{0,6}\text{O}_3$

Şekil 4.27. (Devam) $\text{SrMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



1) $\text{SrMn}_{0,6}\text{Ti}_{0,4}\text{O}_3$

Şekil 4.27. (Devam) $\text{SrMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



Şekil 4.28 a) Kübik kristal yapı (SrTiO_3 seramiği kafes yapısı) b) Mn_2O_3 katkılı SrTiO_3 seramiğinde Mn iyonu ile Ti iyonunun yer değişimi

Katkısız stronsiyum titanat yüzey merkezli kübik kristal yapıya sahiptir. Katı hal sentez yöntemiyle üretilen stronsiyum titanata katkılanan Mn_2O_3 bileşiği de kübik yapı fazına sahip olmasına rağmen $\text{SrMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ yapısında mangan iyonları titanyum

iyonlarının yerine geçtiğinden yapıdaki kristalların yönelimi değişerek ara faz olarak tetragonal kristal yapı fazı oluşmuştur. $\text{SrMn}_{0,005}\text{Ti}_{0,995}\text{O}_3$, $\text{SrMn}_{0,01}\text{Ti}_{0,99}\text{O}_3$, $\text{SrMn}_{0,025}\text{Ti}_{0,975}\text{O}_3$, $\text{SrMn}_{0,05}\text{Ti}_{0,95}\text{O}_3$, $\text{SrMn}_{0,1}\text{Ti}_{0,9}\text{O}_3$, $\text{SrMn}_{0,15}\text{Ti}_{0,85}\text{O}_3$, $\text{SrMn}_{0,2}\text{Ti}_{0,8}\text{O}_3$ bileşiklerin XRD desenlerin de kübik yapı fazına; $\text{SrMn}_{0,4}\text{Ti}_{0,6}\text{O}_3$, $\text{SrMn}_{0,6}\text{Ti}_{0,4}\text{O}_3$ ise tetragonal yapı fazına rastlanılmıştır.

Literatüre bakıldığında Gao ve arkadaşları stronsiyum titanata farklı mol oranlarında yitriyum iyonunu katı hal sentez yöntemini kullanarak katkılamaşlardır. Yitriyum iyonu yapıda titanyum iyonu ile yer değiştirmiş ve düşük katkı miktarlarında elde edilen seramik örneklerde yeni bir yapı fazı oluşumu gözlenmemiş, bütün seramik örneklere stronsiyum titanatın kübik kristal yapı fazının hakim olduğu görülmüştür. Katkı miktarı % 5 molün üzerine çıktığında ise yapıda yeni fazların meydana geldiği XRD kırınım desenleri incelendiğinde görülmüştür (Gao ve ark., 2008).

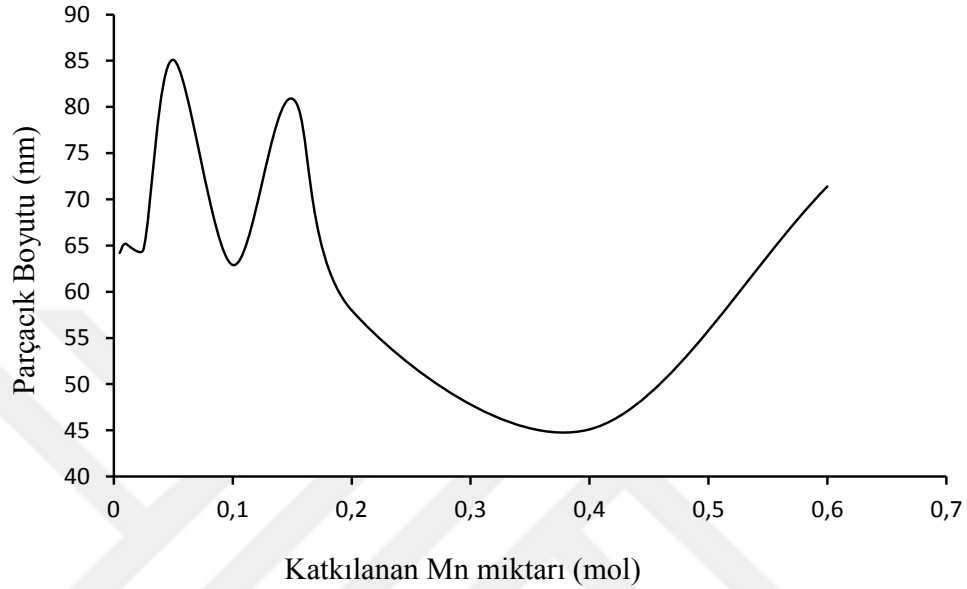
Farklı mol oranlarına Mn katkılanan SrTiO_3 seramiklerinin her bir katkılama sonucunda elde edilen yapılarının XRD kırınım desenlerinden yararlanılarak ortalama tanecik boyutları Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ve Çizelge 4.2’de verilmiştir.

$$D = \frac{0,9 \lambda}{\beta \cos \theta} \quad \lambda = 1,5400 \text{Å} \quad (4.3)$$

Çizelge 4.2. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları

Örnek	Ortalama Tanecik Boyutu (nm)
$\text{SrMn}_{0,005}\text{Ti}_{0,995}\text{O}_3$	64,2
$\text{SrMn}_{0,01}\text{Ti}_{0,99}\text{O}_3$	65,2
$\text{SrMn}_{0,025}\text{Ti}_{0,975}\text{O}_3$	64,6
$\text{SrMn}_{0,05}\text{Ti}_{0,95}\text{O}_3$	85,1
$\text{SrMn}_{0,1}\text{Ti}_{0,9}\text{O}_3$	62,9
$\text{SrMn}_{0,15}\text{Ti}_{0,85}\text{O}_3$	80,9
$\text{SrMn}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$	58,0
$\text{SrMn}_{0,40}\text{Ti}_{0,60}\text{O}_3$	45,1
$\text{SrMn}_{0,60}\text{Ti}_{0,40}\text{O}_3$	71,4

Tablodan görüldüğü gibi parçacık boyutları 45,1 - 85,1 nm aralığında değişen değerler almaktadır. Katkılama miktarına bağlı olarak ortalama tanecik boyutundaki değişim Şekil 4.29'daki grafikte gösterilmiştir.

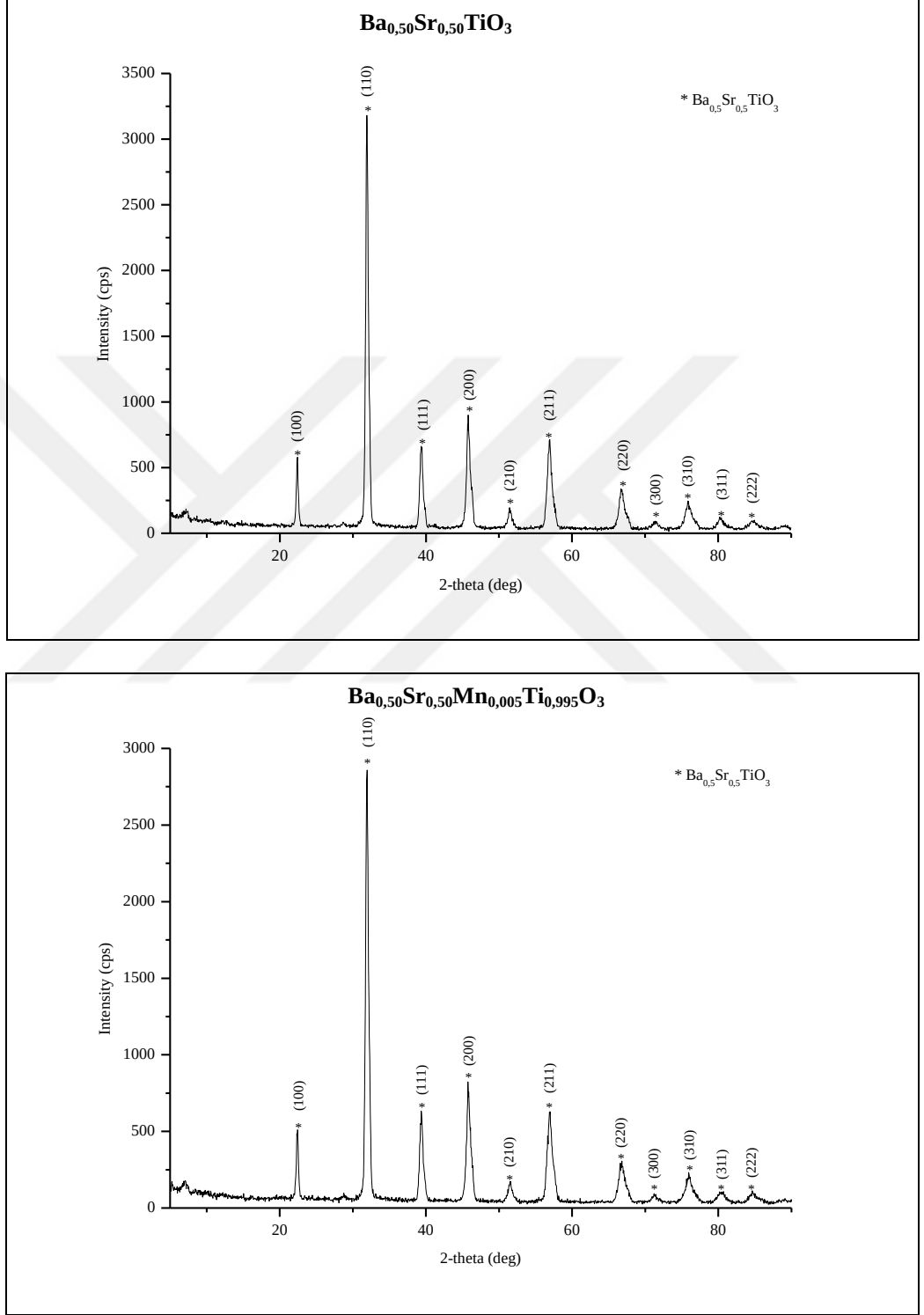


Şekil 4.29. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi

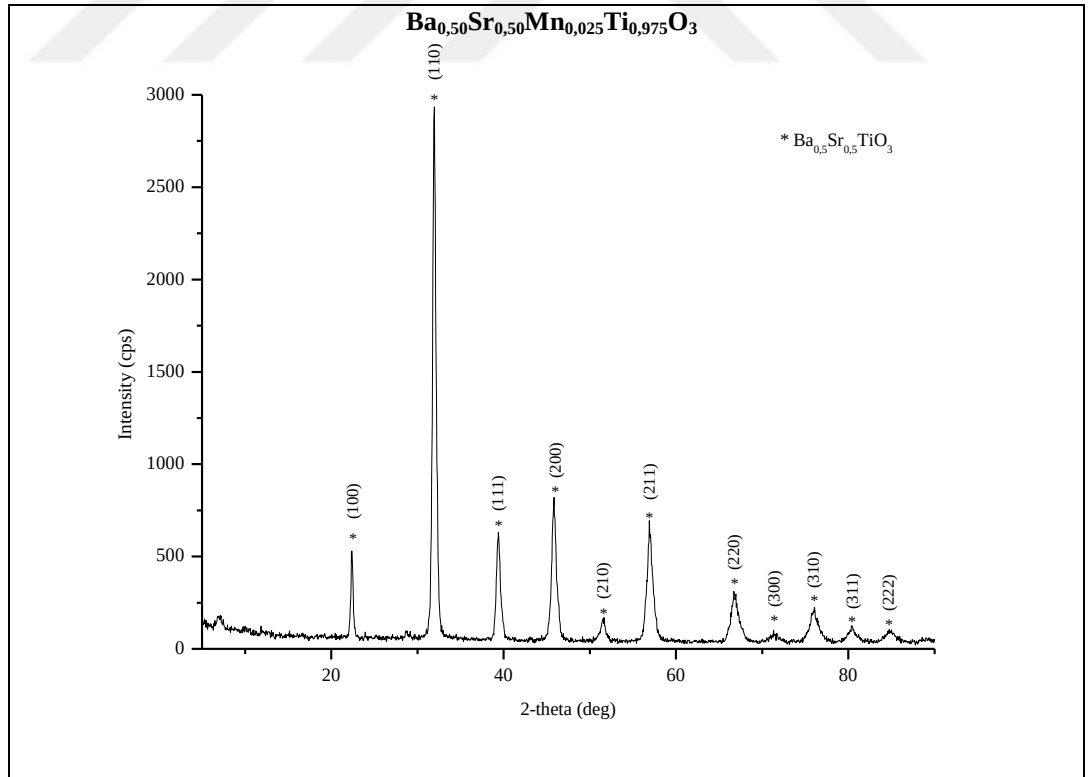
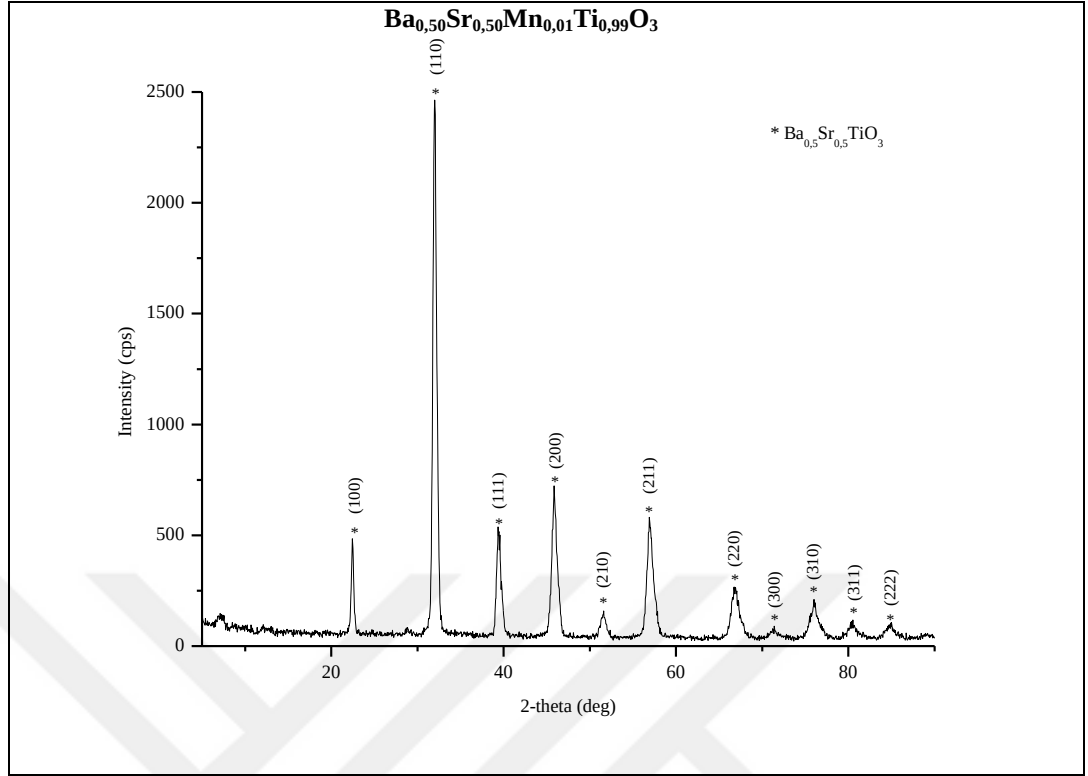
Stronsiyum titanata mangan katkısıyla birlikte düşük mol oranında mangan katkısında (0,005 mol – 0,05 mol) yapıda herhangi bir değişiklik olmamış katkı miktarı arttıkça yeni oluşan kristal yapılara ait karakteristik pikler XRD desenlerinde görülmeye başlamıştır. Katkılama miktarı 0,20 mola kadar olan bileşiklerin stronsiyum titanatla aynı kristal yapıya sahip oldukları; 0,20 molden daha yüksek miktarlarda mangan katkılı olduğunda ise tetragonal yapı fazına sahip bileşiklerin meydana geldiği tespit edilmiştir. Elde edilen seramik yapıların ortalama tanecik boyutlarının 45,1 - 85,1 nm aralığında değişen değerler aldığı Debye Scherrer eşitliğinden yararlanılarak hesaplanmıştır (Gao ve ark., 2008; Wu ve ark., 2015).

- **Mangan katkılı baryum/stronsiyum titanatın katı hal sentez yöntemiyle elde edilişi:** Katı hal sentez yöntemiyle farklı mol oranlarında $Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_xTi_{1-x}O_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,1; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) katkılı seramik tozları bölüm 3.2.3.1'de anlatıldığı gibi sentezlenmiş ve karakterize edilmiştir. Katkılı seramik tozlarının ve

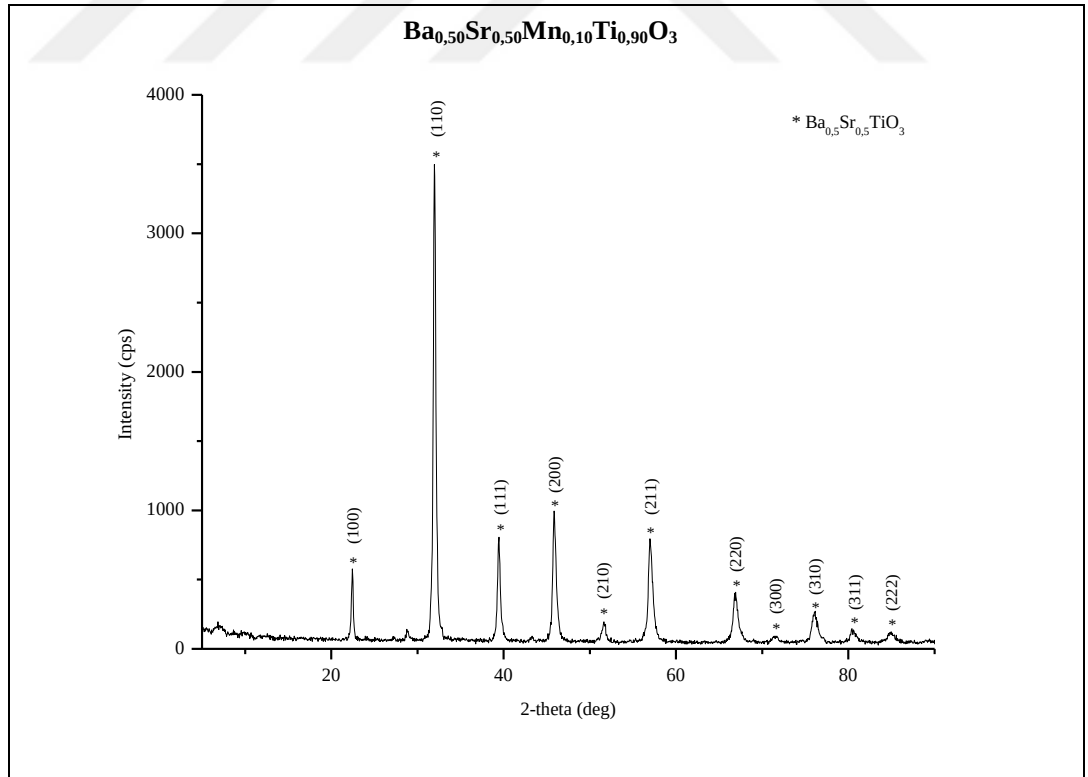
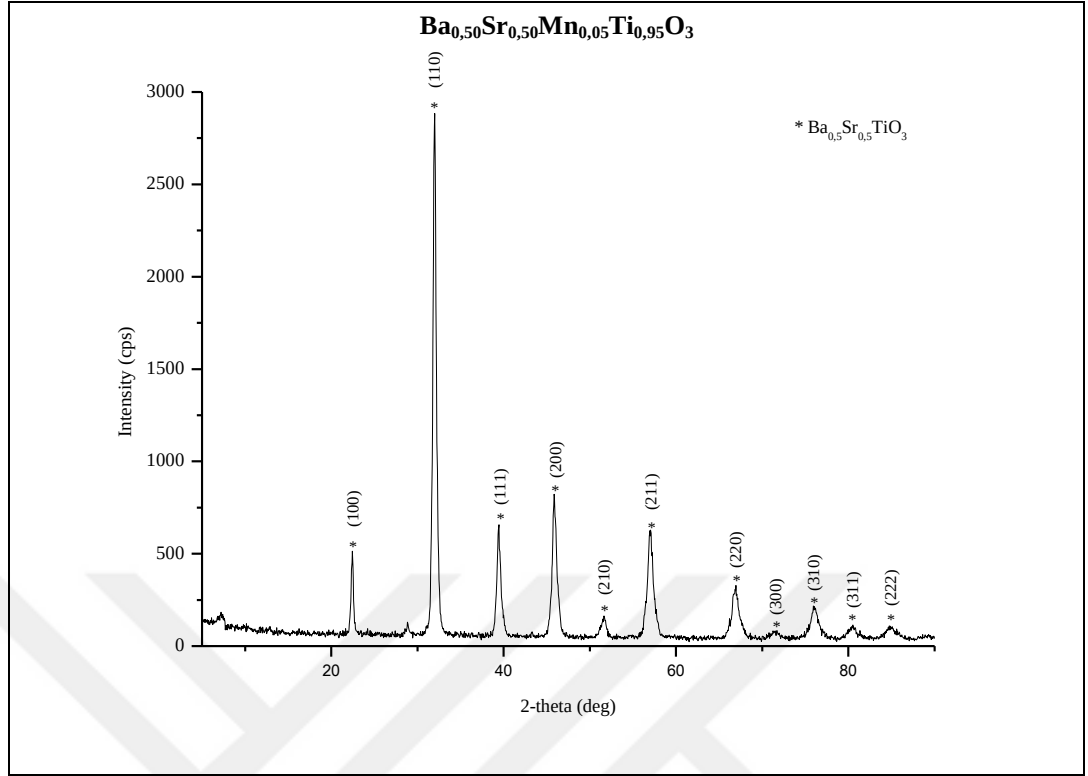
katkılanan Mn_2O_3 katkı maddesinin $5^\circ \leq 2\theta \leq 90^\circ$ aralığında ki X-ışını kırınım desenleri Şekil 4.30 ve Şekil 4.31’de; SEM görüntüleri ise Şekil 4.32’de görülmektedir.



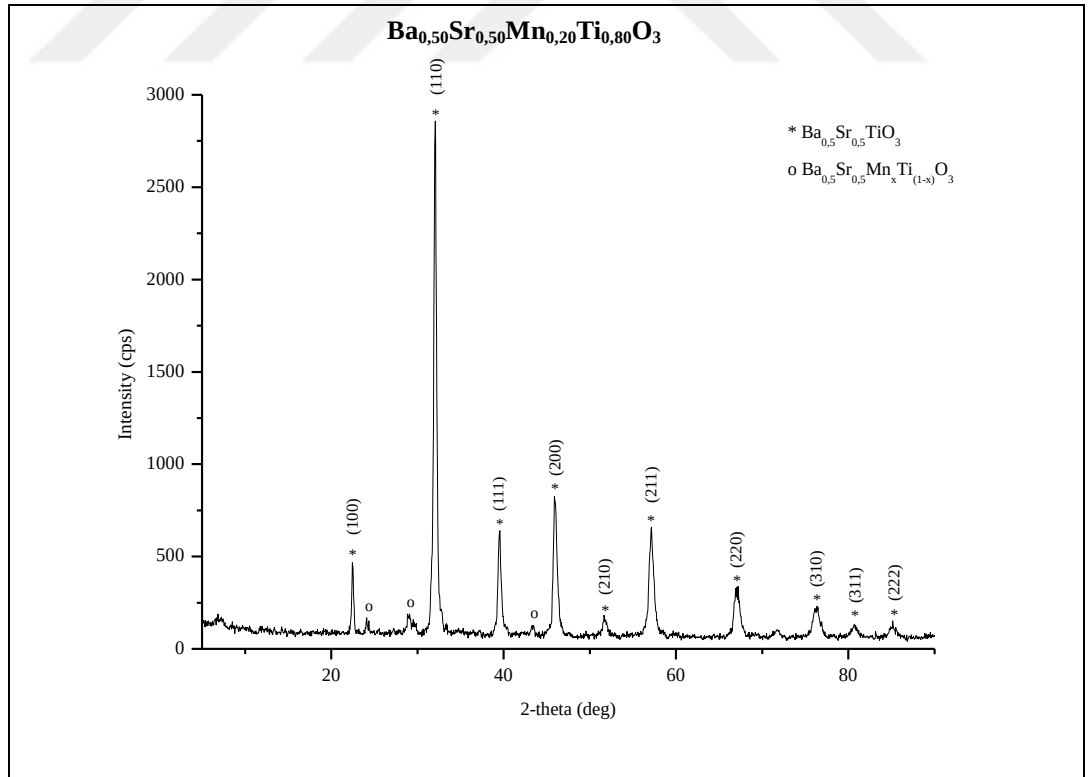
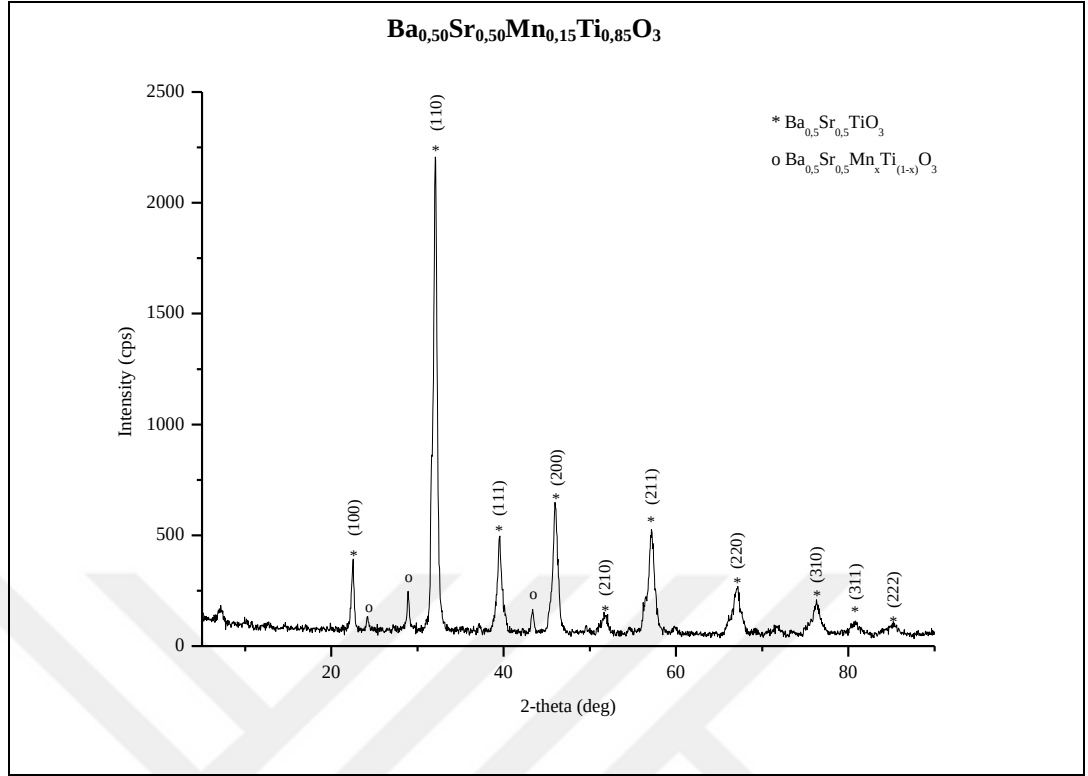
Şekil 4.30. $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Mn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapıları ve Mn_2O_3 bileşiğine ait XRD diyagramları



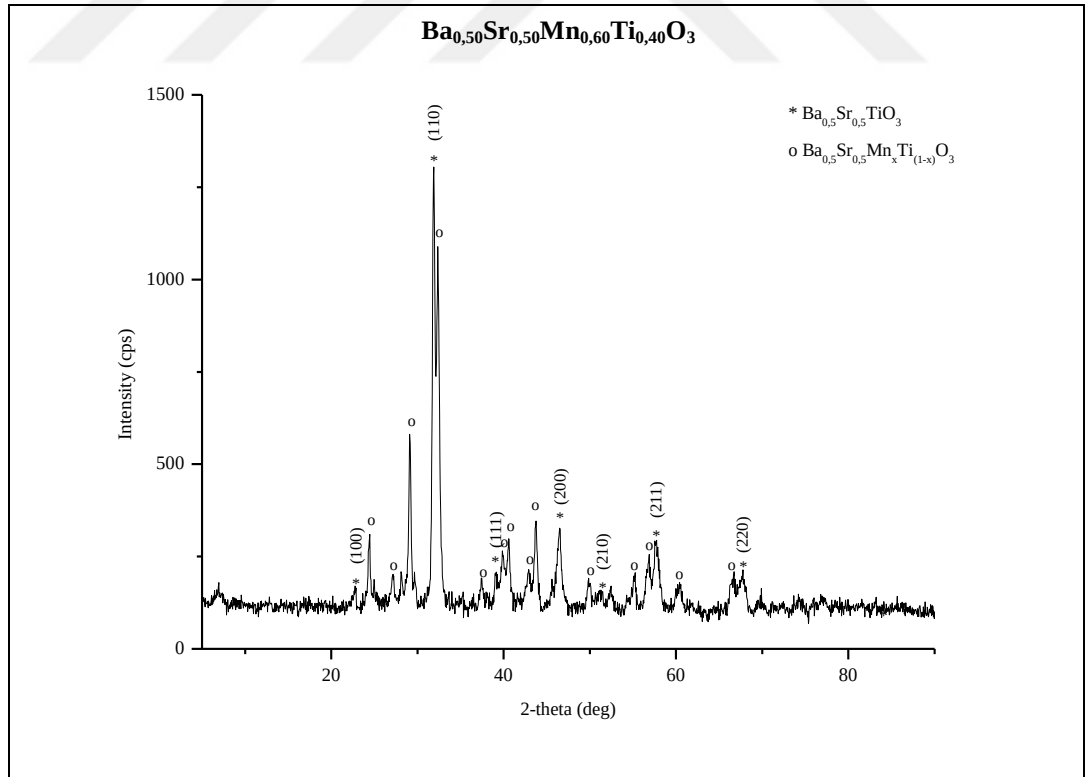
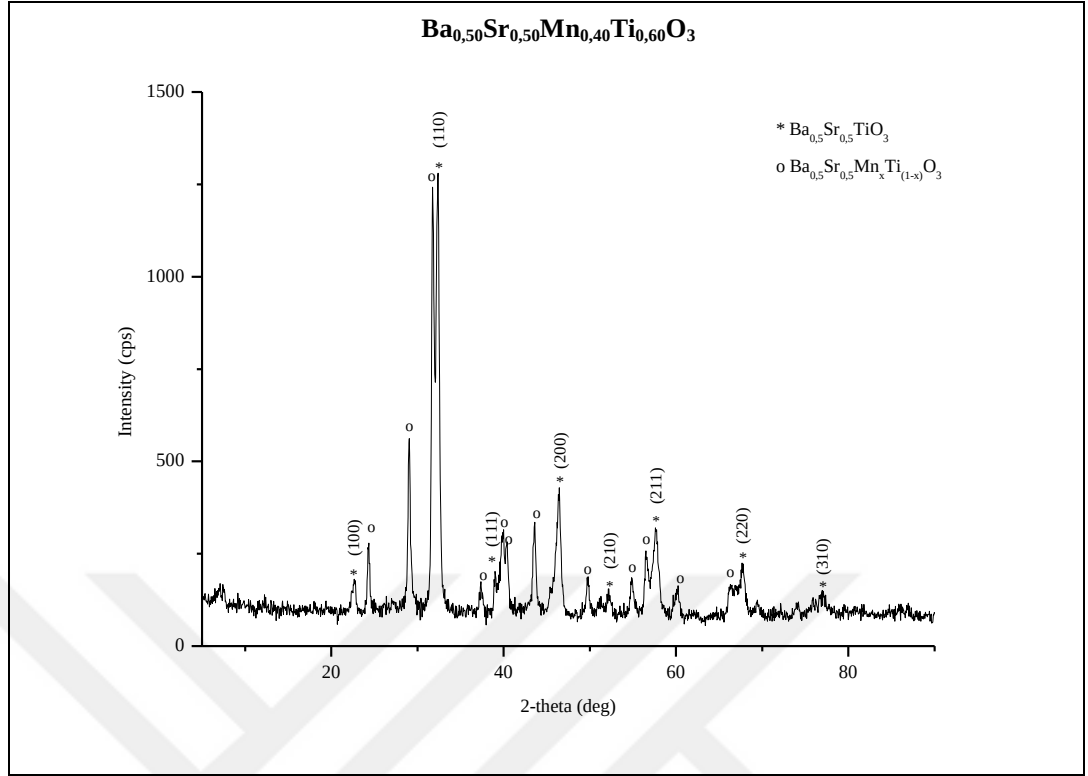
Şekil 4.30. (Devam) Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ve Mn₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



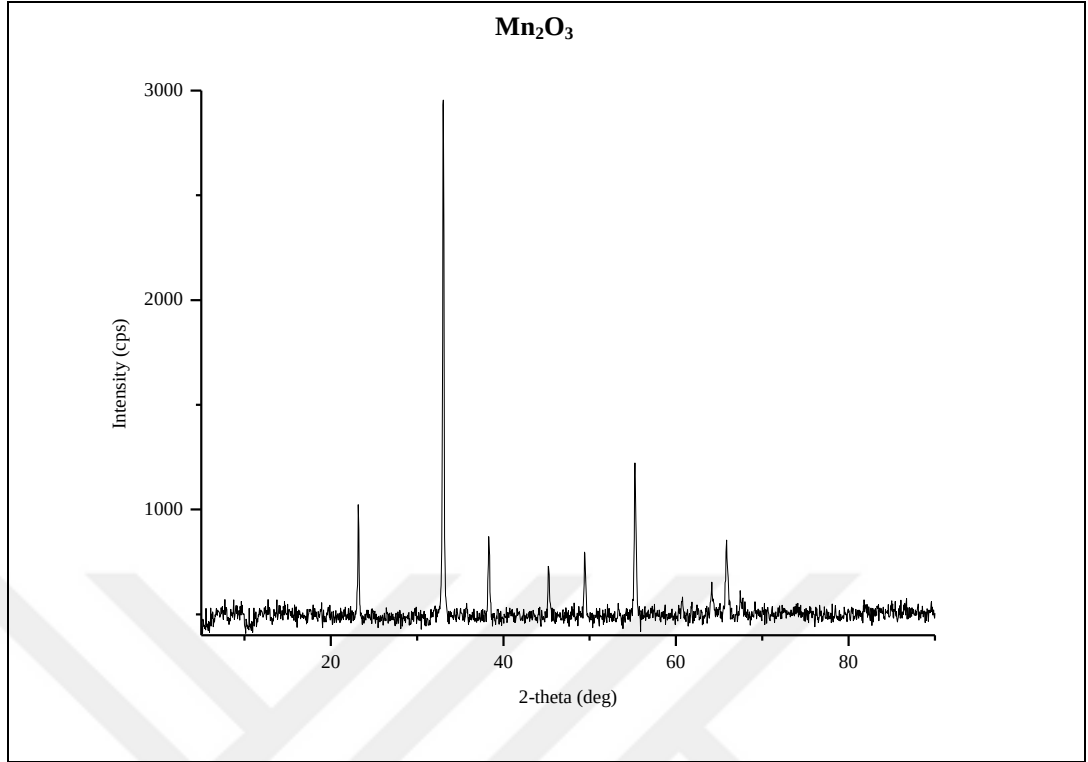
Şekil 4.30. (Devam) Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılara ve Mn₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



Şekil 4.30. (Devam) Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapıları ve Mn₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



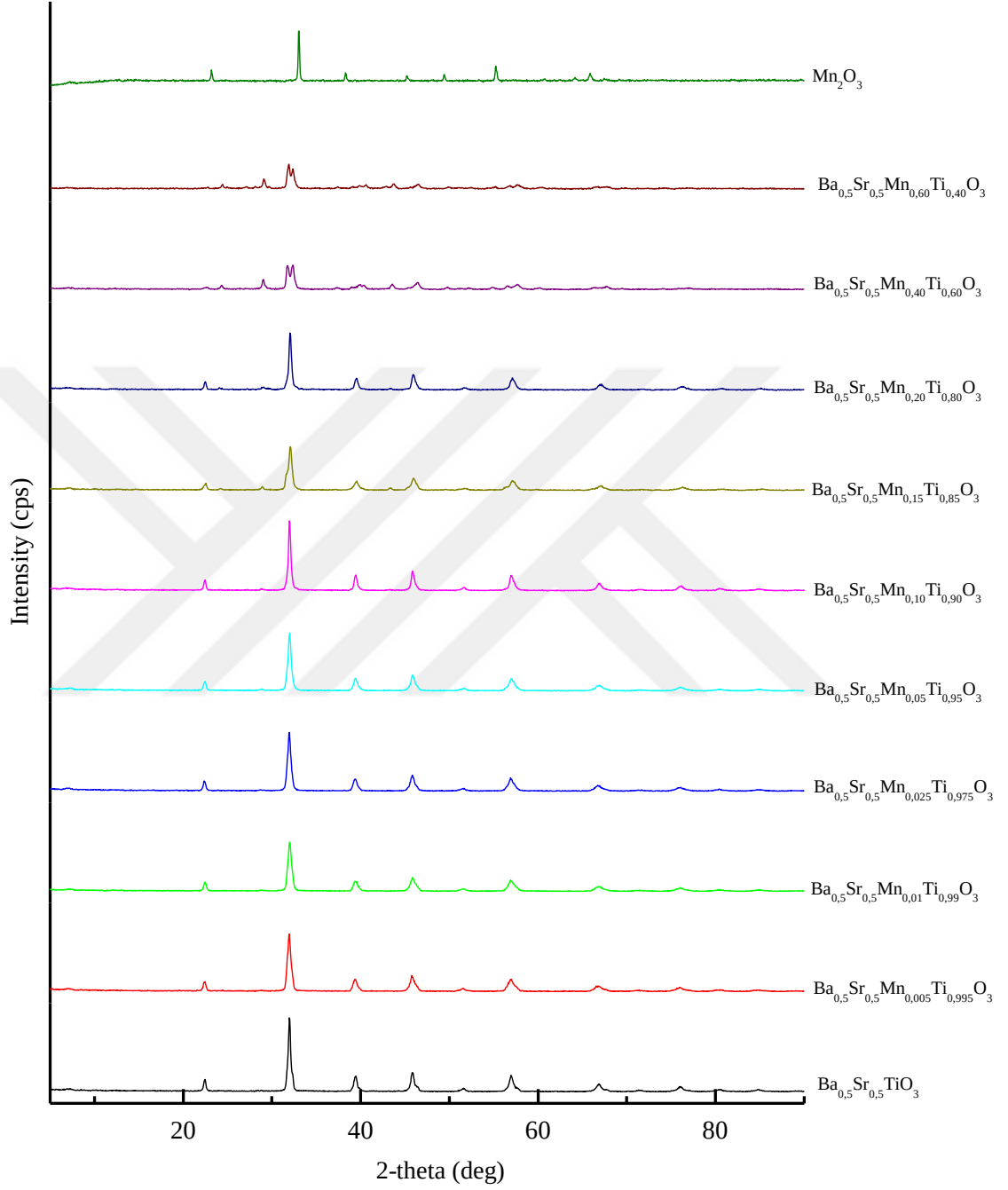
Şekil 4.30. (Devam) Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapıları ve Mn₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



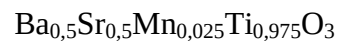
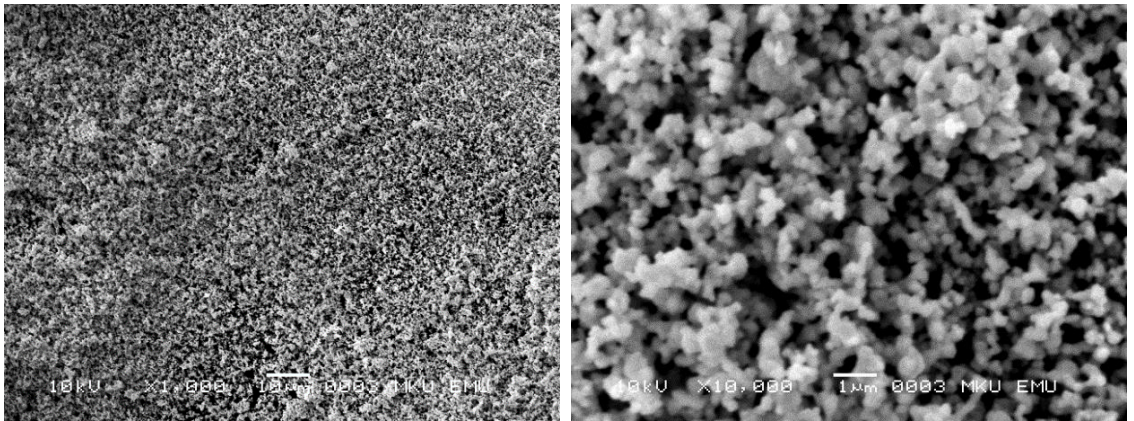
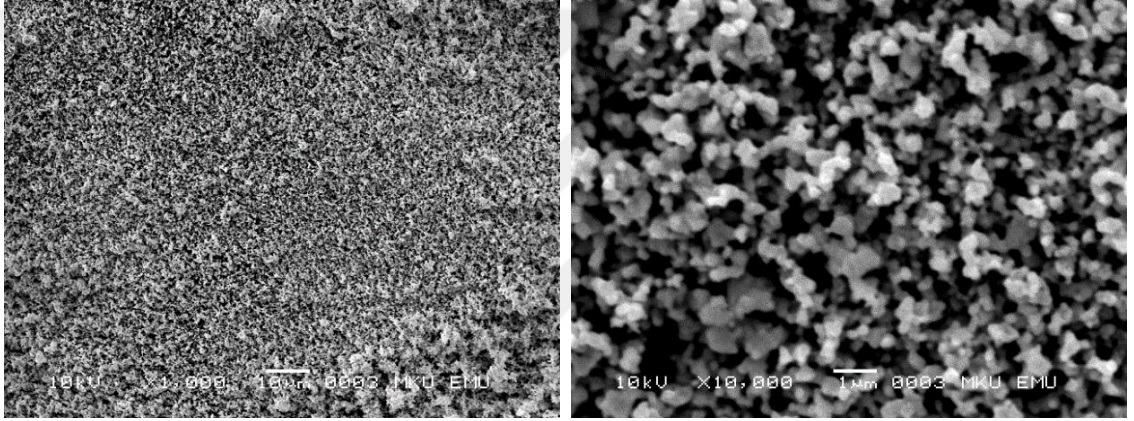
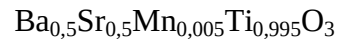
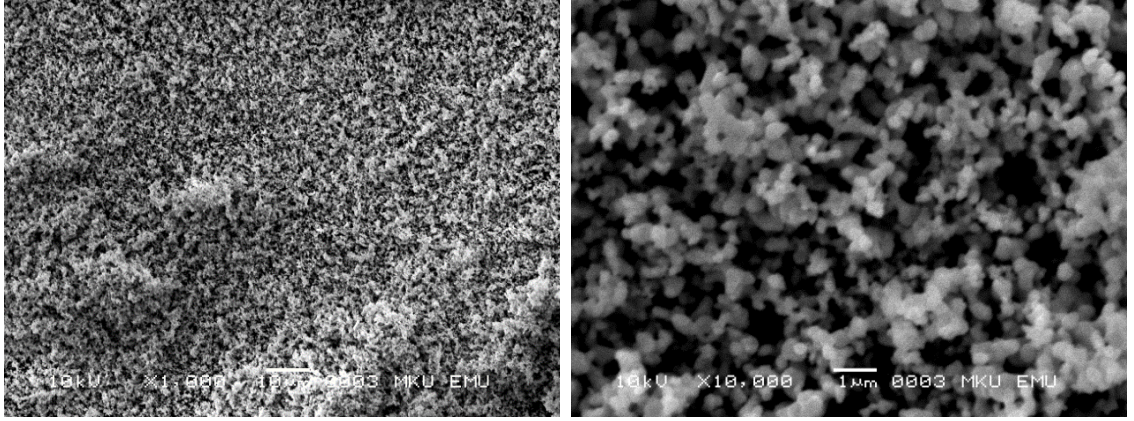
Şekil 4.30. (Devam) $Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_xTi_{1-x}O_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapıları ve Mn_2O_3 bileşiğine ait XRD diyagramları

Sentezlenen seramik yapıların XRD kırınım desenleri incelendiğinde; 0,005 mol – 0,10 mol aralığında ki Mn katkısı ile mangan iyonları titanyum ile yer değiştirerek $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ kristal yapısını bozmamış yapıda herhangi bir deformasyona sebep olmamıştır. 0,15 mol ve daha yüksek miktarlarda Mn katkılı baryum/stronsiyum titanat yapısının XRD diyagramında yeni oluşan yapının karakteristik piklerine (24° ; 29° ; 40° ; 43° ; 60°) rastlanılmakla birlikte katkı miktarı arttıkça katkısız baryum/stronsiyum titanat bileşiğine ait karakteristik piklerde (31° ; 39° ; 59°) yarıma ve pik şiddetinde azalma gözlenmiştir. Bu piklerdeki yarıma ve pik şiddetindeki azalma $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ yapısının mangan tarafından deforme edildiği ve yeni bir kristal yapı fazının oluşmaya başladığını göstermektedir. Benzer durum Liu ve ark. (2007) baryum stronsiyum titanat yapısına vanadyum katkılmasında da ifade edilmiştir.

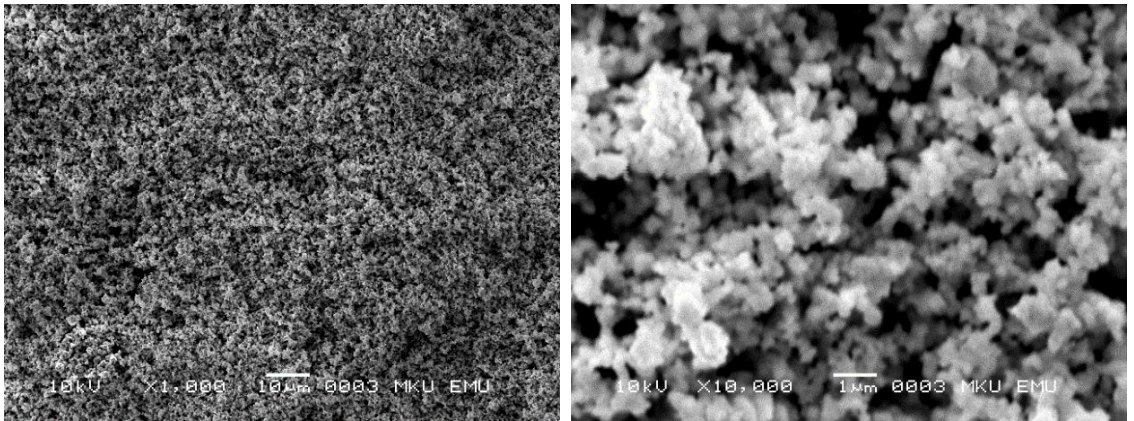
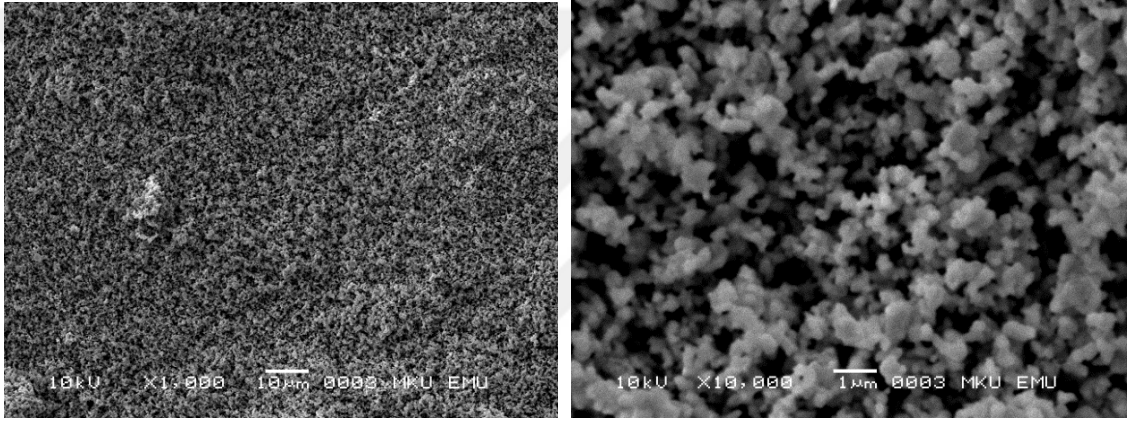
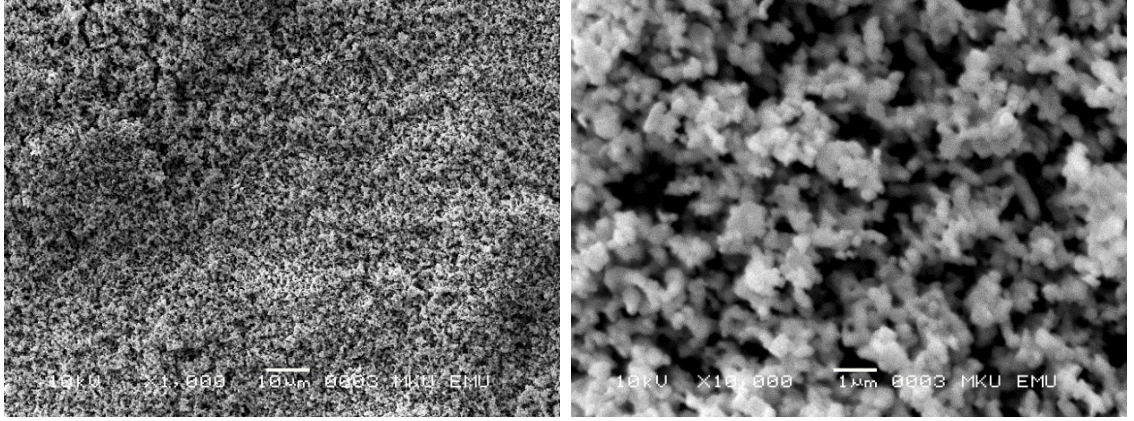
Literatür incelendiğinde Liu ve arkadaşlarının yaptığı çalışmada, baryum stronsiyum titanat yapısına vanadyum katkılanarak vanadyum katkısındaki artışla birlikte yeni oluşan kristal yapıya ait piklerin oluşmaya başladığı XRD diyagramları incelendiğinde görülmüştür (Liu ve ark., 2007).



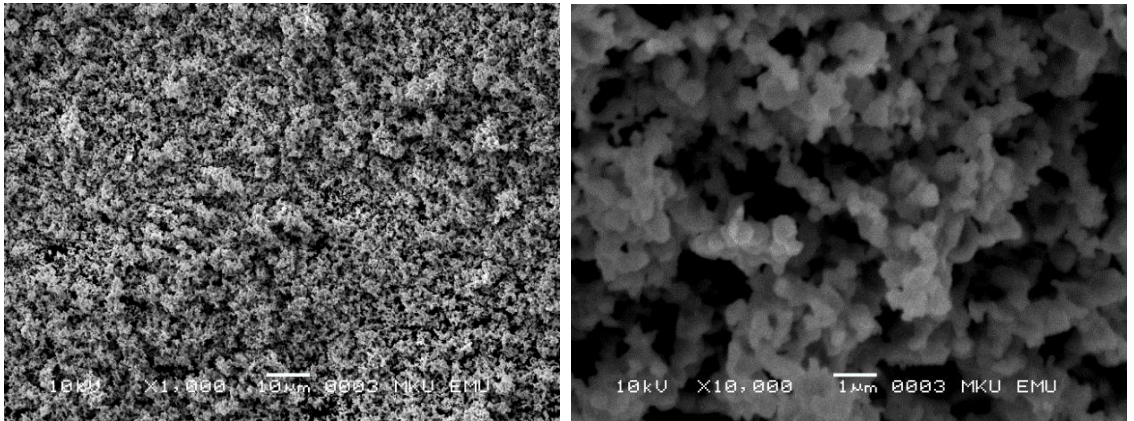
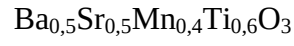
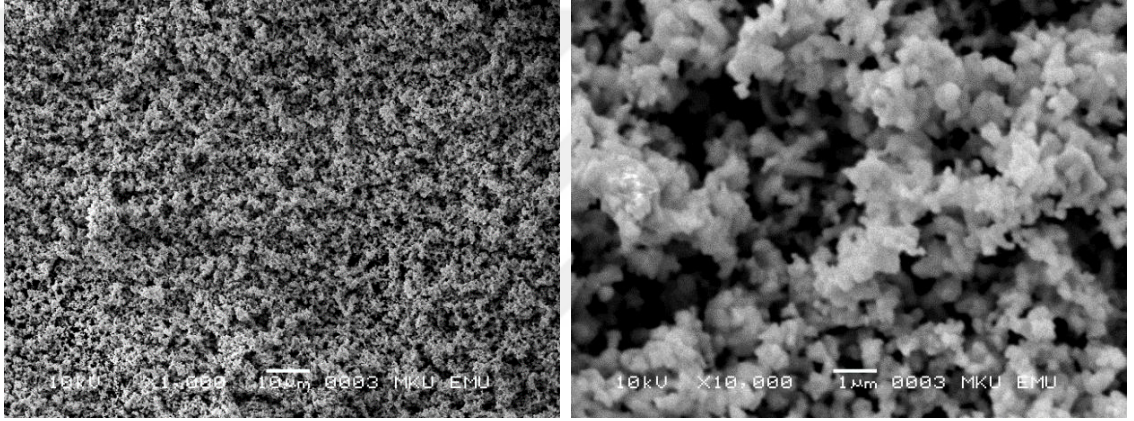
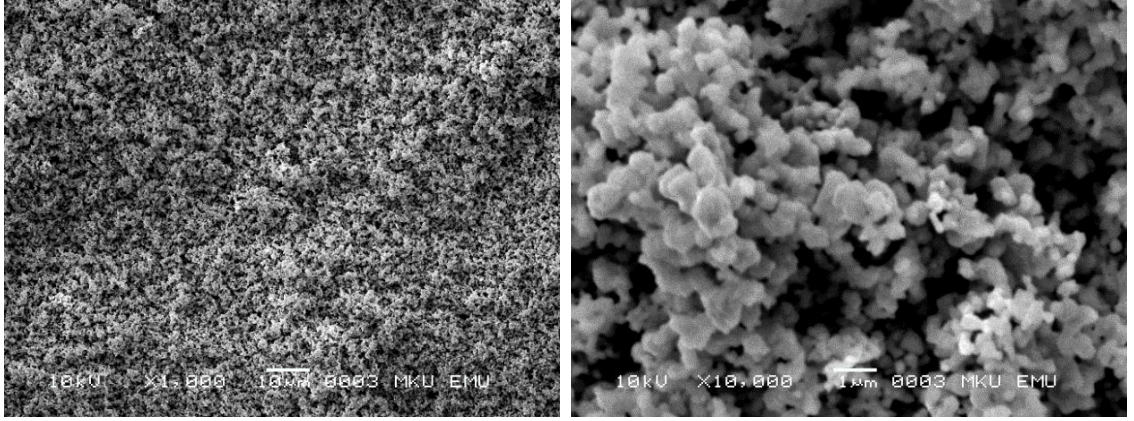
Şekil 4.31. $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Mn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılarına ve Mn_2O_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı



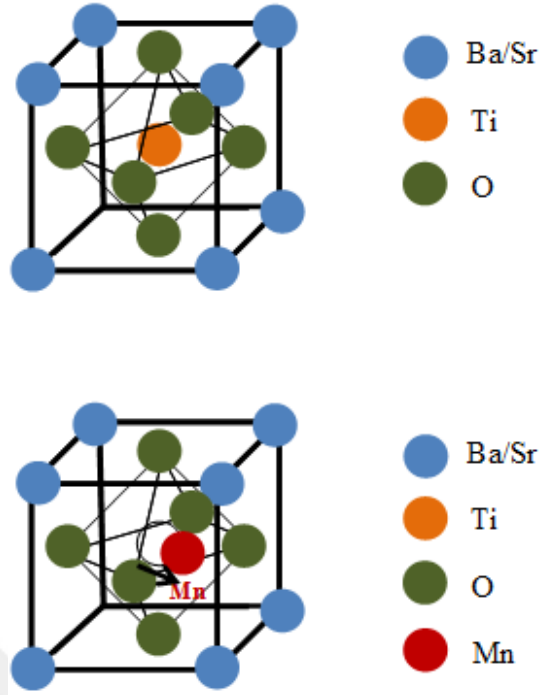
Şekil 4.32. $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{Mn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 40; 0,60) seramik yapılarına ait SEM görüntüleri



Şekil 4.32. (Devam) $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{Mn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılarına ait SEM görüntüleri



Şekil 4.32. (Devam) $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{Mn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x : 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramik yapılarına ait SEM görüntüleri



Şekil 4.33. a) Kübik kristal yapı ($\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{TiO}_3$ seramiği kafes yapısı) b) Mn_2O_3 katkılı $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{TiO}_3$ seramiğinde Mn iyonu ile Ti iyonunun yer değişimi

Katkısız $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{TiO}_3$ yapısının kristal yapı fazıyla Mn_2O_3 bileşiğinin kristal yapı fazı aynı olup her ikisi de yüzey merkezli kübik yapı (YMK) fazına sahiptir. Yapıya katılan mangan katkı miktarının artışıyla kristali oluşturan taneciklerin yönelimi değişmiş ve oluşan yeni seramik yapıların kübik kristal yapı fazına sahip olduğu görülmüştür. Bu seramik yapıların SEM görüntülerine bakıldığında homojen bir yapı elde edildiği, kübik kristal fazın yapıya hakim olduğu görülmektedir. Literatüre bakıldığında Cui ve ark. (2010) baryum stronsiyum titanat yapısına farklı mol oranlarında mangan katı hal sentez yöntemini kullanarak katılamışlardır. Elde ettikleri XRD analizleri sonucunda kristal yapı fazının mangan katkısıyla değişmediğini bütün yapılara kübik kristal yapı fazının hakim olduğunu belirtmişlerdir (Cui ve ark., 2010).

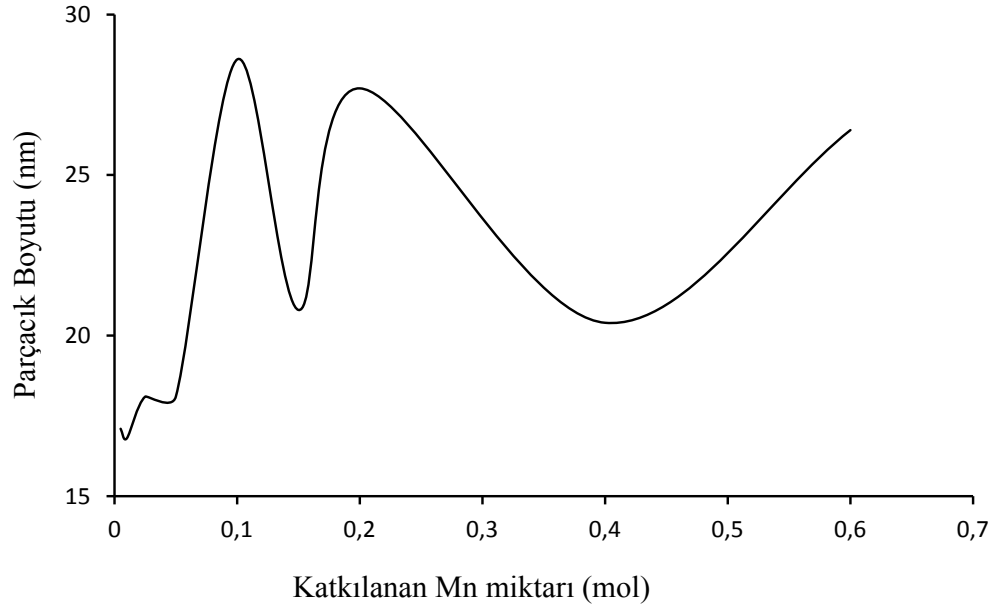
Farklı mol oranlarında mangan katılan $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{TiO}_3$ seramiklerinin her bir katkılama sonucunda elde edilen yapılarının XRD kırınım desenlerinden yararlanılarak ortalama tanecik boyutları Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ve Çizelge 4.3’de verilmiştir.

$$D = \frac{0,9 \lambda}{\beta \cos \theta} \quad \lambda = 1,5400 \text{Å} \quad (4.4)$$

Çizelge 4.3. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları

Örnek	Ortalama Tanecik Boyutu (nm)
$Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_{0,005}Ti_{0,995}O_3$	17,1
$Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_{0,01}Ti_{0,99}O_3$	16,8
$Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_{0,025}Ti_{0,975}O_3$	18,1
$Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_{0,05}Ti_{0,95}O_3$	18,1
$Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_{0,1}Ti_{0,9}O_3$	28,6
$Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_{0,15}Ti_{0,85}O_3$	20,8
$Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_{0,20}Ti_{0,80}O_3$	27,7
$Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_{0,40}Ti_{0,60}O_3$	20,4
$Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_{0,60}Ti_{0,40}O_3$	26,4

Tablodan görüldüğü gibi parçacık boyutları 16,8 – 28,6 nm aralığında değişen değerler almaktadır. Katkılama miktarına bağlı olarak parçacık boyutundaki değişim Şekil 4.34’deki grafikte gösterilmiştir.



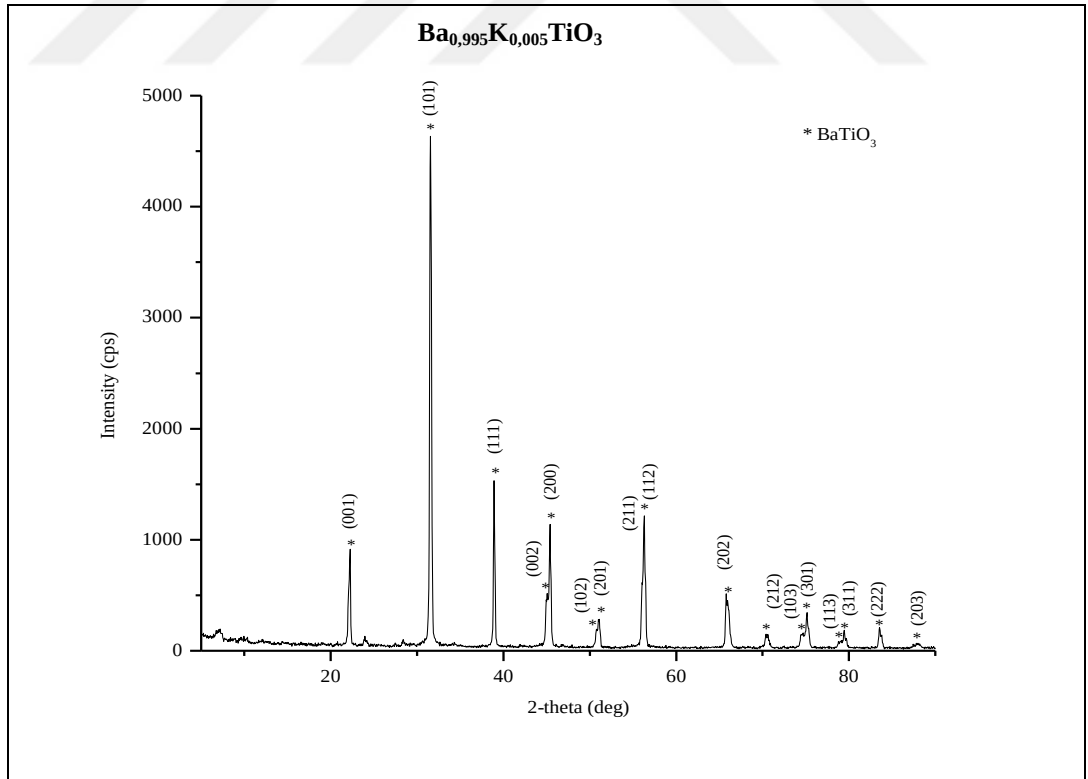
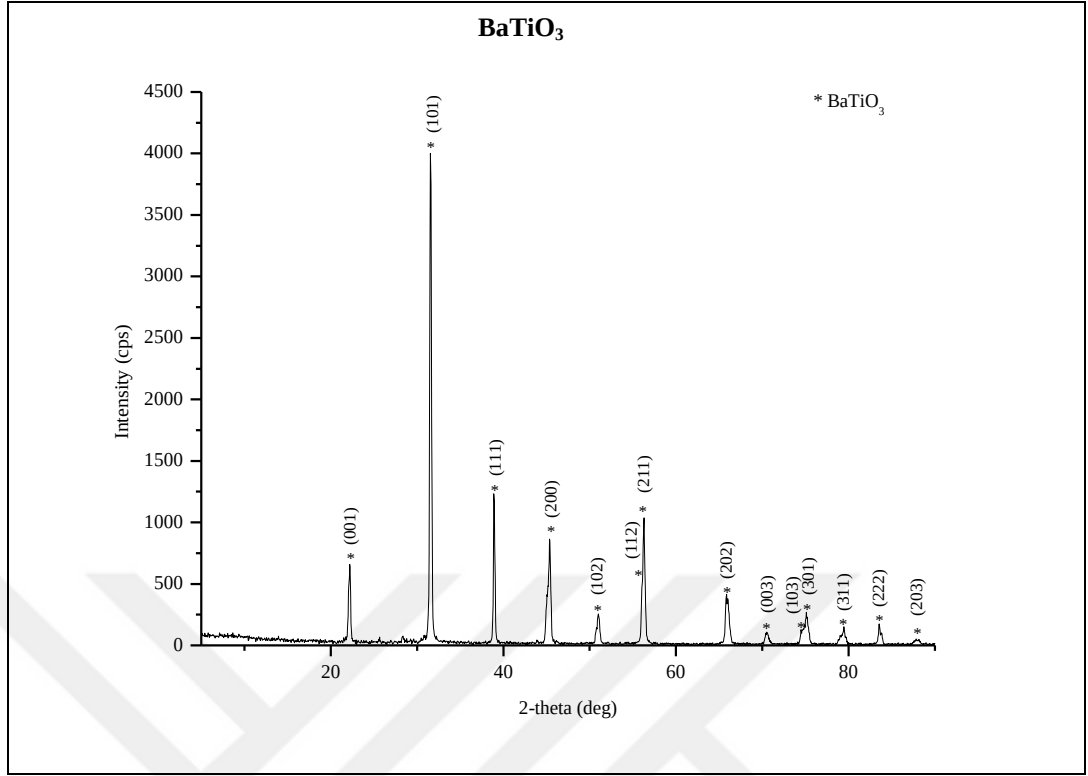
Şekil 4.34. Katkılama miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi

Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO₃ seramik yapısına 0,005 mol – 0,10 mol aralığında ki Mn katkısıyla elde edilen yapıların XRD kırınım desenleri incelendiğinde katkısız Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO₃ yapıda herhangi bir değişim gözlenmemiş, mangana ait piklere rastlanılmamıştır. 0,15 mol ve daha yüksek miktarlarda Mn katkılı baryum/stronsiyum titanat yapısının XRD kırınım desenlerine bakıldığında baryum stronsiyum titanata ait karakteristik piklerin şiddetinde azalma ve yarılmalara meydana geldiği; katkılamayla meydana gelen seramik yapılara ait karakteristik piklerin elde edildiği görülmüştür. XRD kırınım desenleriyle birlikte SEM görüntülerine bakıldığında elde edilen seramik yapıların kübik kristal yapı fazına sahip olduğu tespit edilmiştir. Kristalleri oluşturan taneciklerin ortalama tanecik boyutları ise 16,8 – 28,6 nm aralığında değişim göstermektedir (Liu ve ark., 2007; Cui ve ark., 2010).

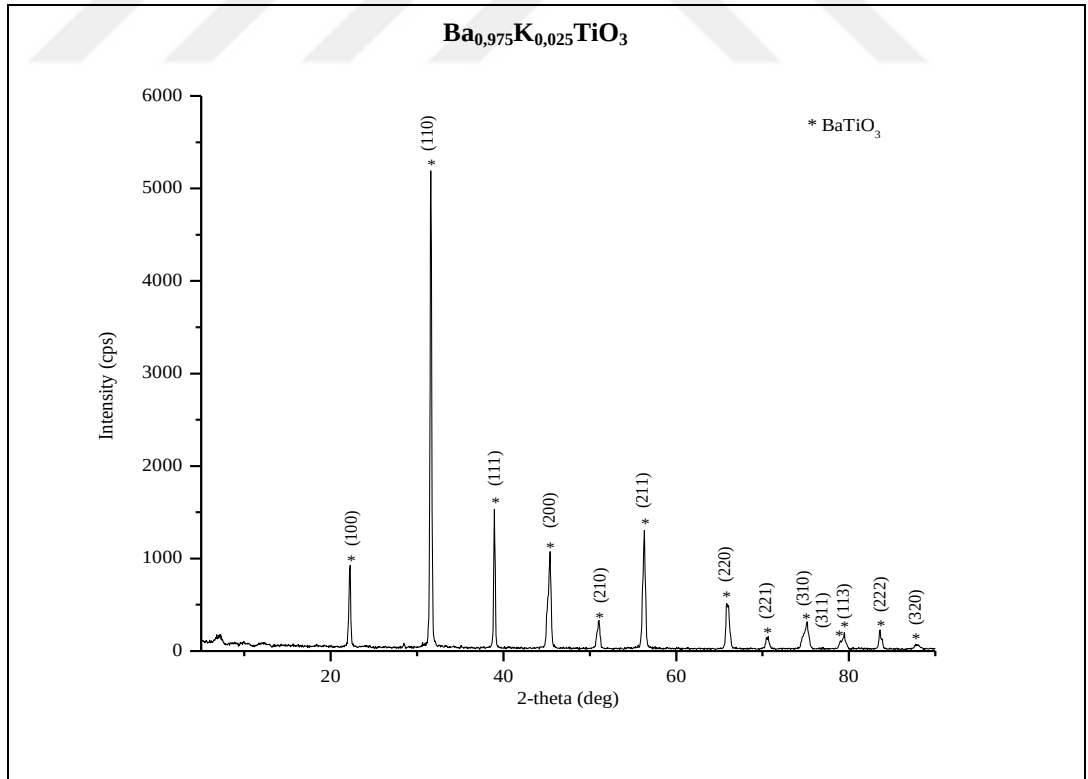
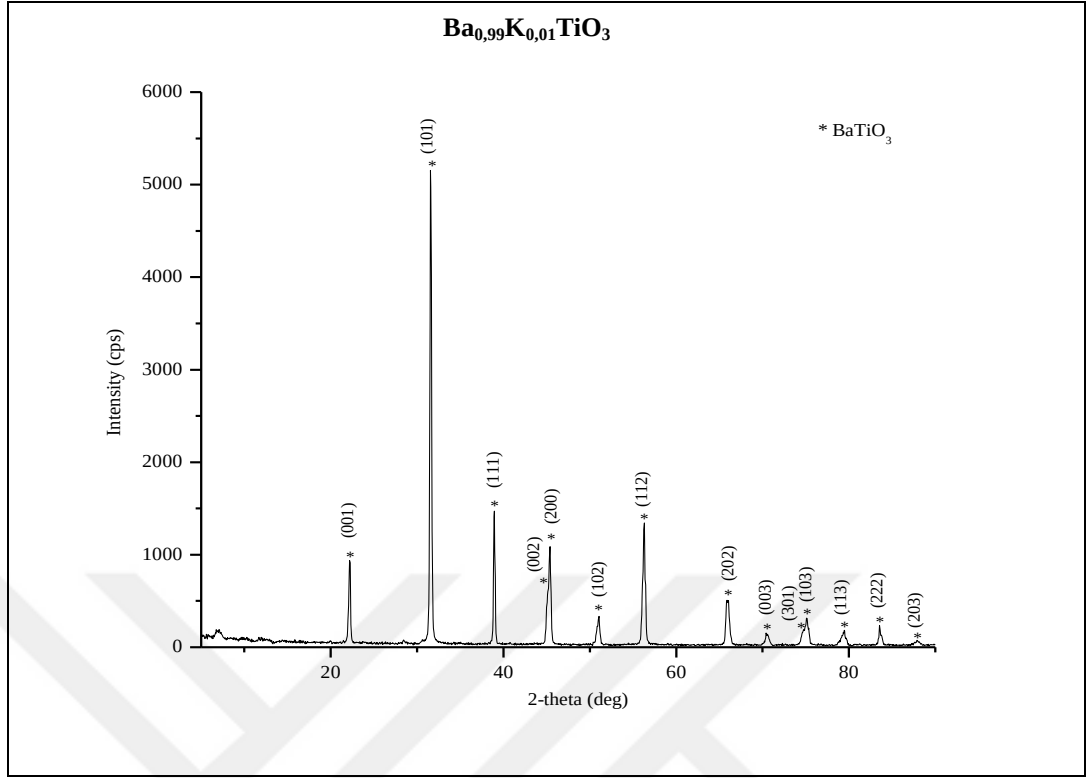
4.2.2. Potasyum Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu

Baryum titanat, stronsiyum titanat ve baryum/stronsiyum titanat yapılarına katkılanan potasyum katkı miktarındaki artışa bağlı olarak piklerde kaymalar, şiddet değerlerinde değişimler ve örgü parametrelerinde farklılıklar olduğu tespit edilmiştir. K⁺ (r = 151 pm) iyonunun yarıçapı BaTiO₃, SrTiO₃, Ba/SrTiO₃ seramiklerindeki Ba²⁺ (r = 149 pm) ve Sr²⁺ (r = 132 pm) iyonlarının yarıçapının yakın olduğundan dolayı K⁺ iyonu kristal yapıda baryum ve stronsiyum iyonları ile yer değiştiği düşünülmektedir. Piklerde meydana gelen bu değişimler K atomunun katkılama sonucunda Ba ya da Sr atomunun yerine geçerek BaTiO₃; SrTiO₃; Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO₃ yapılarına yerleşebildiğini göstermektedir (Tubchareon ve ark., 2013; Pisitpipathsin ve ark., 2015).

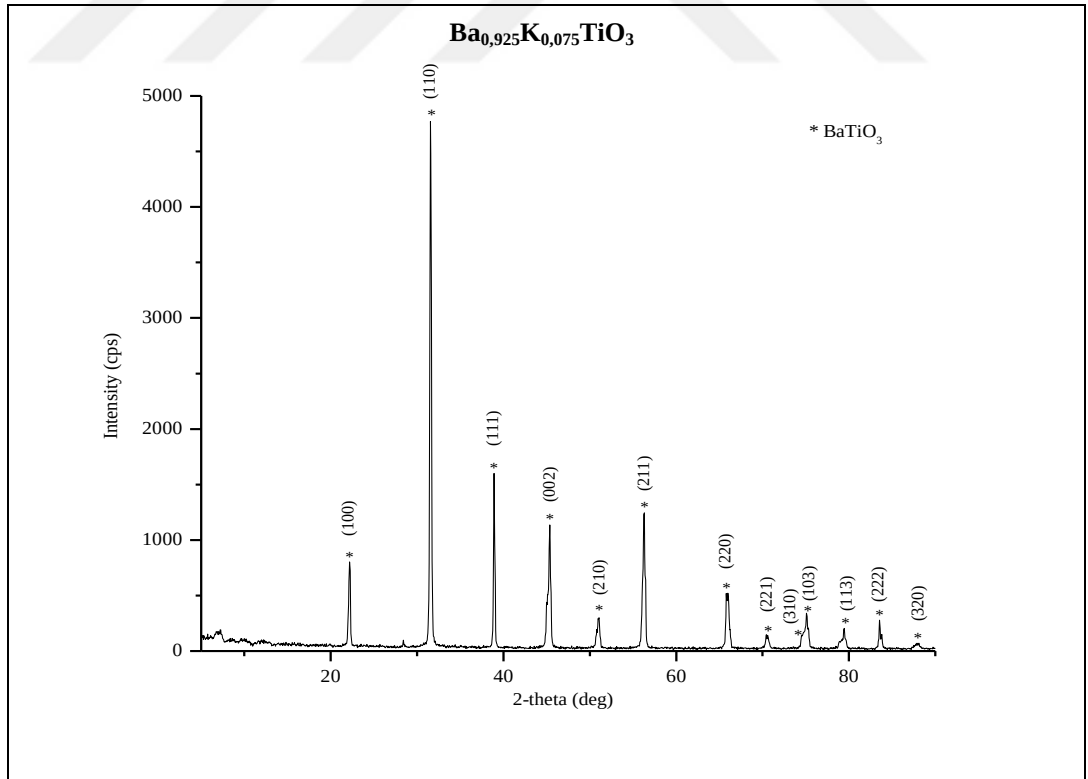
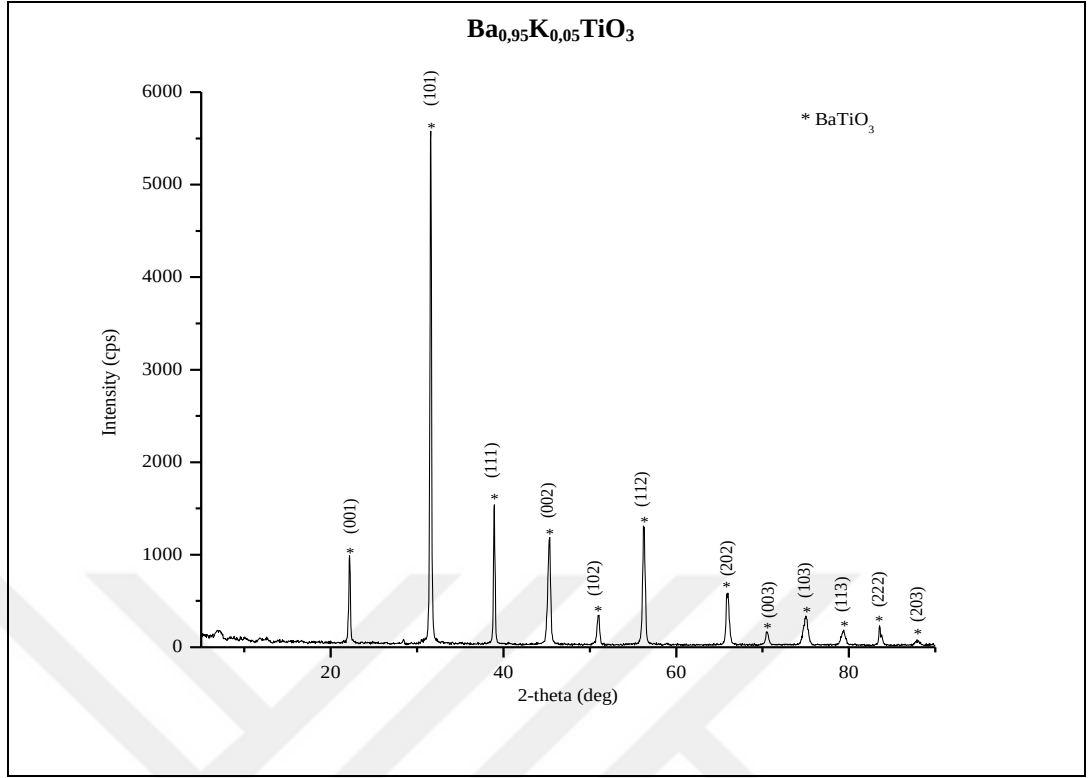
- Potasyum katkılı baryum titanatın katı hal sentez yöntemiyle elde edilişi: Katı hal sentez yöntemiyle farklı mol oranlarında Ba_{1-x}K_xTiO₃ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) katkılı seramik tozları bölüm 3.2.3.2’de anlatıldığı gibi sentezlenmiş ve karakterize edilmiştir. Katkılı seramik tozlarının ve katkılanan K₂CO₃ katkı maddesinin 5° ≤ 2θ ≤ 90° aralığında ki X-ışını kırınım desenleri Şekil 4.35 ve Şekil 4.36’da; SEM görüntüleri ise Şekil 4.37’de görülmektedir.



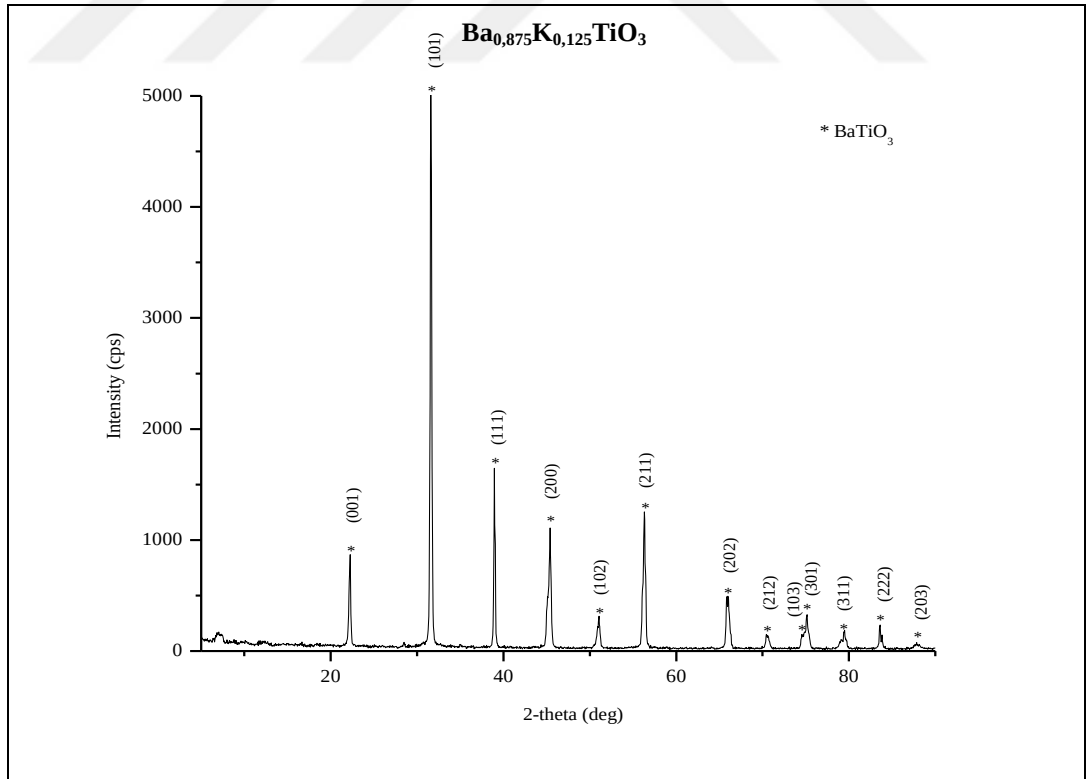
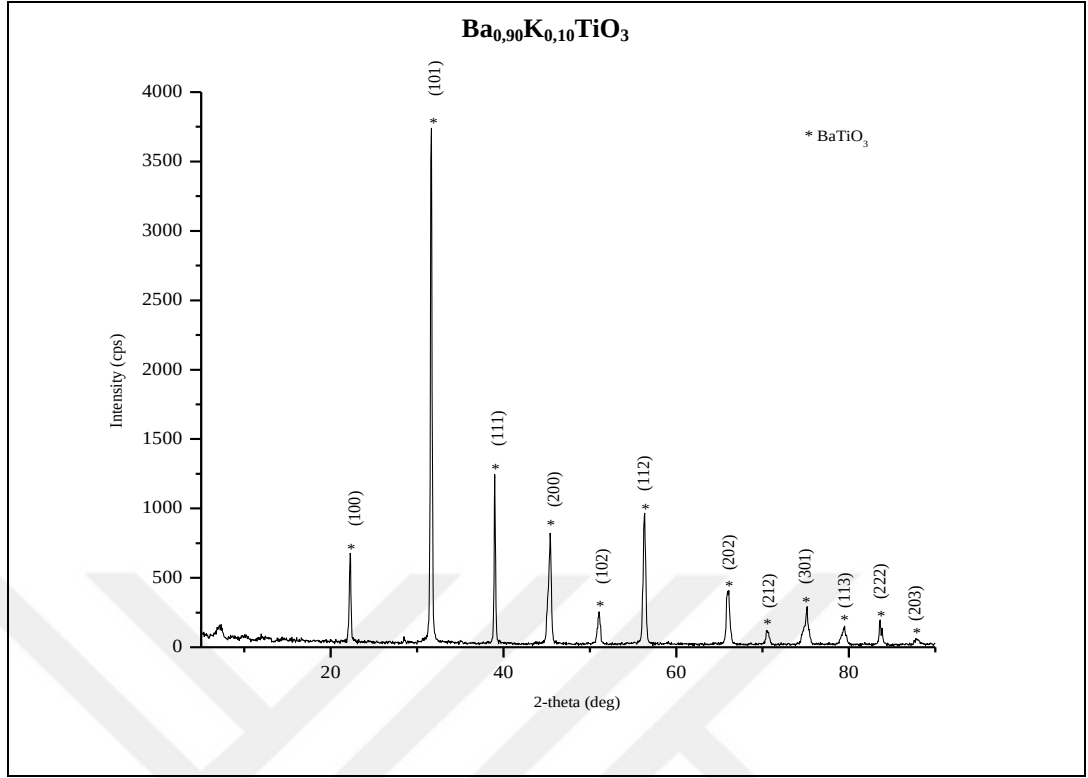
Şekil 4.35. Ba_{1-x}K_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve K₂CO₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



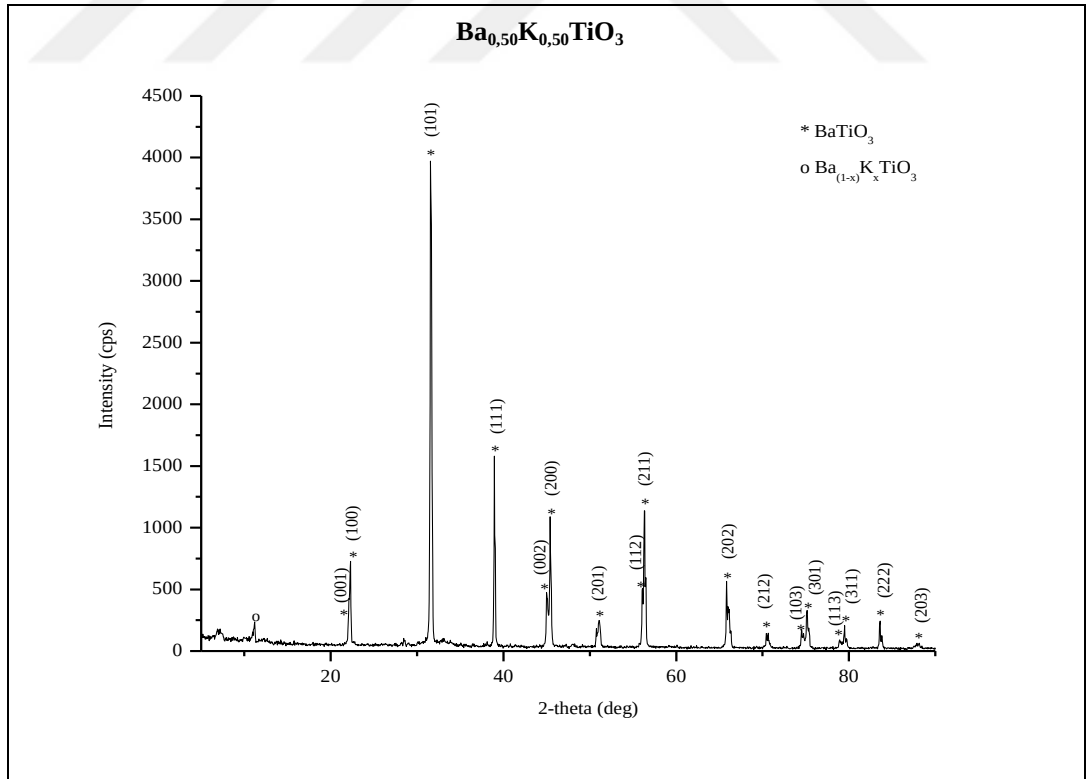
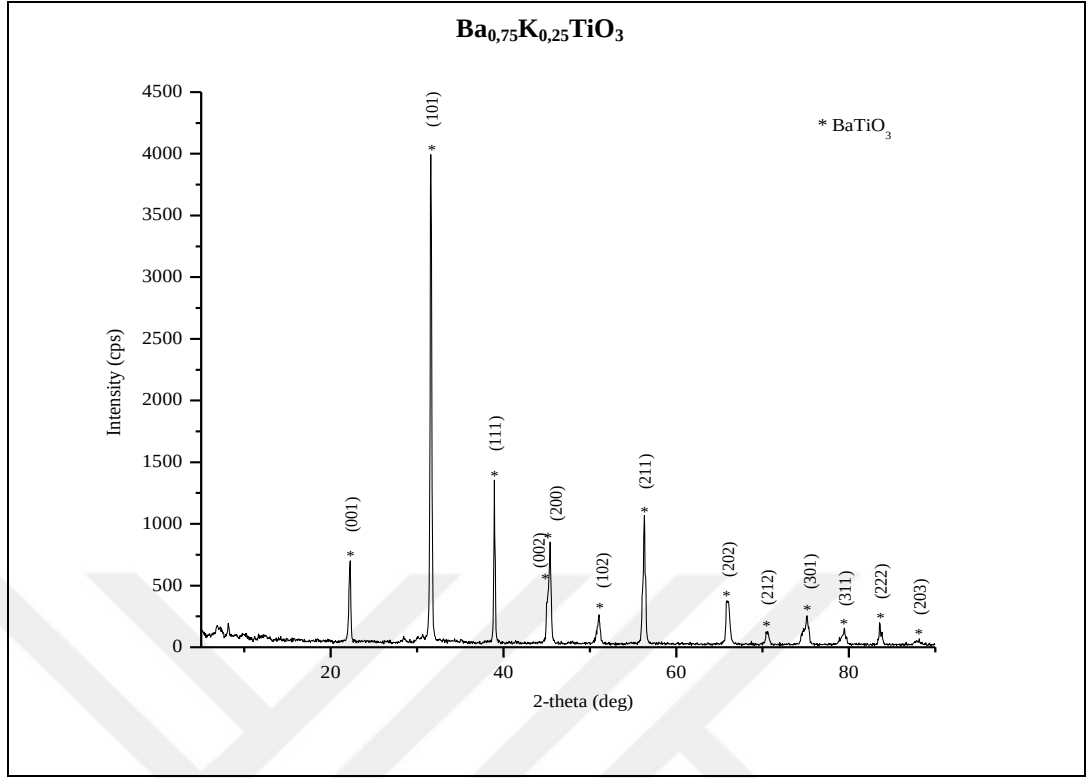
Şekil 4.35. (Devam) Ba_{1-x}K_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve K₂CO₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



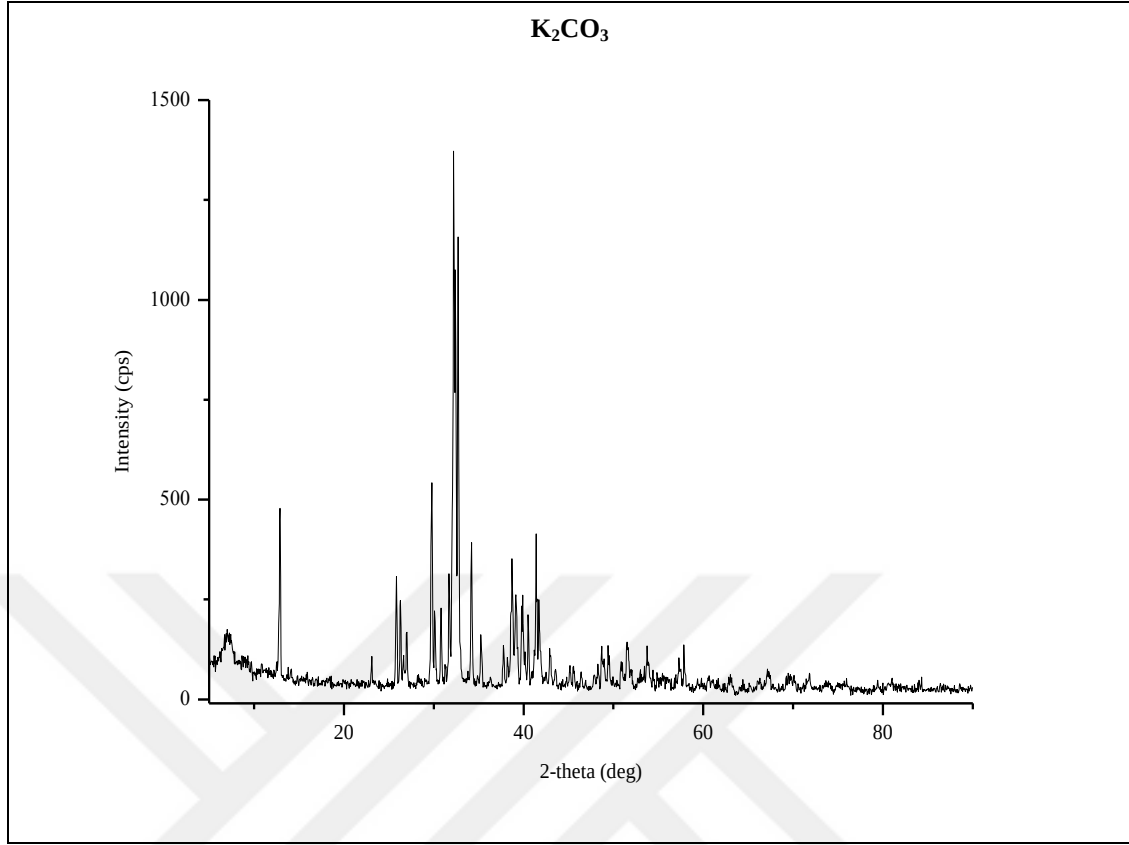
Şekil 4.35. (Devam) Ba_{1-x}K_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve K₂CO₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



Şekil 4.35. (Devam) Ba_{1-x}K_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve K₂CO₃ bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı

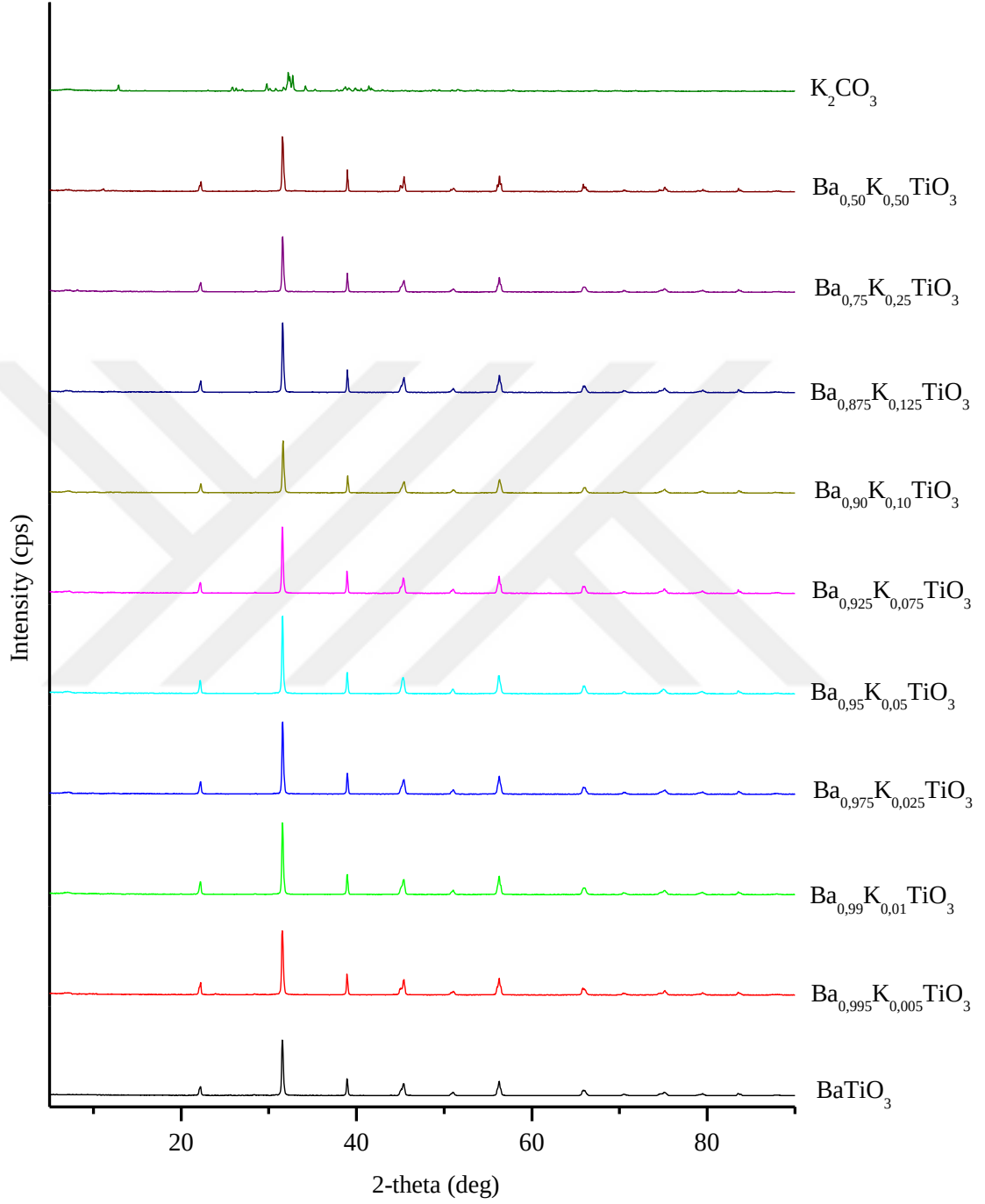


Şekil 4.35. (Devam) Ba_{1-x}K_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve K₂CO₃ bileşiğine ait XRD diyagramları

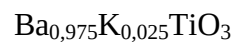
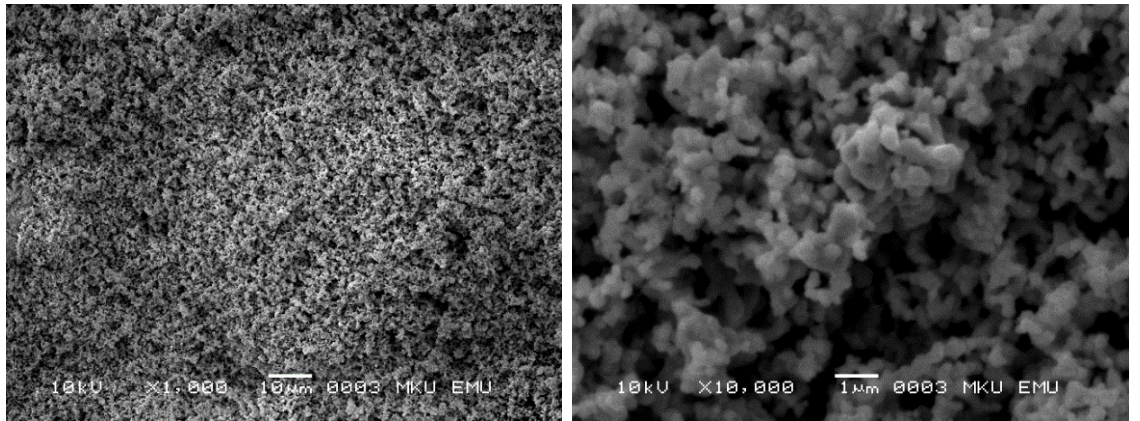
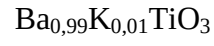
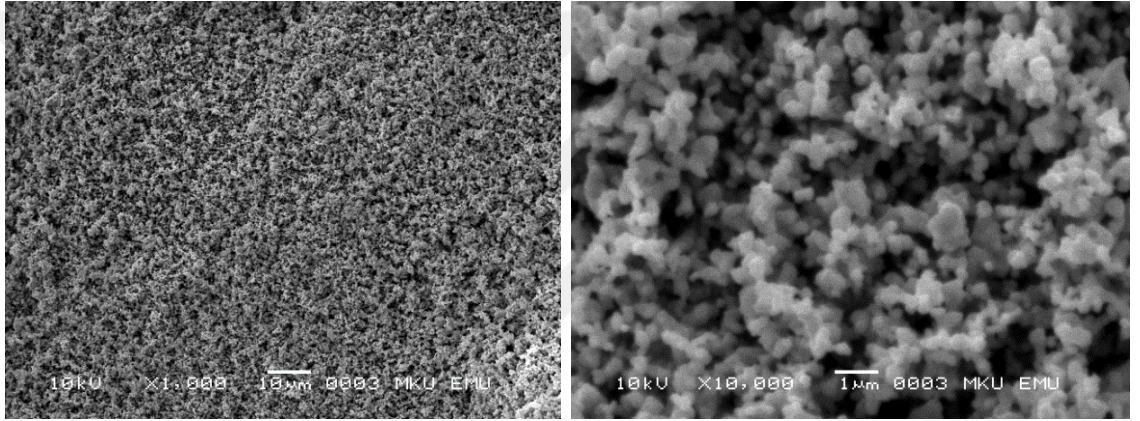
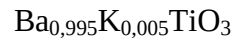
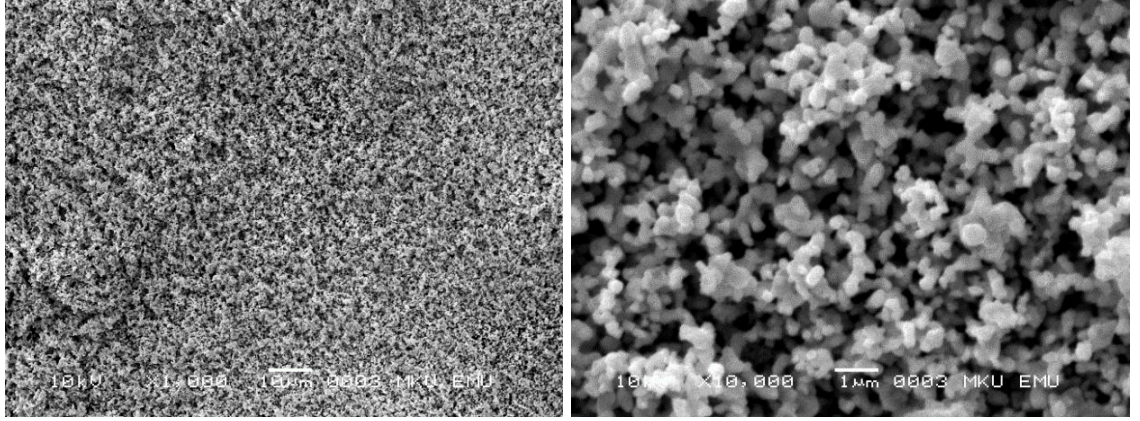


Şekil 4.35. (Devam) $Ba_{1-x}K_xTiO_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve K_2CO_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı

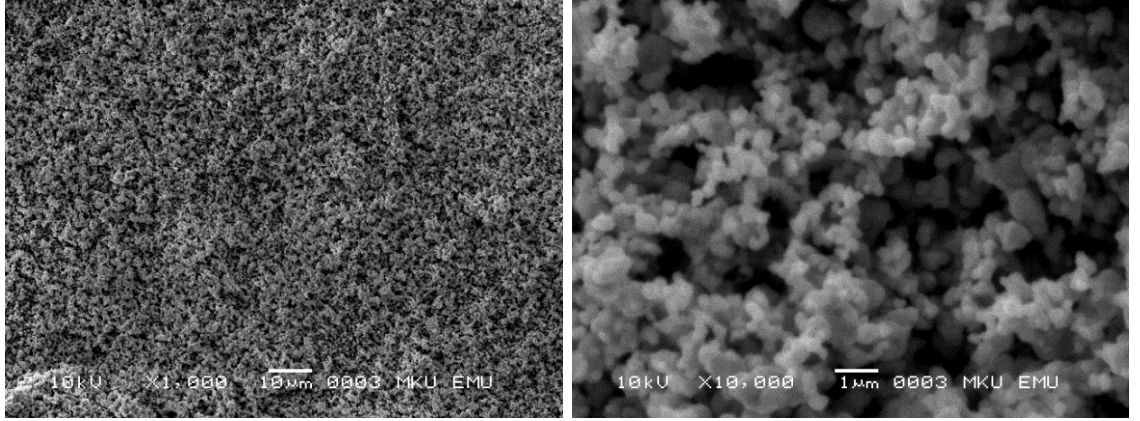
Katı hal sentez yöntemiyle sentezlenen seramik yapıların XRD kırınım desenleri incelendiğinde; 0,005 mol K katkısında kristal yapıda herhangi bir değişim gözlenmemiş, potasyuma ait piklere rastlanılmamıştır. Yapıya 0,01 mol ve daha yüksek miktarlarda potasyum katkılандığında katkısız baryum titanatın XRD diyagramında ki 45° ve 56° açı değerlerindeki piklerde var olan yarılmalara kaybolmuştur. Katkı miktarı 0,50 mol iken $11,18^\circ$ de oluşan yapıya ait yeni bir pik oluşumu gözlenmiş; 45° , 51° , 56° ve 65° açı değerlerindeki piklerde tekrar ikiye yarılmalara meydana gelmiştir. 0,5 mol K_2CO_3 katkısından sonra yeni bir kristal yapı fazının oluşmaya başladığı; kübik kristal yapıdan tetragonal kristal yapıya dönüşüm olduğu görülmüştür (Pisitpipathsin ve ark., 2015).



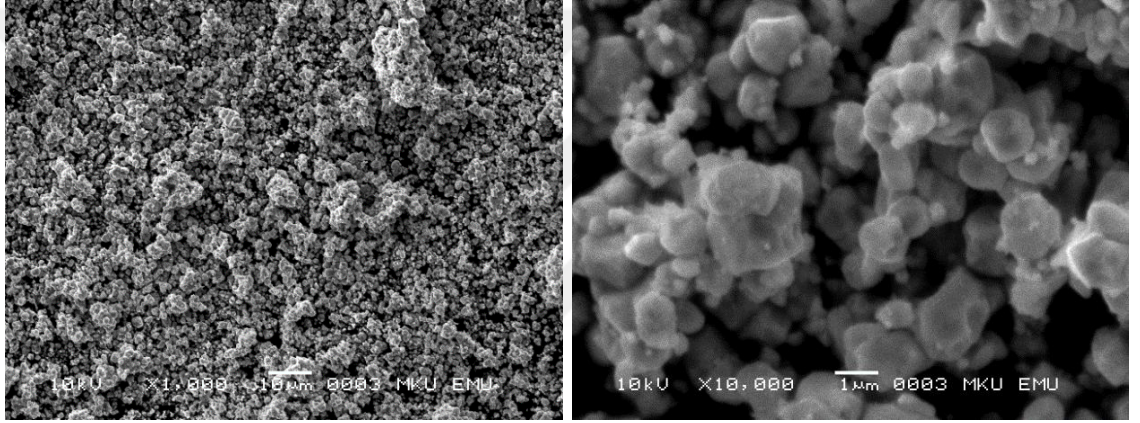
Şekil 4.36. $Ba_{1-x}K_xTiO_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve K_2CO_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı



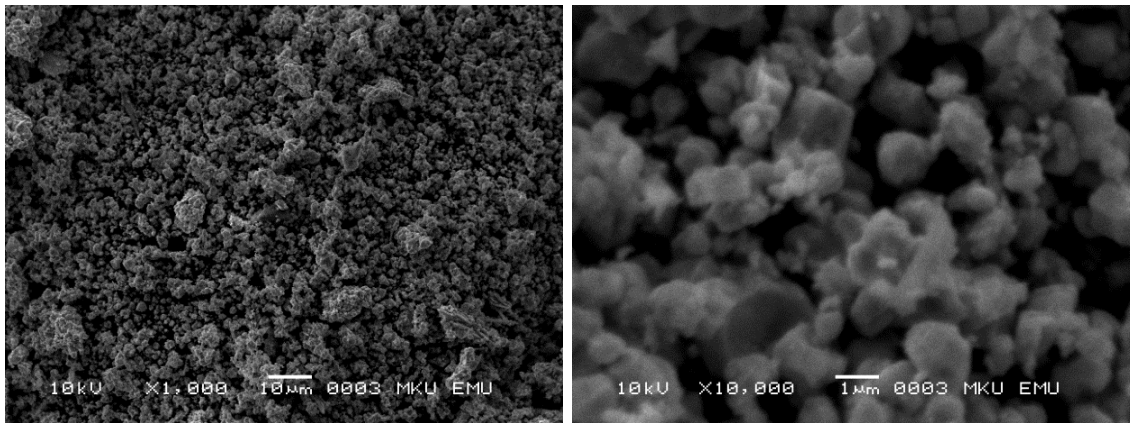
Şekil 4.37. $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



$\text{Ba}_{0,95}\text{K}_{0,05}\text{TiO}_3$

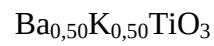
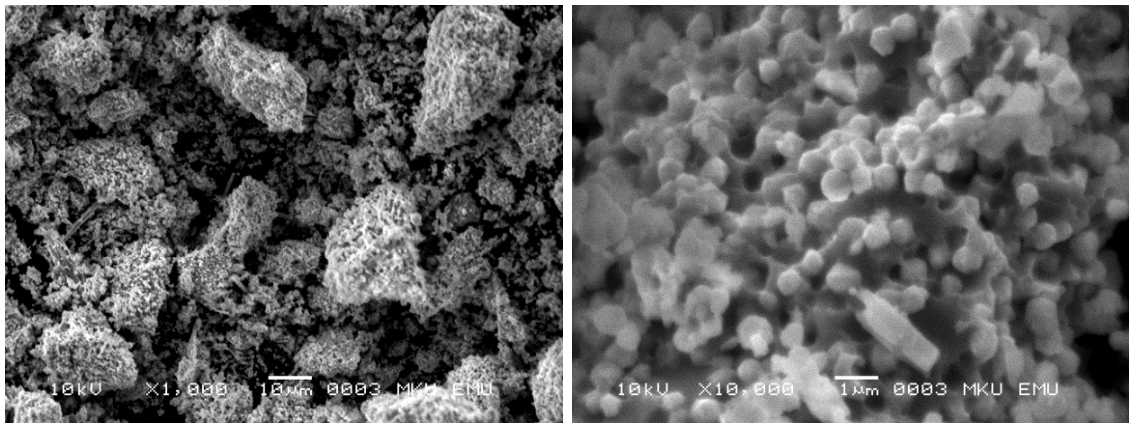
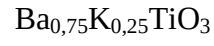
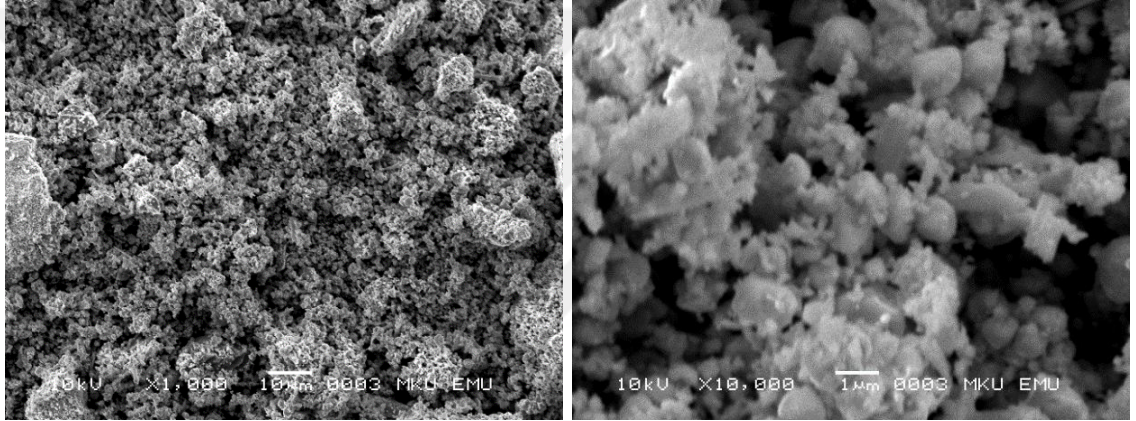
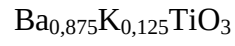
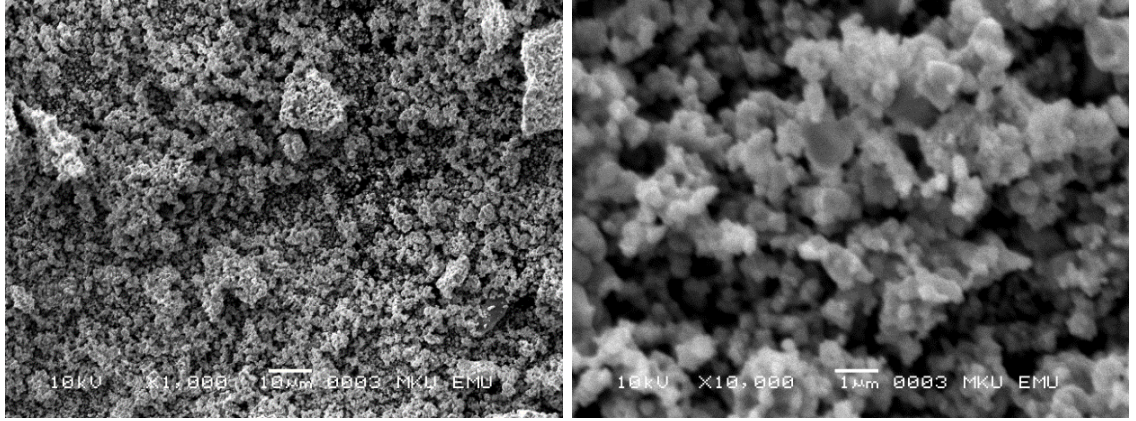


$\text{Ba}_{0,925}\text{K}_{0,075}\text{TiO}_3$

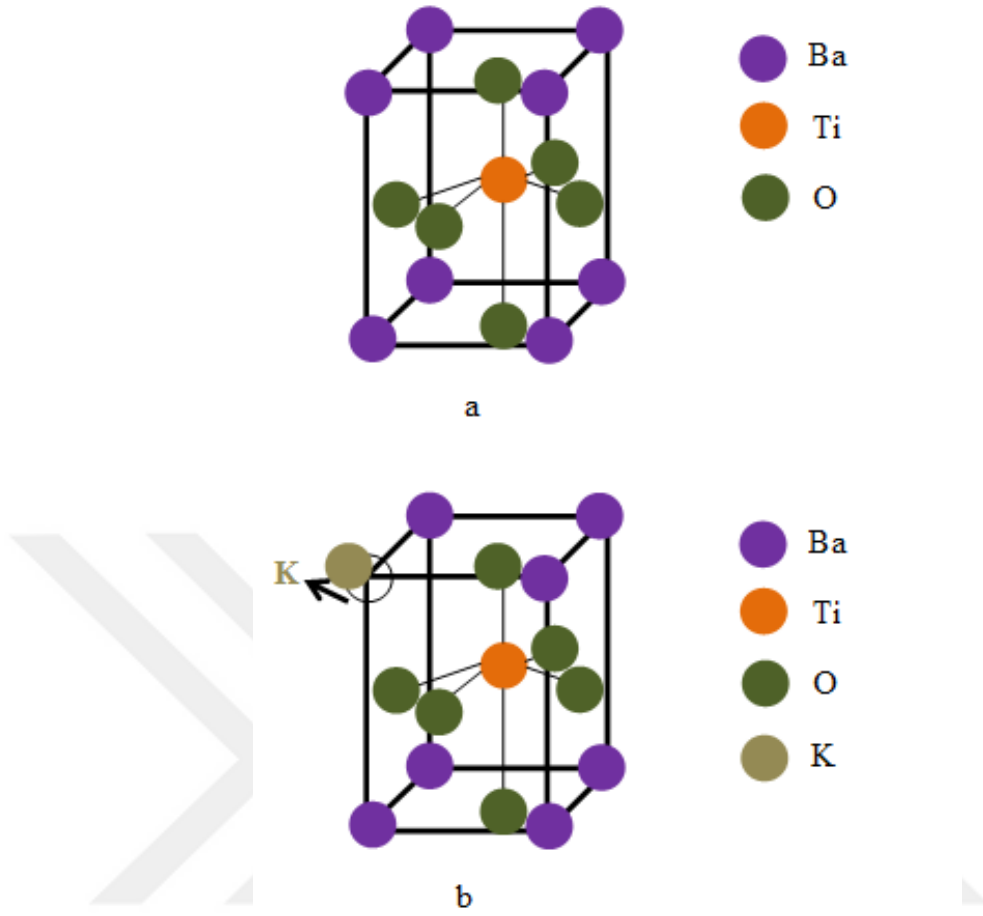


$\text{Ba}_{0,90}\text{K}_{0,10}\text{TiO}_3$

Şekil 4.37. (Devam) $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ait SEM görüntüleri



Şekil 4.37. (Devam) $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ait SEM görüntüler



Şekil 4.38. a) Tetragonal kristal yapı (BaTiO₃ seramiği kafes yapısı) b) K₂CO₃ katkılı BaTiO₃ seramiğinde K iyonuyl Ba iyonunun yer değişimi

Potasyum iyonunun katkılanmasıyla elde edilen yapılarda taneciklerin yönelimleri katkı miktarına bağlı olarak değişmektedir. Ba_{0,995}K_{0,005}TiO₃, Ba_{0,99}K_{0,01}TiO₃, Ba_{0,90}K_{0,10}TiO₃, Ba_{0,875}K_{0,125}TiO₃, Ba_{0,50}K_{0,50}TiO₃ yapılarında tetragonal yapının; Ba_{0,975}K_{0,025}TiO₃, Ba_{0,95}K_{0,05}TiO₃, Ba_{0,925}K_{0,075}TiO₃, Ba_{0,75}K_{0,25}TiO₃ yapılarında ise kübik yapının olduğu görülmüştür. Literatüre bakıldığında Pisitpipathsın ve arkadaşları 2015 yılında baryum titanat seramiğine KNbO₃ katkılanmış ve elde ettikleri yapıların fiziksel ve elektriksel özelliklerini incelemiştir. Klasik seramik sentez yöntemiyle sentezledikleri yapıların XRD analiz sonuçlarına göre katkı miktarına bağlı olarak kristal yapının kübik ve tetragonal olarak değiştiğini ifade etmişlerdir (Pisitpipathsın ve ark., 2015).

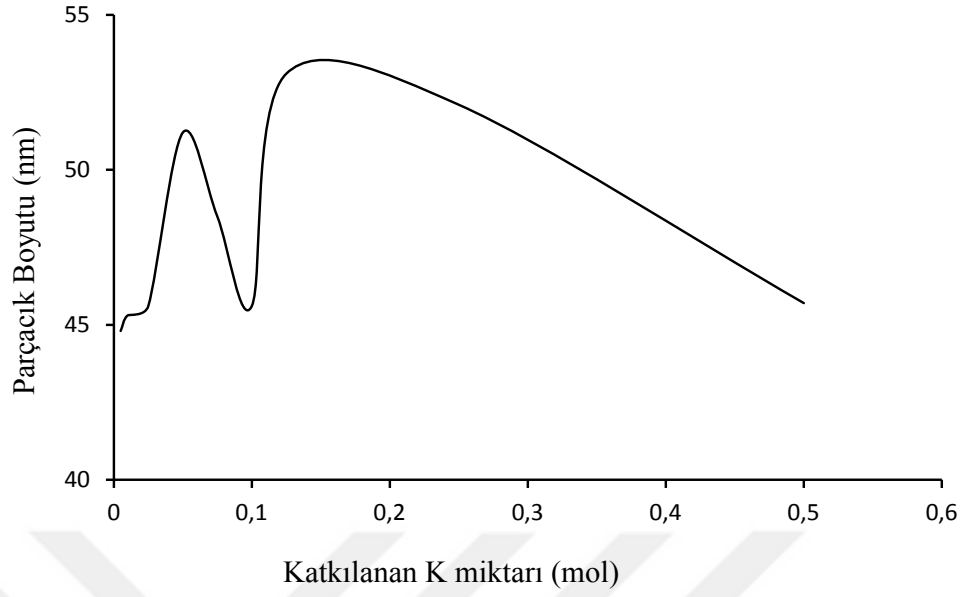
Farklı mol oranlarında potasyum katkılanan BaTiO₃ seramiklerinin her bir katkılama sonucunda elde edilen yapılarının XRD kırınım desenlerinden yararlanılarak ortalama tanecik boyutları Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ve Çizelge 4.4’de verilmiştir.

$$D = \frac{0,9 \lambda}{\beta \cos \theta} \quad \lambda = 1,5400 \text{Å} \quad (4.5)$$

Çizelge 4.4. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları

Örnek	Ortalama Tanecik Boyutu (nm)
Ba _{0,995} K _{0,005} TiO ₃	44,8
Ba _{0,99} K _{0,01} TiO ₃	45,3
Ba _{0,975} K _{0,025} TiO ₃	45,6
Ba _{0,95} K _{0,05} TiO ₃	51,2
Ba _{0,925} K _{0,075} TiO ₃	48,5
Ba _{0,90} K _{0,10} TiO ₃	45,6
Ba _{0,875} K _{0,125} TiO ₃	53,1
Ba _{0,75} K _{0,25} TiO ₃	52,1
Ba _{0,50} K _{0,50} TiO ₃	45,7

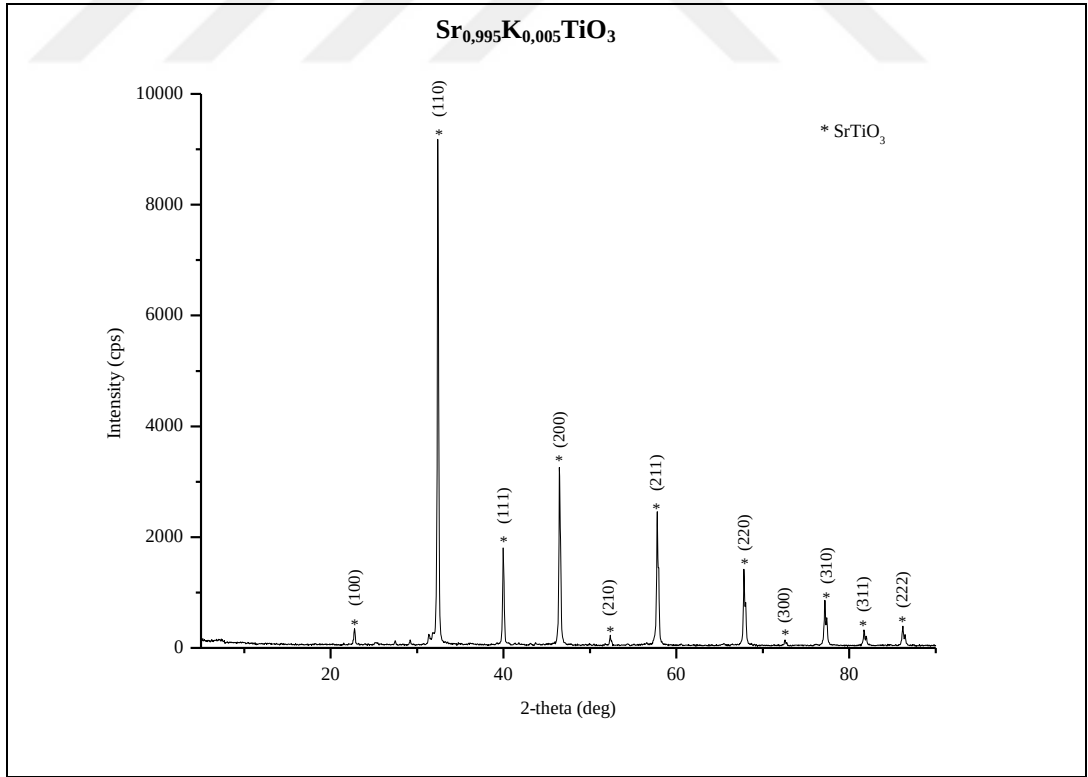
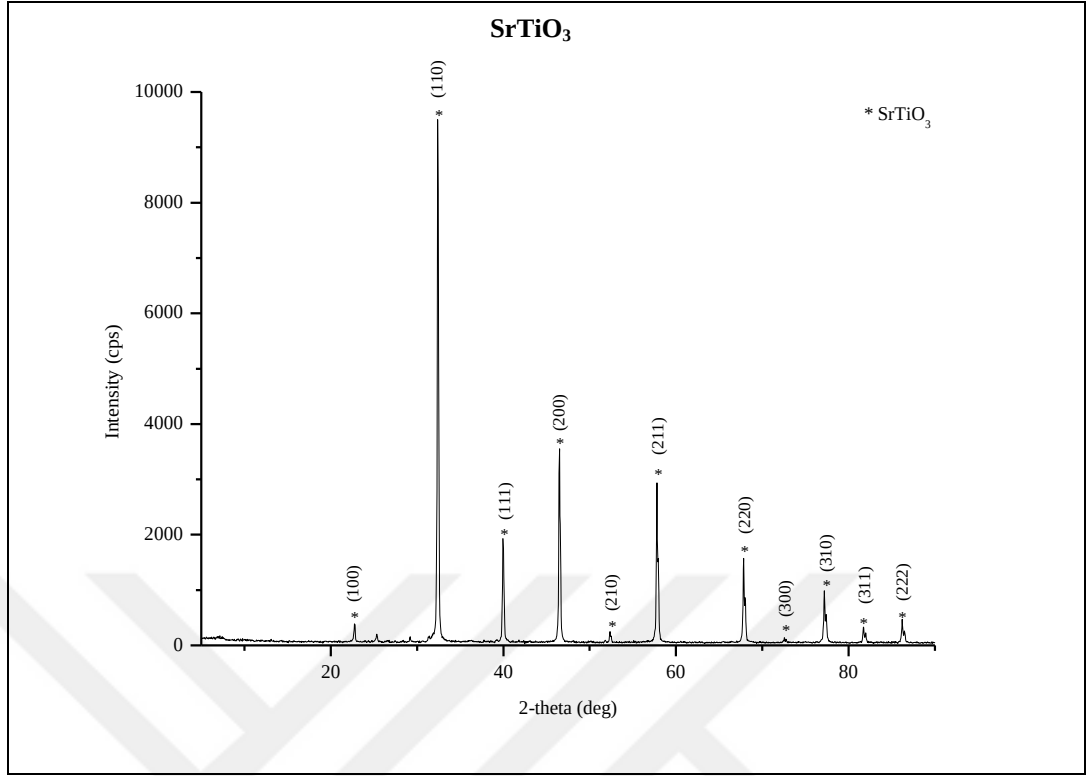
Tablodan görüldüğü üzere ortalama tanecik boyutları 44,8 – 53,1 nm aralığında değişen değerler almıştır. Katkılama miktarına bağlı olarak ortalama tanecik boyutundaki değişim Şekil 4.39’daki grafikte de gösterilmiştir.



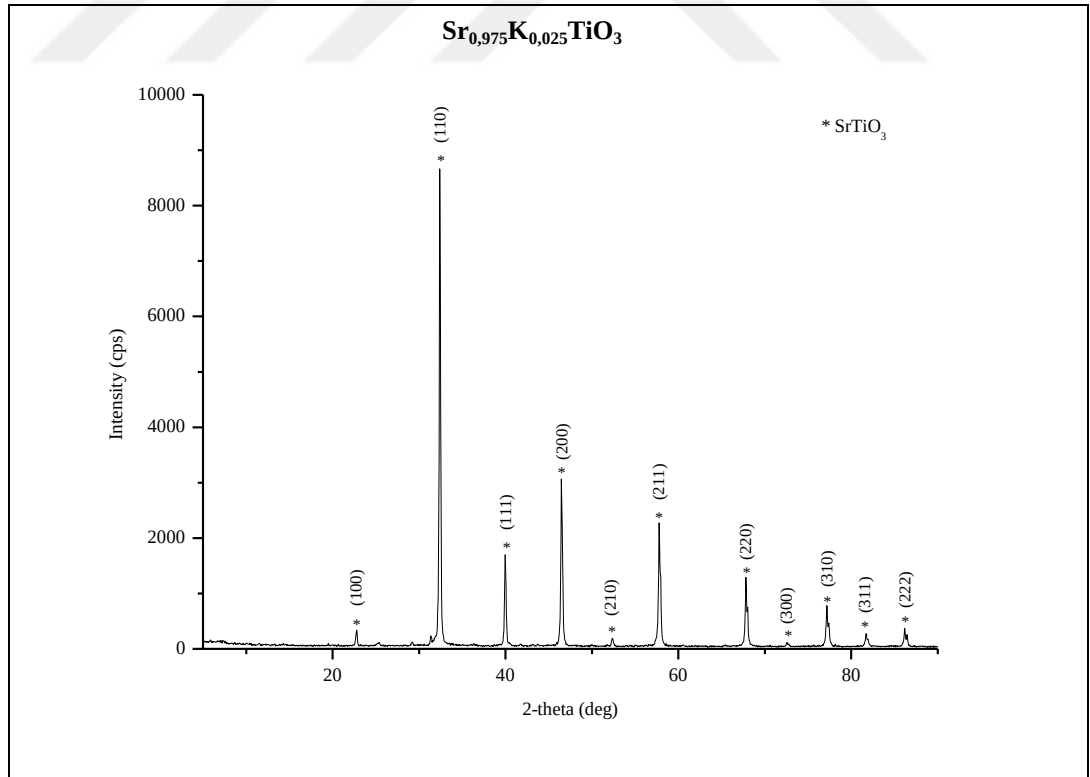
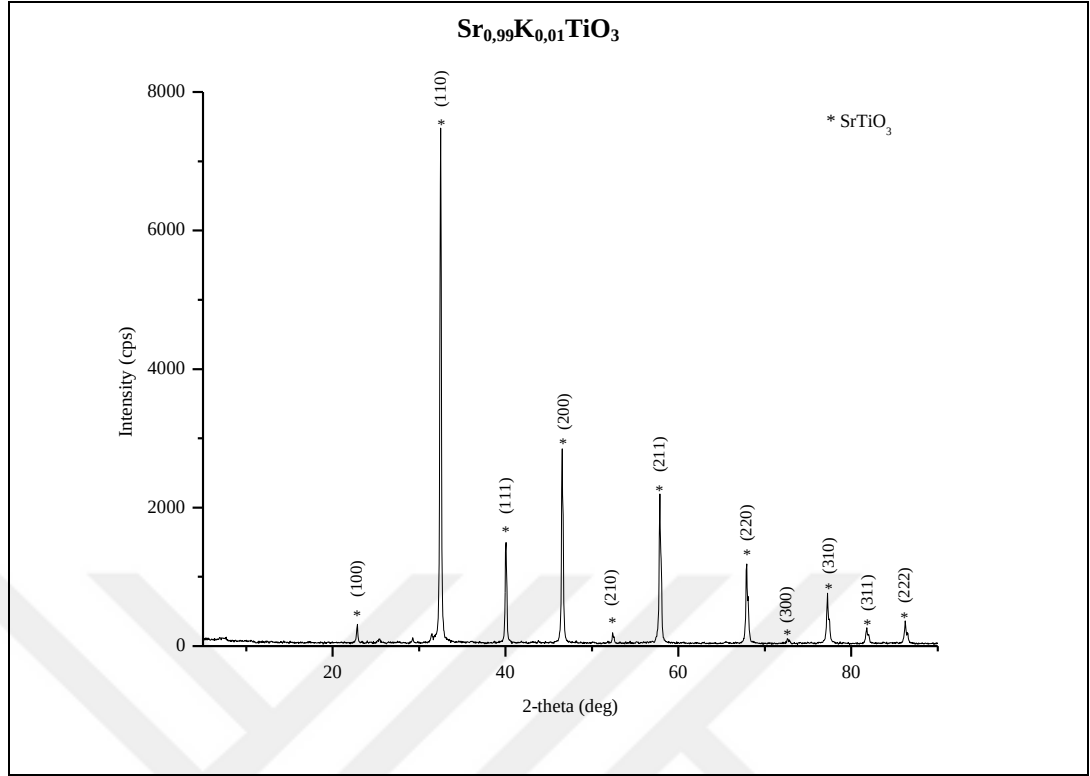
Şekil 4.39. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi

Bölüm 3.2.3.2'ye göre sentezlenen seramik yapıların ($Ba_{1-x}K_xTiO_3$; x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) XRD kırınım desenleri incelendiğinde; 0,005 mol K katkısında kristal yapıda herhangi bir değişim gözlenmemiş, yapıya 0,01 mol ve daha yüksek mol oranlarında potasyum katkılандığında XRD kırınım deseninde baryum titanata ait karakteristik piklerin şiddetinde azalma ve yeni oluşan yapılara ait piklerin meydana geldiği görülmüştür. Potasyum katkısıyla oluşan seramik yapılar tetragonal veya kübik kristal yapı fazına sahiptir. Kristal yapıyı oluşturan taneciklerin ortalama boyutları Debye Scherrer eşitliği kullanılarak 44,8 – 53,1 nm aralığında hesaplanmıştır (Pisitpipathsın ve ark., 2015).

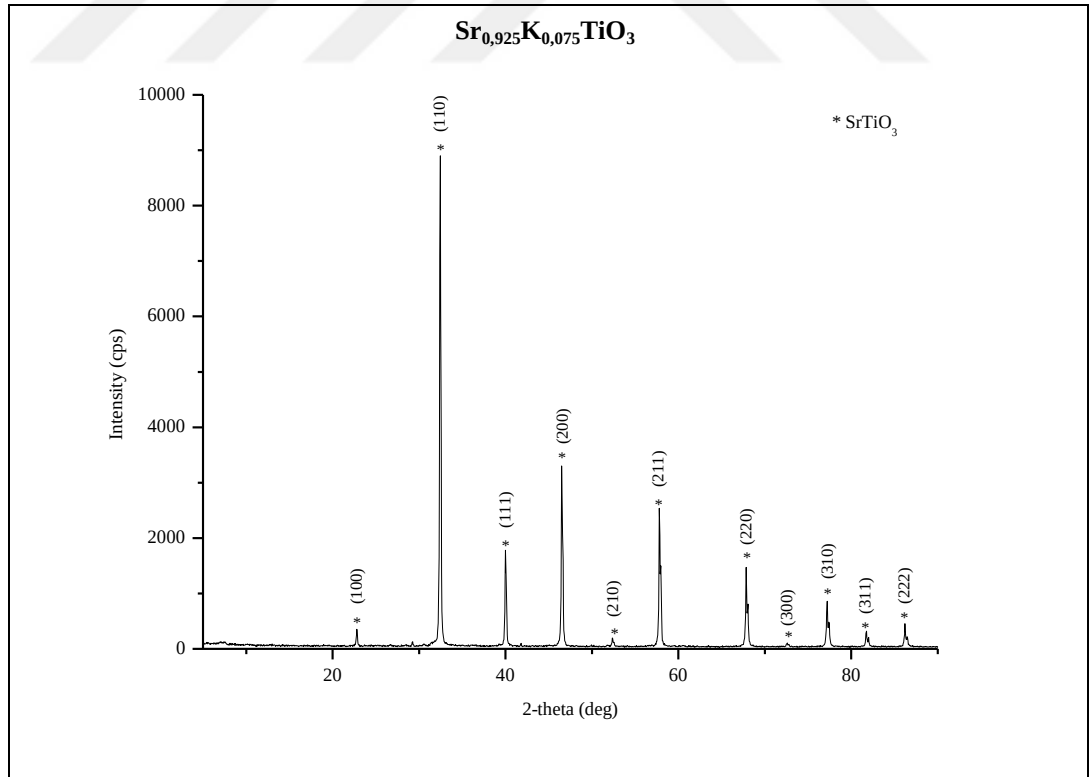
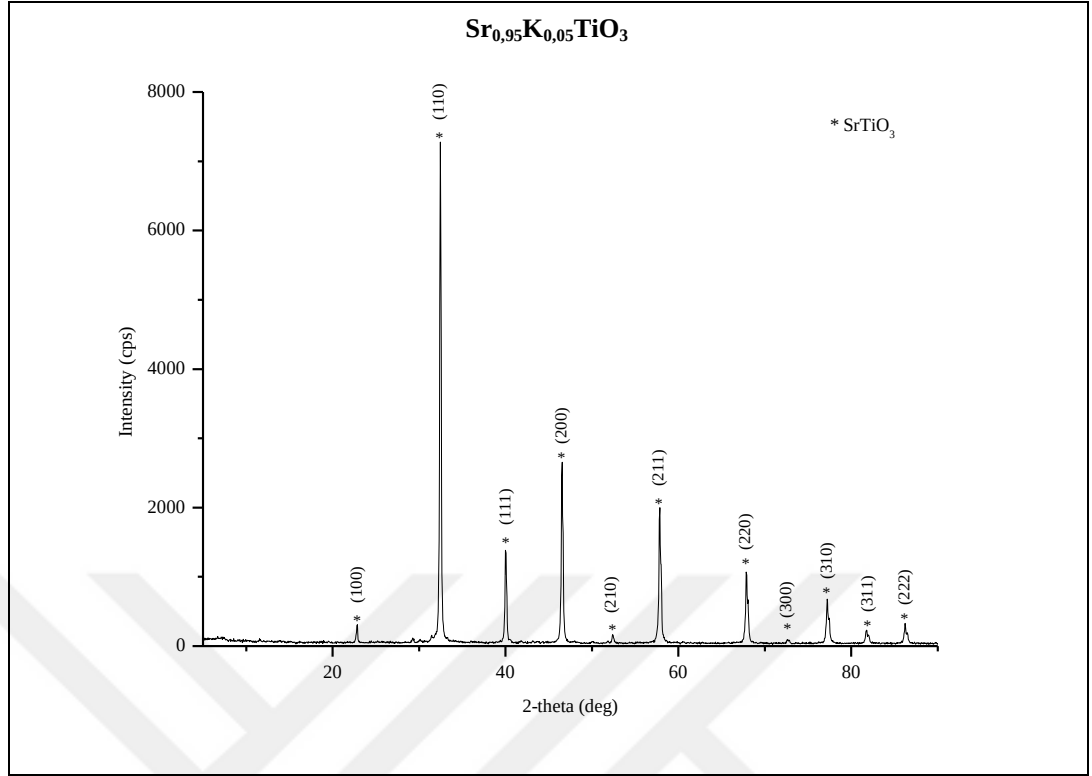
- Potasyum katkılı stronsiyum titanatın katı hal sentez yöntemiyle elde edilişi: Katı hal sentez yöntemine göre farklı mol oranlarında $Sr_{1-x}K_xTiO_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) katkılı seramik tozları bölüm 3.2.3.2'de anlatıldığı gibi sentezlenmiş ve karakterize edilmiştir. Katkılı seramik tozlarının ve katkılanan K_2CO_3 katkı maddesinin $5^\circ \leq 2\theta \leq 90^\circ$ aralığında ki X-ışını kırınım desenleri Şekil 4.40 ve Şekil 4.41'de; SEM görüntüleri ise Şekil 4.42'de görülmektedir.



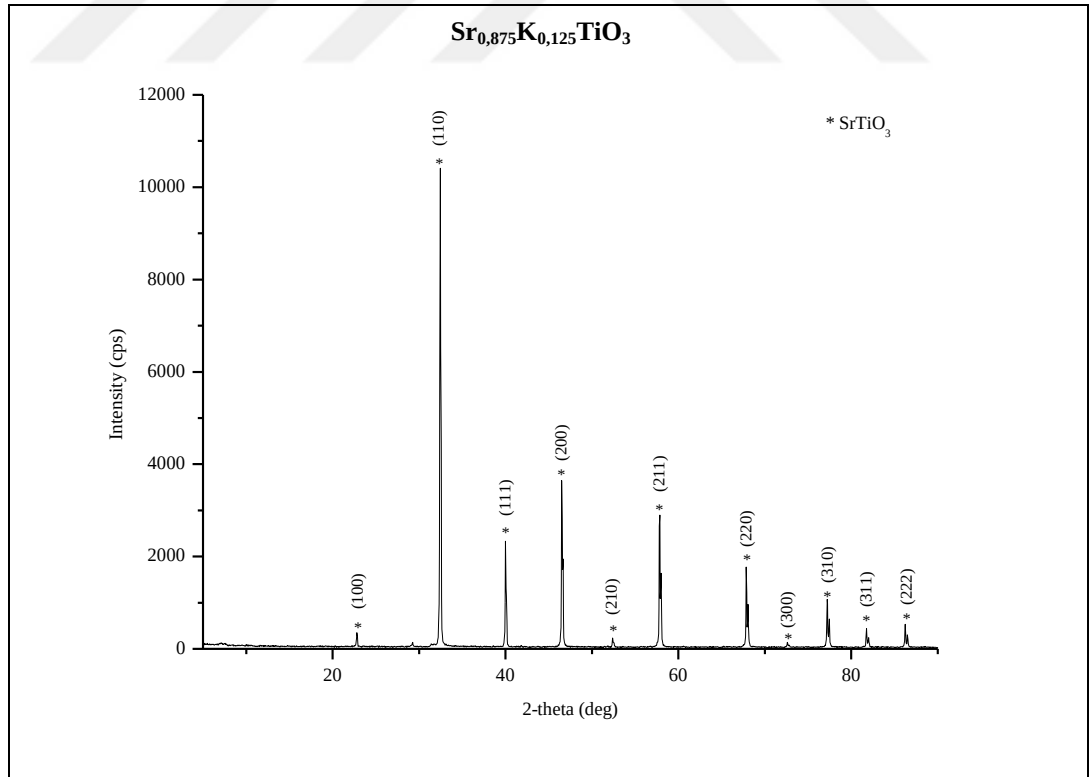
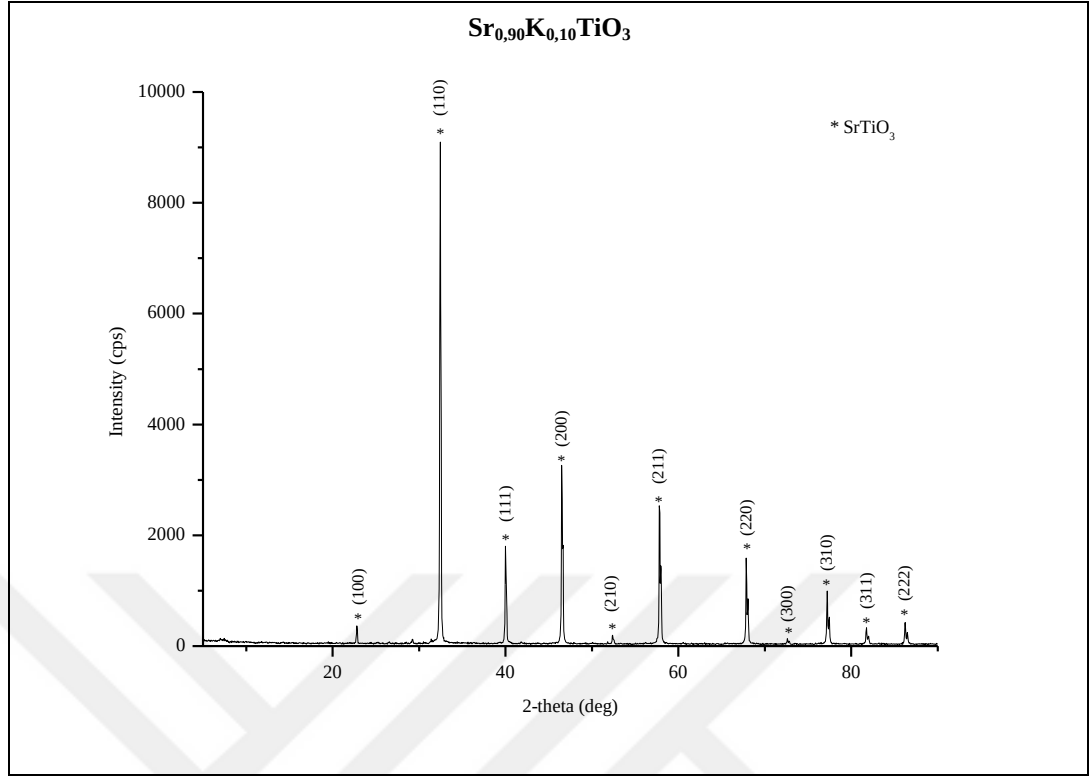
Şekil 4.40. Sr_{1-x}K_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve K₂CO₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



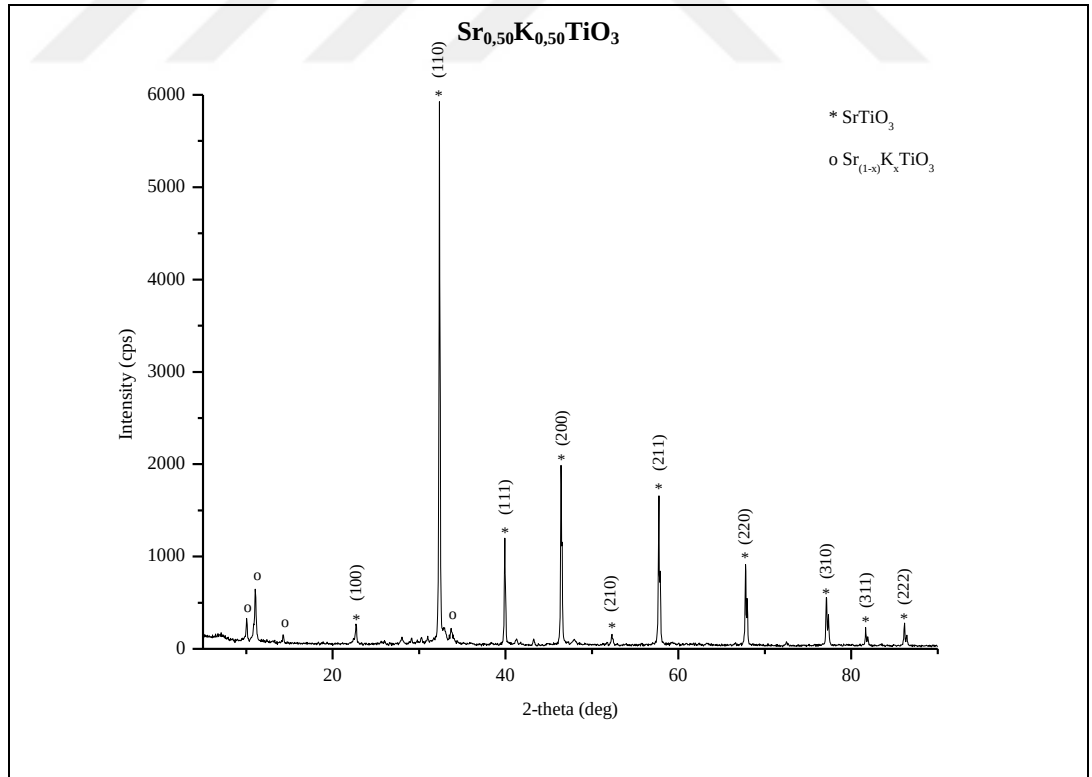
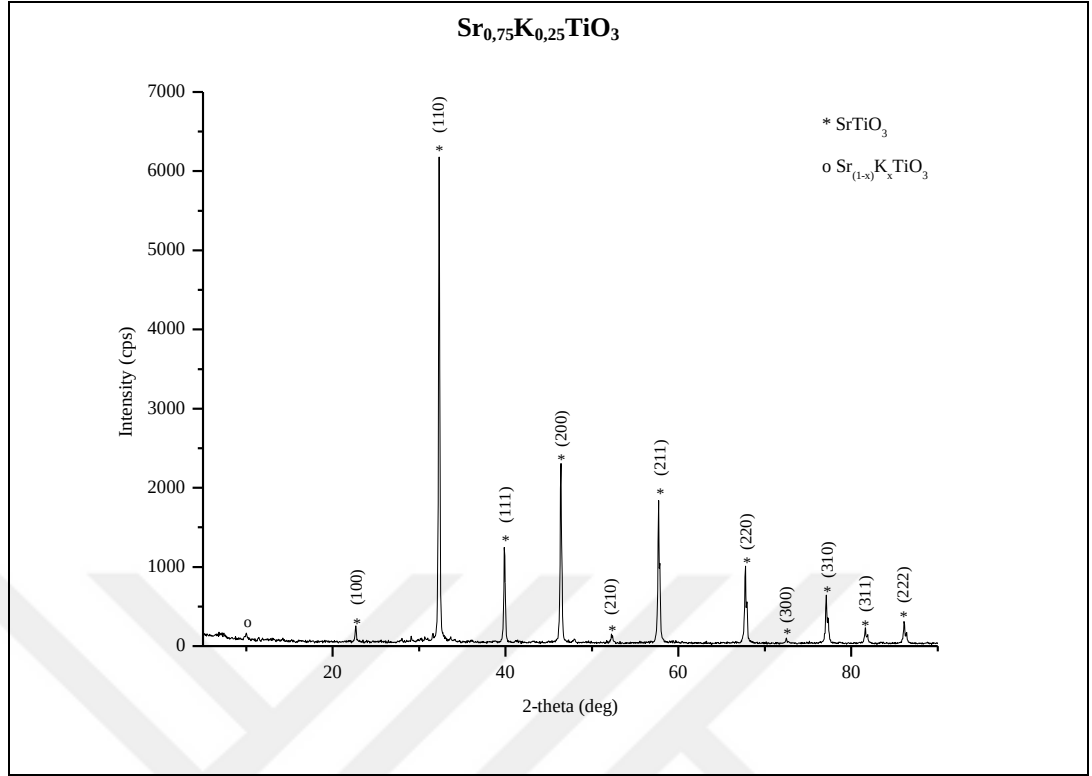
Şekil 4.40. (Devam) $\text{Sr}_{1-x}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve K_2CO_3 bileşiğine ait XRD diyagramları



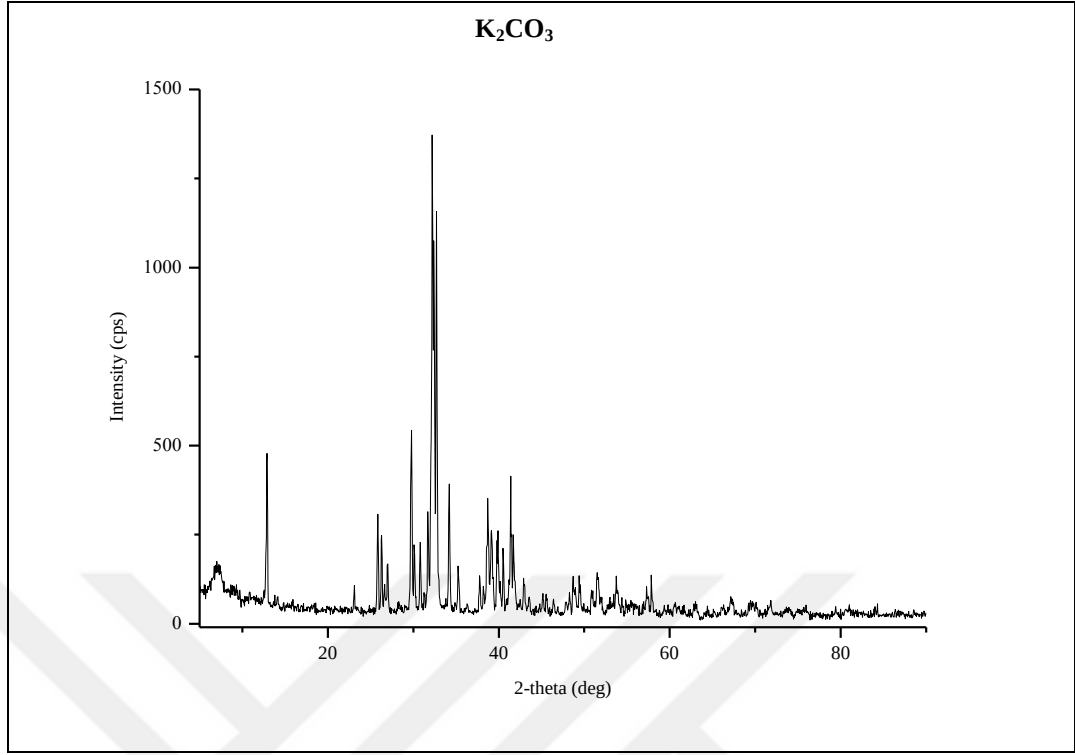
Şekil 4.40. (Devam) Sr_{1-x}K_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve K₂CO₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



Şekil 4.40. (Devam) $\text{Sr}_{1-x}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve K_2CO_3 bileşiğine ait XRD diyagramları

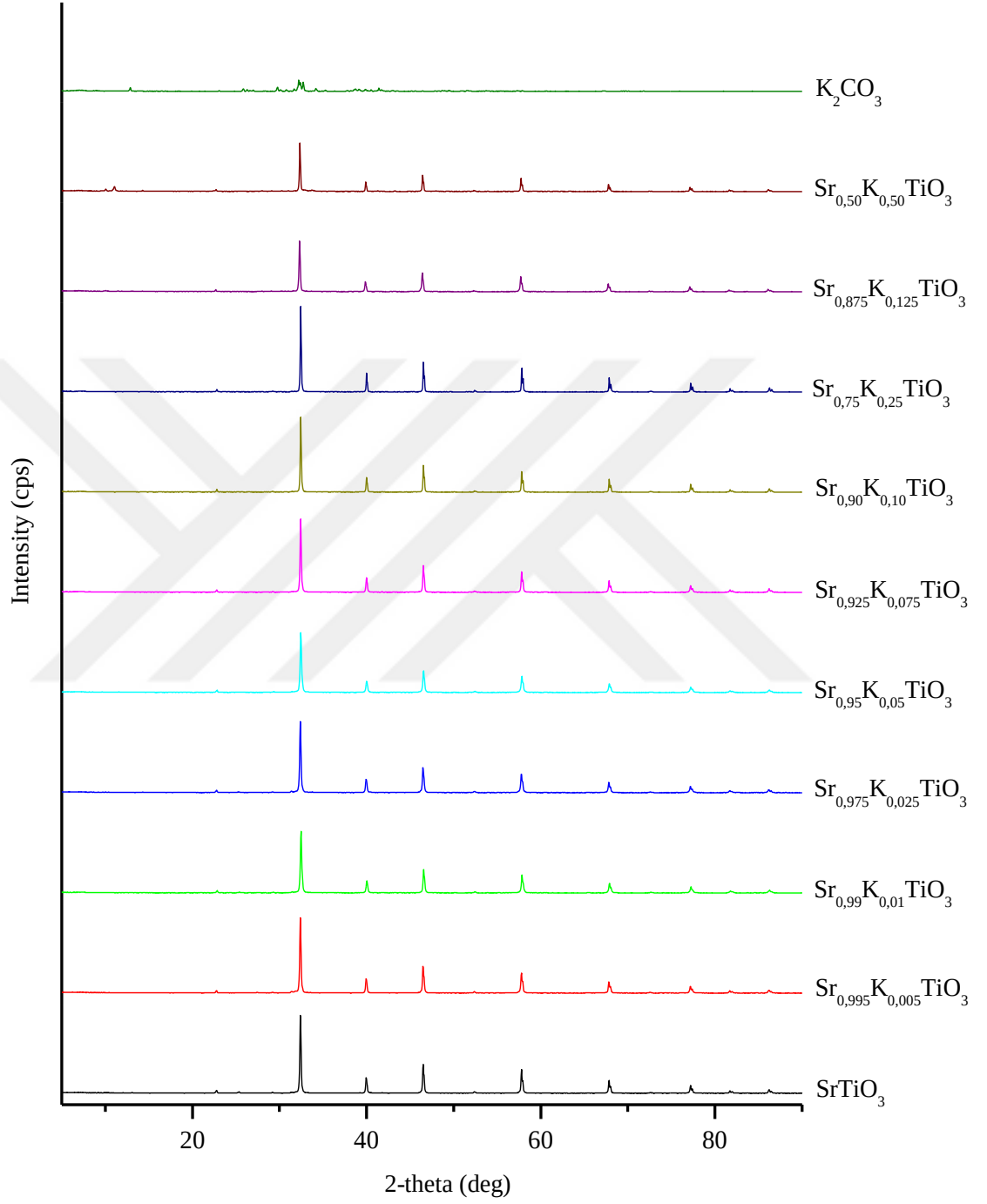


Şekil 4.40. (Devam) $\text{Sr}_{1-x}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve K_2CO_3 bileşiğine ait XRD diyagramları

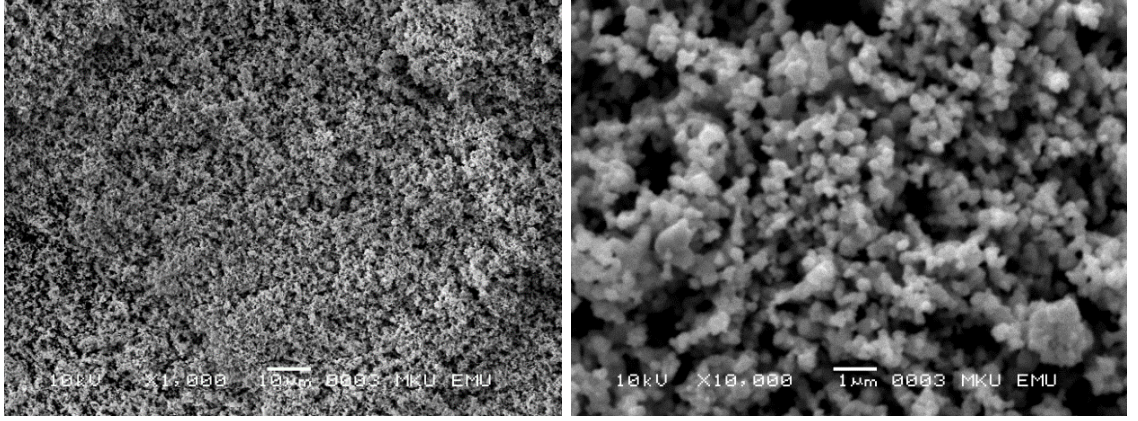


Şekil 4.40. (Devam) $\text{Sr}_{1-x}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve K_2CO_3 bileşiğine ait XRD diyagramları

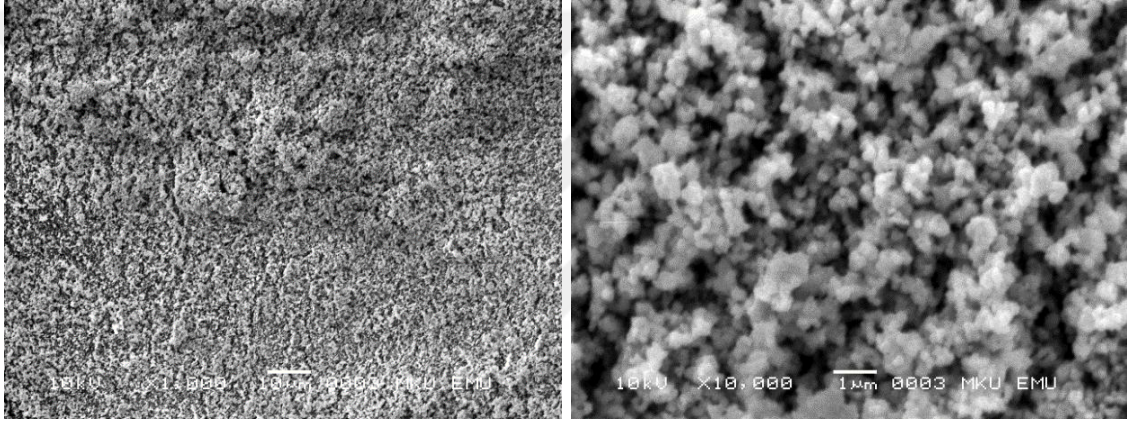
Katkısız stronsiyum titanat bileşiğine 0,005 mol, 0,01 mol, 0,025 mol ve 0,05 mol potasyum katkılандığında yapıda herhangi bir değişim gözlenmemiştir. 0,075 mol K katkısında, katkısız stronsiyum titanatın XRD diyagramında görülen 67° ve 77° açı değerlerindeki piklerdeki yarılma daha da keskinleşmiş; 57° açı değerindeki pikte ise küçük bir yarılma meydana gelmiştir. Katkı miktarı 0,10 mol olduğunda ise 46° 'deki pik ikiye ayrılmış; 67° , 77° ve 57° açı değerlerindeki piklerde 0,075 mol K katkılандığı zaman gözlenen yarılma keskinliği katkı miktarının artmasıyla daha da artmıştır. 0,25 mol K katkılандığın da 7° açı değerinde küçük bir pik oluşumu başlamıştır. 0,50 mol K katkısı ile 10° , 11° , 14° ve 33° açı değerlerinde potasyuma ait pikler görülmektedir. Katkı miktarındaki artışa bağlı olarak kristal yapıda meydana gelen değişme katkısız stronsiyum titanat yapısının potasyum katkısıyla birlikte deforme olduğunu göstermektedir. Literatüre bakıldığında Li ve arkadaşları stronsiyum titanata farklı mol oranlarında (% 0; 0,5; 1; 5; 8) holmiyum iyonunu katı hal sentez yöntemini kullanarak katkılarını yapmışlardır. Holmiyum iyonunu stronsiyum titanat yapısında potasyum iyonu gibi stronsiyum iyonu ile yer değiştirdiğini; XRD sonuçlarının ise yapıda holmiyum iyonuna ait yeni bir pik oluşumunu gösterdiğini belirtmişlerdir (Li ve ark., 2015).



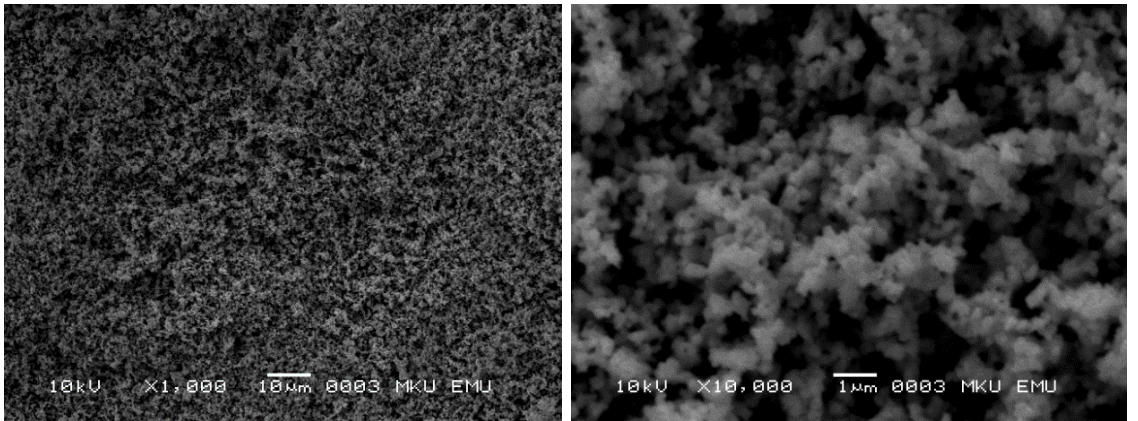
Şekil 4.41. $Sr_{1-x}K_xTiO_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve K_2CO_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı



$\text{Sr}_{0.995}\text{K}_{0.005}\text{TiO}_3$

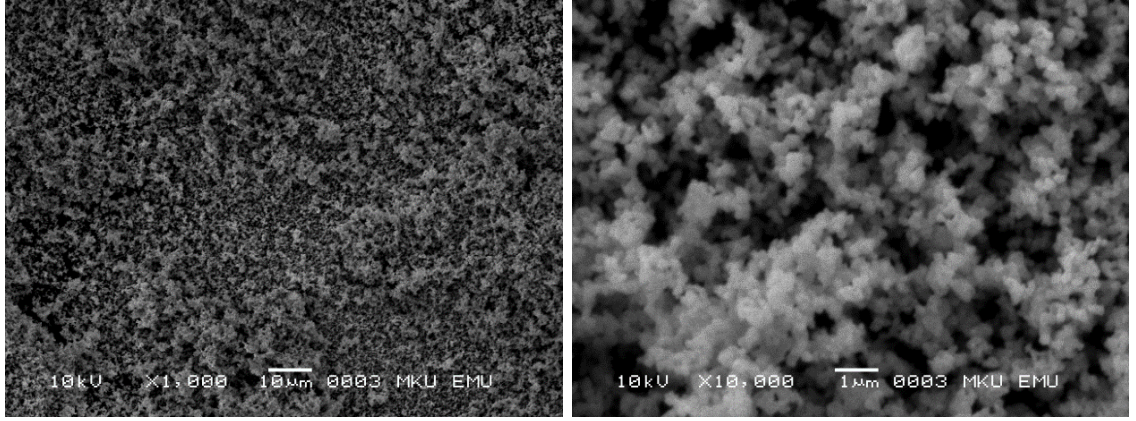


$\text{Sr}_{0.99}\text{K}_{0.01}\text{TiO}_3$

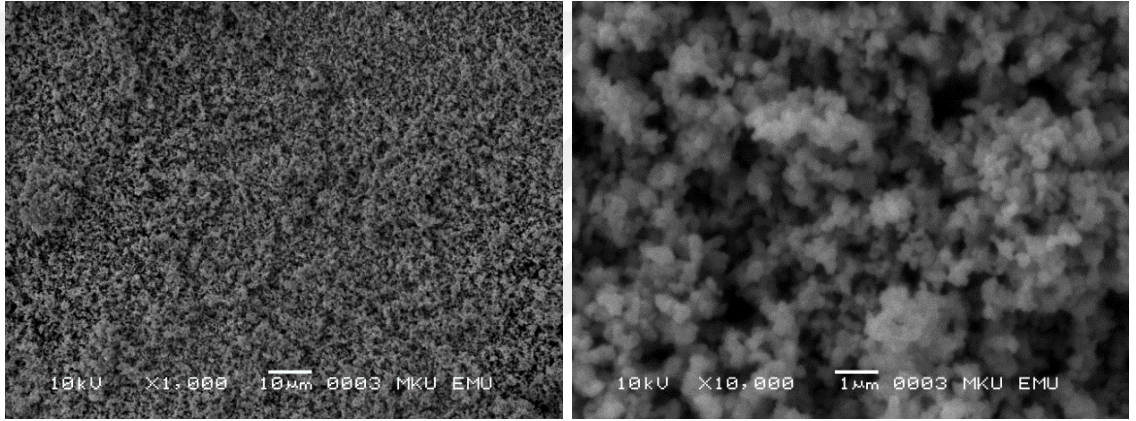


$\text{Sr}_{0.975}\text{K}_{0.025}\text{TiO}_3$

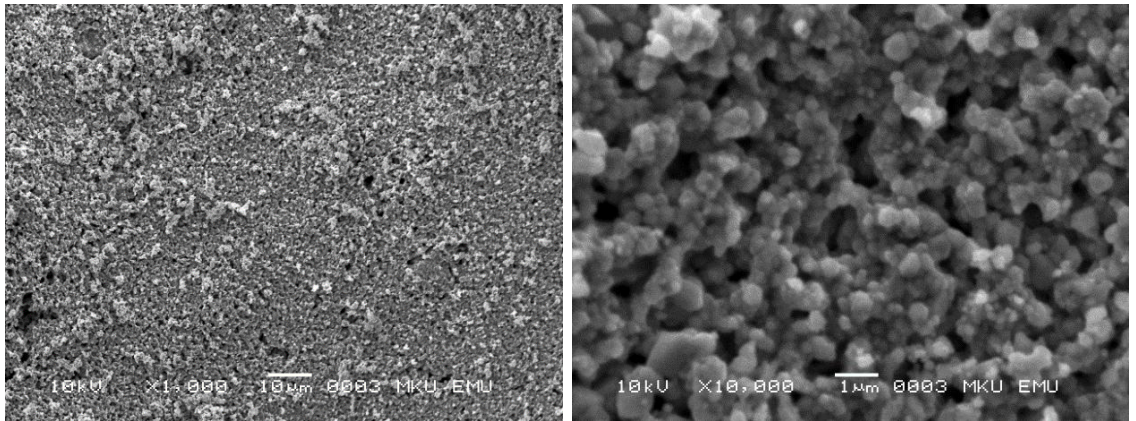
Şekil 4.42. $\text{Sr}_{1-x}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



$\text{Sr}_{0,95}\text{K}_{0,05}\text{TiO}_3$

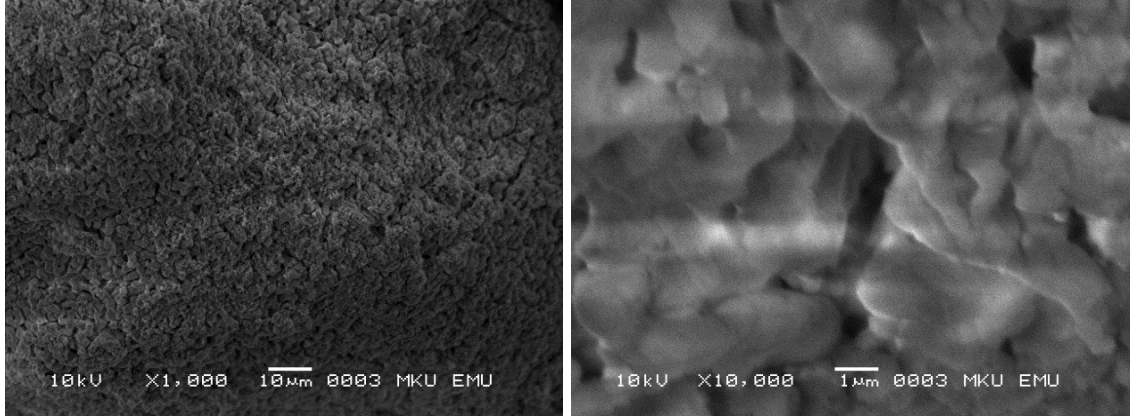


$\text{Sr}_{0,925}\text{K}_{0,075}\text{TiO}_3$

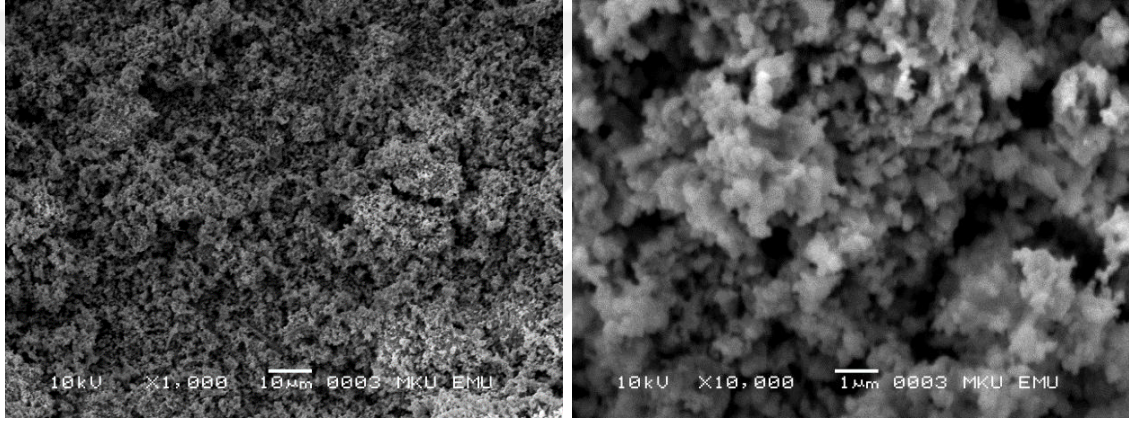


$\text{Sr}_{0,90}\text{K}_{0,10}\text{TiO}_3$

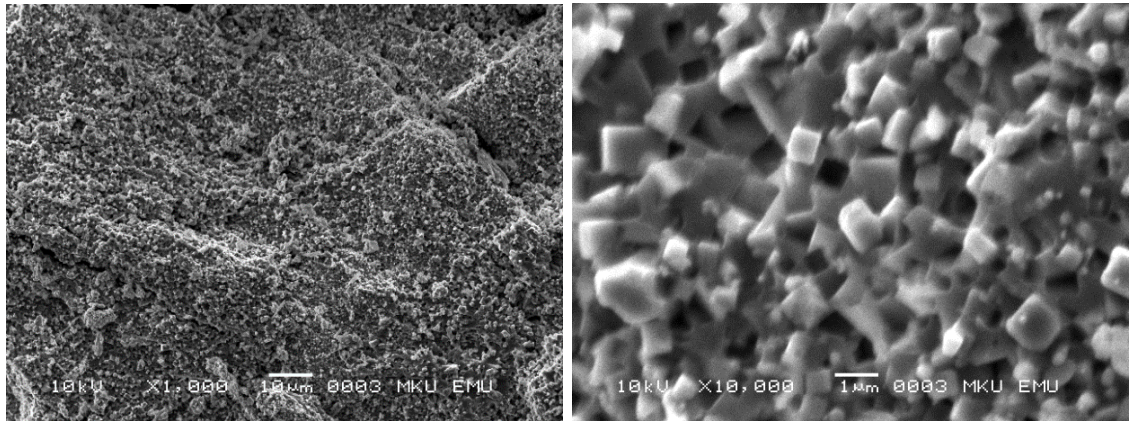
Şekil 4.42. (Devam) $\text{Sr}_{1-x}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



$\text{Sr}_{0,875}\text{K}_{0,125}\text{TiO}_3$

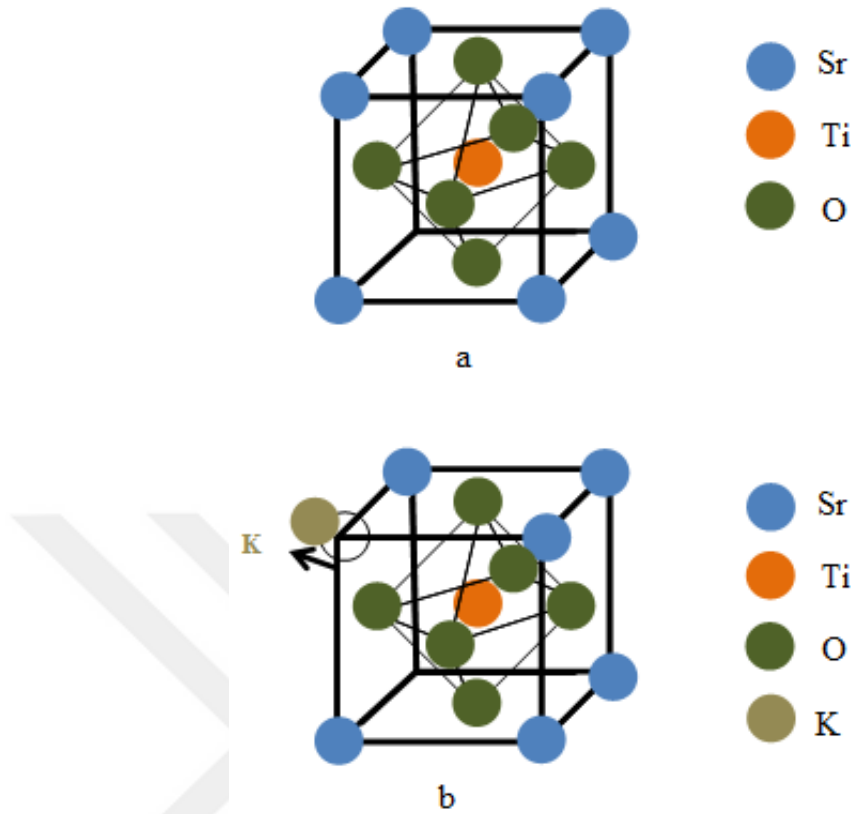


$\text{Sr}_{0,75}\text{K}_{0,25}\text{TiO}_3$



$\text{Sr}_{0,50}\text{K}_{0,50}\text{TiO}_3$

Şekil 4.42. (Devam) $\text{Sr}_{1-x}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ait SEM görüntüleri



Şekil 4.43. a) Kübik kristal yapı (SrTiO₃ seramiği kafes yapısı) b) K₂CO₃ katkılı SrTiO₃ seramiğinde K iyonu ile Sr iyonunun yer değişimi

Katı hal sentez yöntemiyle farklı mol oranlarında üretilen Sr_{1-x}K_xTiO₃ bileşiklerinin SEM görüntüleri incelendiğinde yapıyı oluşturan taneciklerin kristal yapı içerisinde homojen bir şekilde dağıldığı görülmüştür. Stronsiyum titanat yapısına katkılanan K₂CO₃ bileşiği monoklinik kristal yapı fazına, stronsiyum titanat ise kübik kristal yapı fazına sahiptir. Katkısız stronsiyum titanat katkılanmasıyla elde edilen seramik yapılarda kübik yapı fazı meydana gelmiş; yüksek mol oranlarında K₂CO₃ bileşiği katkılanmasına rağmen monoklinik yapı fazı oluşmamıştır. Monoklinik yapıda kübik yapıda olduğu gibi α ve γ açıları birbirine eşit ve 90° iken, β açısı 90° değildir. β açısında meydana gelen bu değişimden dolayı yapının kenar uzunlukları da birbirine eşit olmamaktadır. Stronsiyum titanata yapılan K₂CO₃ katkısı ile stronsiyum iyonunun yerine potasyum iyonu geçmiş, fakat kristal yapıda açısal bir değişime neden olamamıştır.

Literatüre bakıldığında Li ve arkadaşları stronsiyum titanata holmiyum iyonunu katkılayarak elde ettikleri seramik örneklerinin difraksiyon piklerini inceleyerek tüm yapılarda stronsiyum titanatın kübik faz yapısının hakim olduğunu ifade etmişlerdir (Li ve ark., 2015).

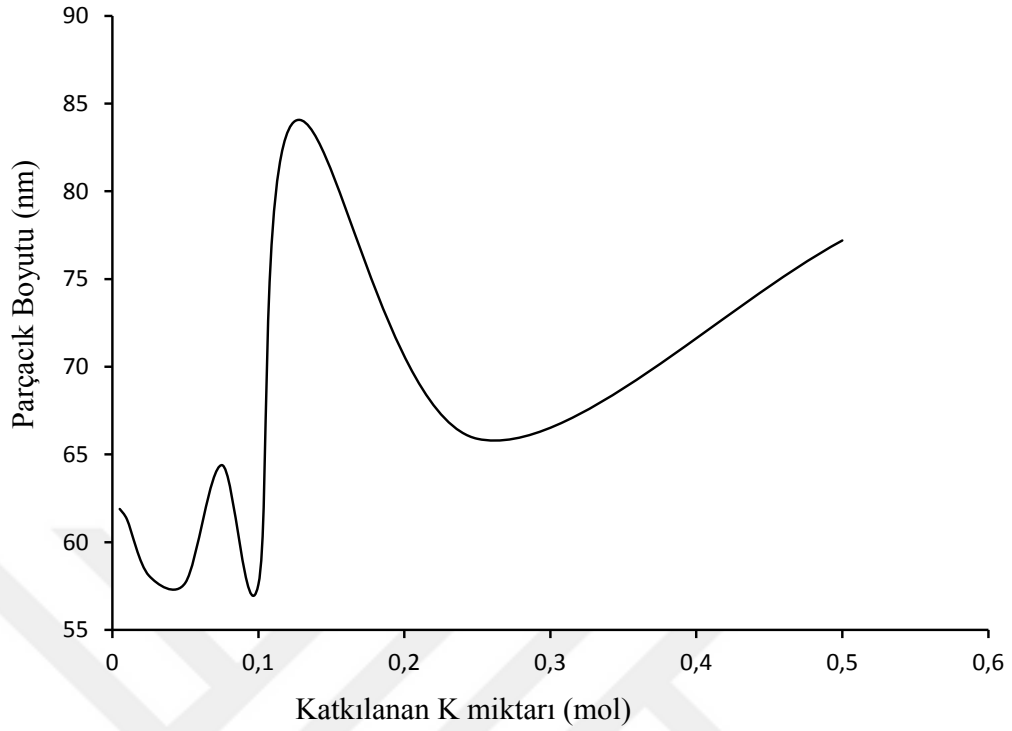
Farklı mol oranlarında potasyum katkılanan SrTiO_3 seramiklerinin her bir katkılama sonucunda elde edilen yapılarının XRD kırınım desenlerinden yararlanılarak ortalama tanecik boyutları Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ve Çizelge 4.5’de verilmiştir.

$$D = \frac{0,9 \lambda}{\beta \cos \theta} \quad \lambda = 1,5400 \text{Å} \quad (4.6)$$

Çizelge 4.5. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları

Örnek	Ortalama Tanecik Boyutu (nm)
$\text{Sr}_{0,995}\text{K}_{0,005}\text{TiO}_3$	61,9
$\text{Sr}_{0,99}\text{K}_{0,01}\text{TiO}_3$	61,3
$\text{Sr}_{0,975}\text{K}_{0,025}\text{TiO}_3$	58,1
$\text{Sr}_{0,95}\text{K}_{0,05}\text{TiO}_3$	57,7
$\text{Sr}_{0,925}\text{K}_{0,075}\text{TiO}_3$	64,4
$\text{Sr}_{0,90}\text{K}_{0,10}\text{TiO}_3$	57,6
$\text{Sr}_{0,875}\text{K}_{0,125}\text{TiO}_3$	84,0
$\text{Sr}_{0,75}\text{K}_{0,25}\text{TiO}_3$	65,9
$\text{Sr}_{0,50}\text{K}_{0,50}\text{TiO}_3$	77,2

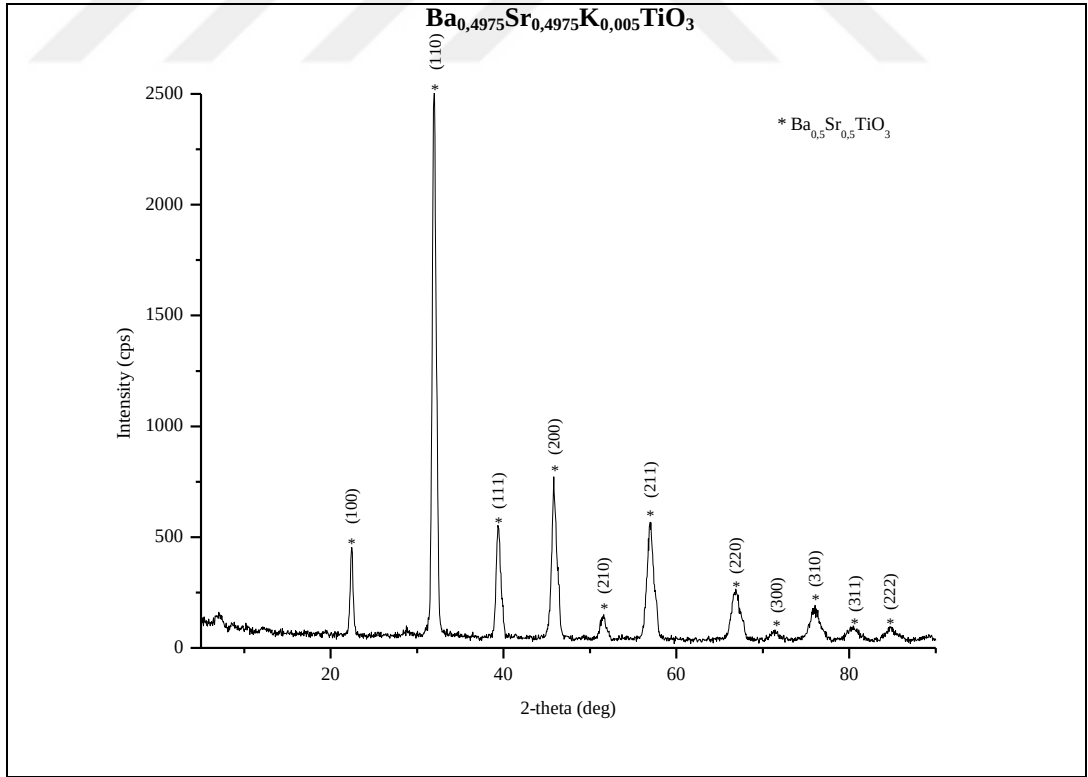
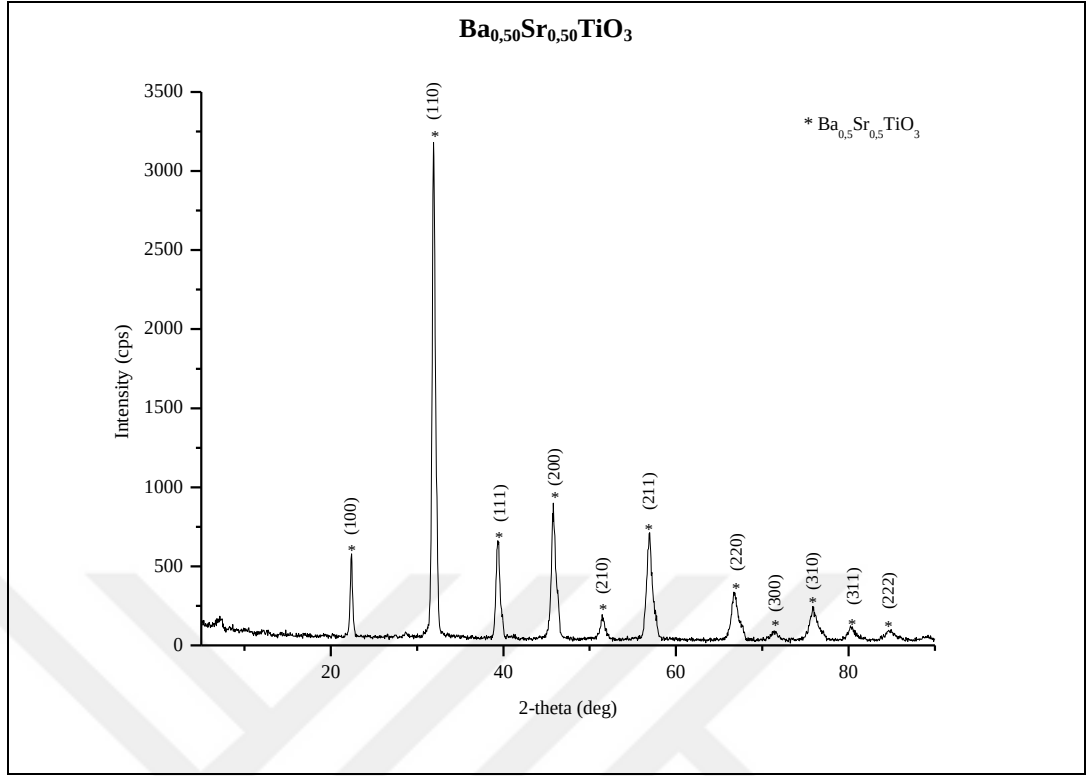
Tablodan görüldüğü gibi parçacık boyutları 57,6 – 84,0 nm aralığında değişen değerler almaktadır. Katkılama miktarına bağlı olarak ortalama tanecik boyutundaki değişim Şekil 4.44’deki grafikte gösterilmiştir.



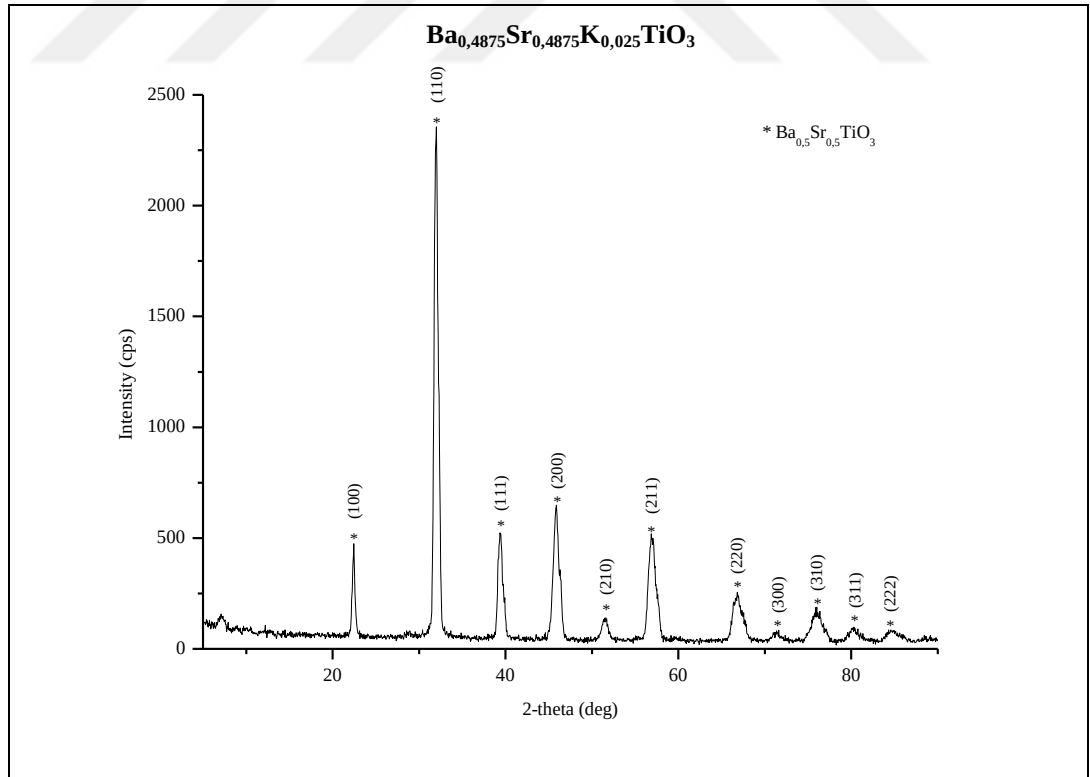
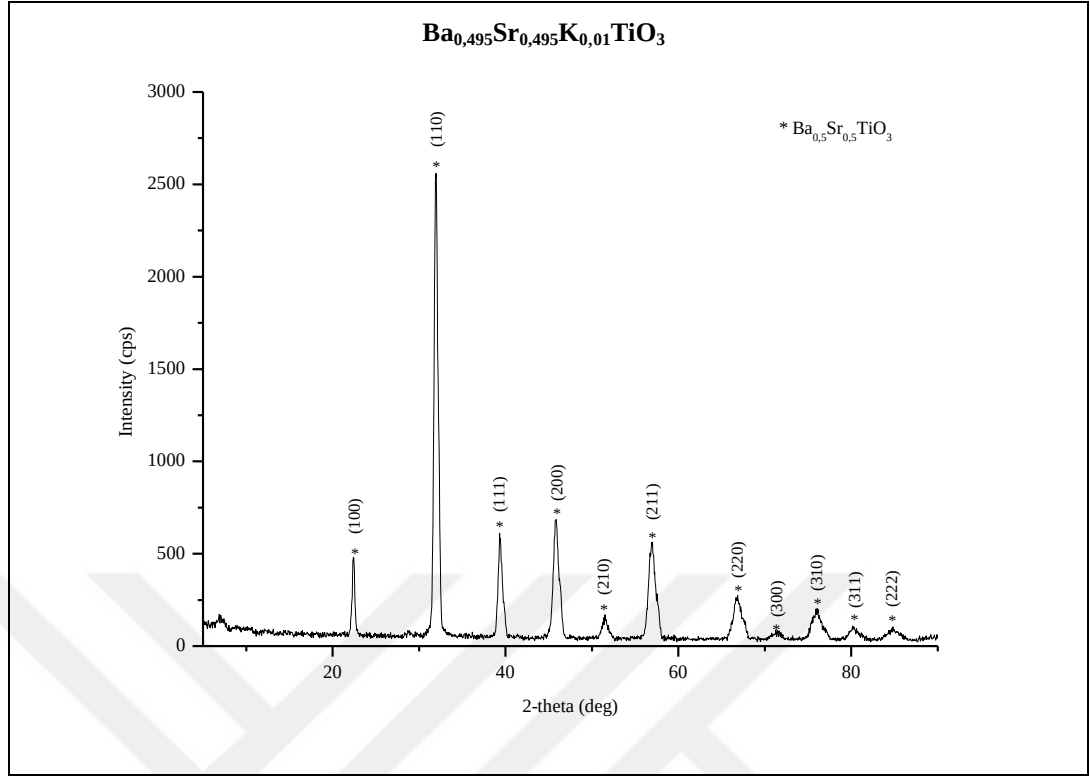
Şekil 4.44. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi

Bölüm 3.2.3.2'ye göre sentezlenen potasyum katkılı stronsiyum titanat örneklerinin XRD kırınım desenleri incelendiğinde 0,075 mol potasyum katkısına kadar kristal yapıda herhangi bir değişim gözlenmediği, katkı miktarı arttıkça yeni oluşan seramik yapıya ait karakteristik fazların ortaya çıktığı görülmüştür. Elde edilen seramik yapılar kübik yapı fazına sahip olup yapıyı oluşturan taneciklerin ortalama boyutu 57,6 – 84,0 nm aralığında olduğu belirlenmiştir (Li ve ark., 2015).

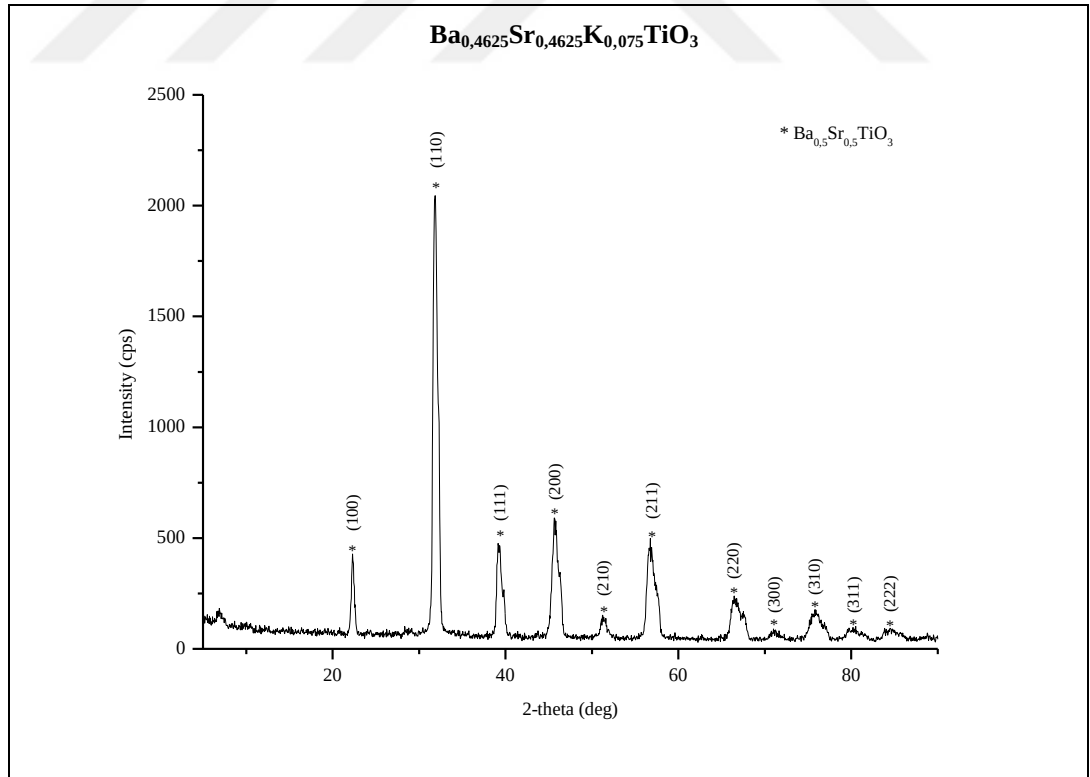
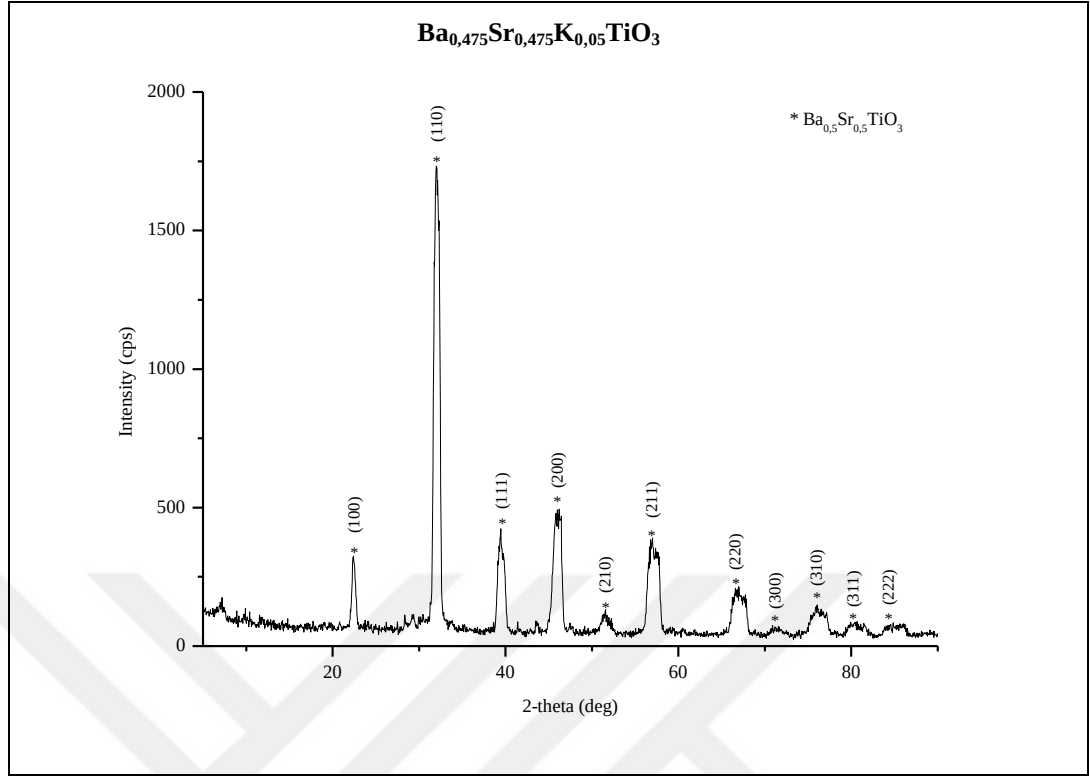
- **Potasyum katkılı baryum/stronsiyum titanatın katı hal sentez yöntemiyle elde edilişi:** Katı hal sentez yöntemiyle farklı mol oranlarında $Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}K_xTiO_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) katkılı seramik tozları bölüm 3.2.3.2'de anlatıldığı gibi sentezlenmiş ve karakterize edilmiştir. Katkılı seramik tozlarının ve katkılanan K_2CO_3 katkı maddesinin $5^\circ \leq 2\theta \leq 90^\circ$ aralığında ki X-ışını kırınım desenleri Şekil 4.45 ve Şekil 4.46'da; SEM görüntüleri ise Şekil 4.47'de görülmektedir.



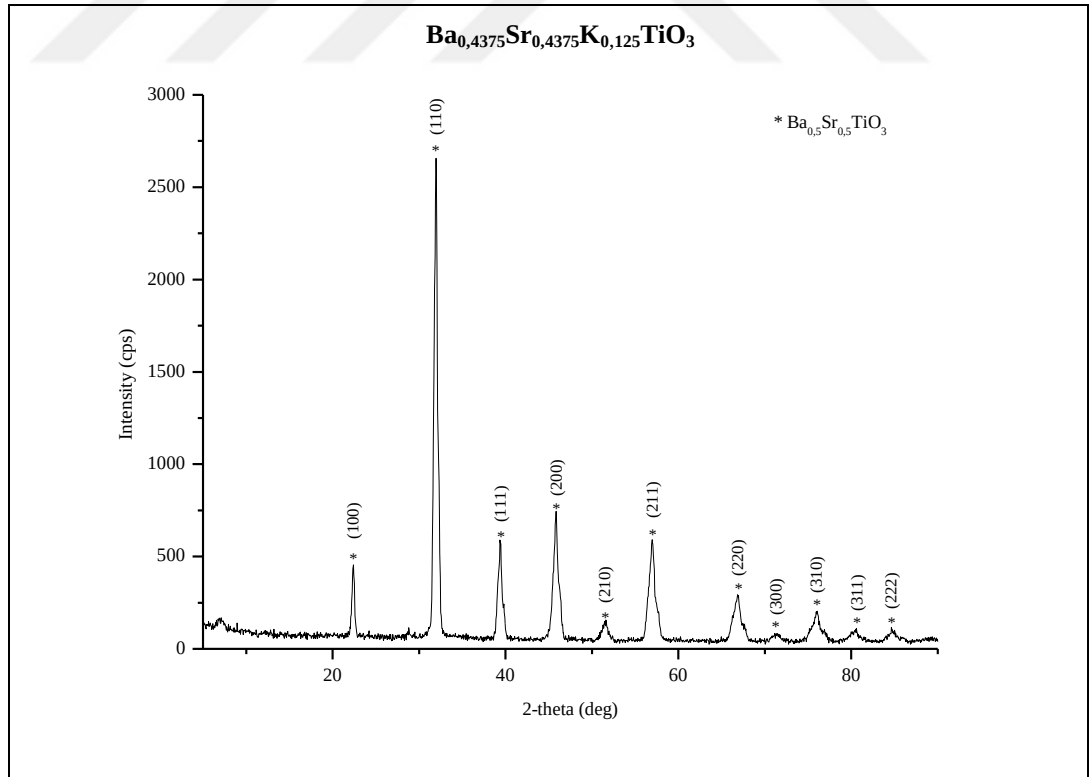
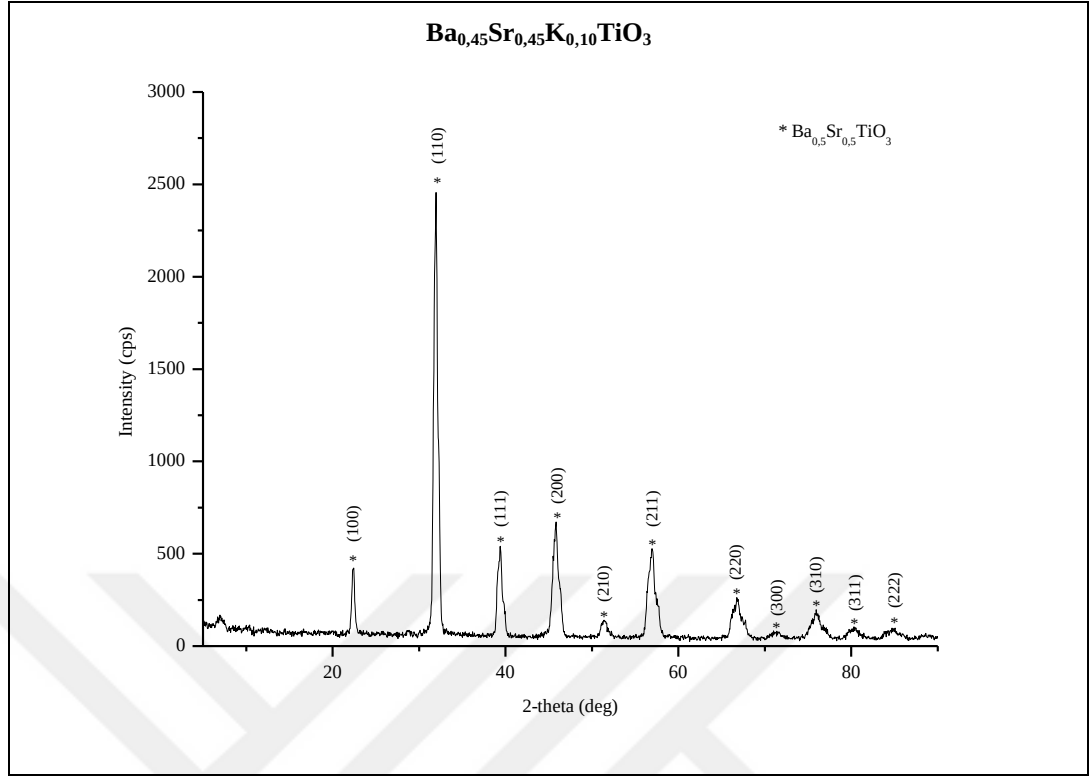
Şekil 4.45. Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}K_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve K₂CO₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



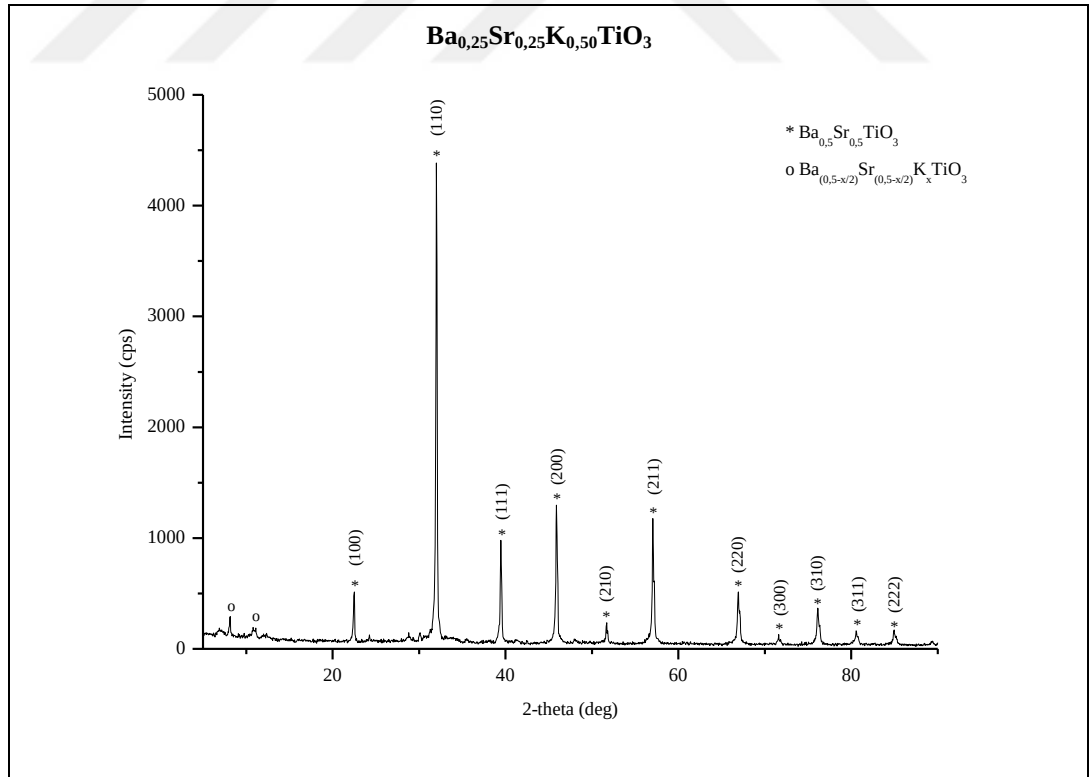
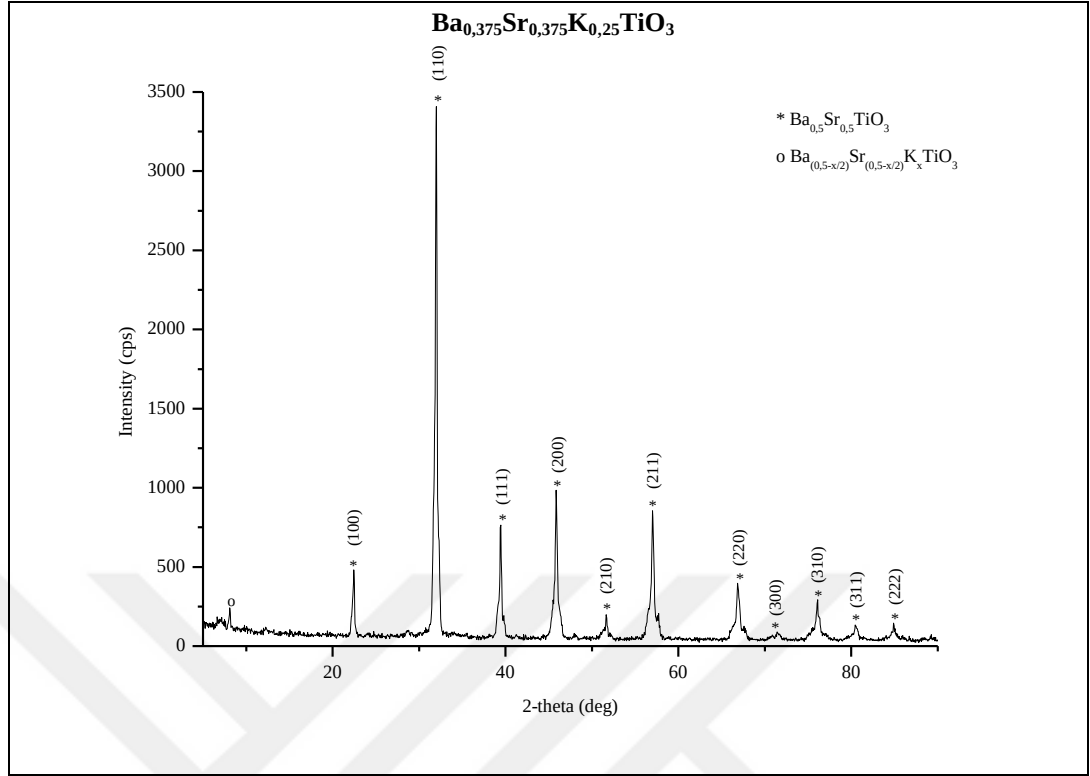
Şekil 4.45. (Devam) Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}K_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve K₂CO₃ bileşimine ait XRD diyagramları



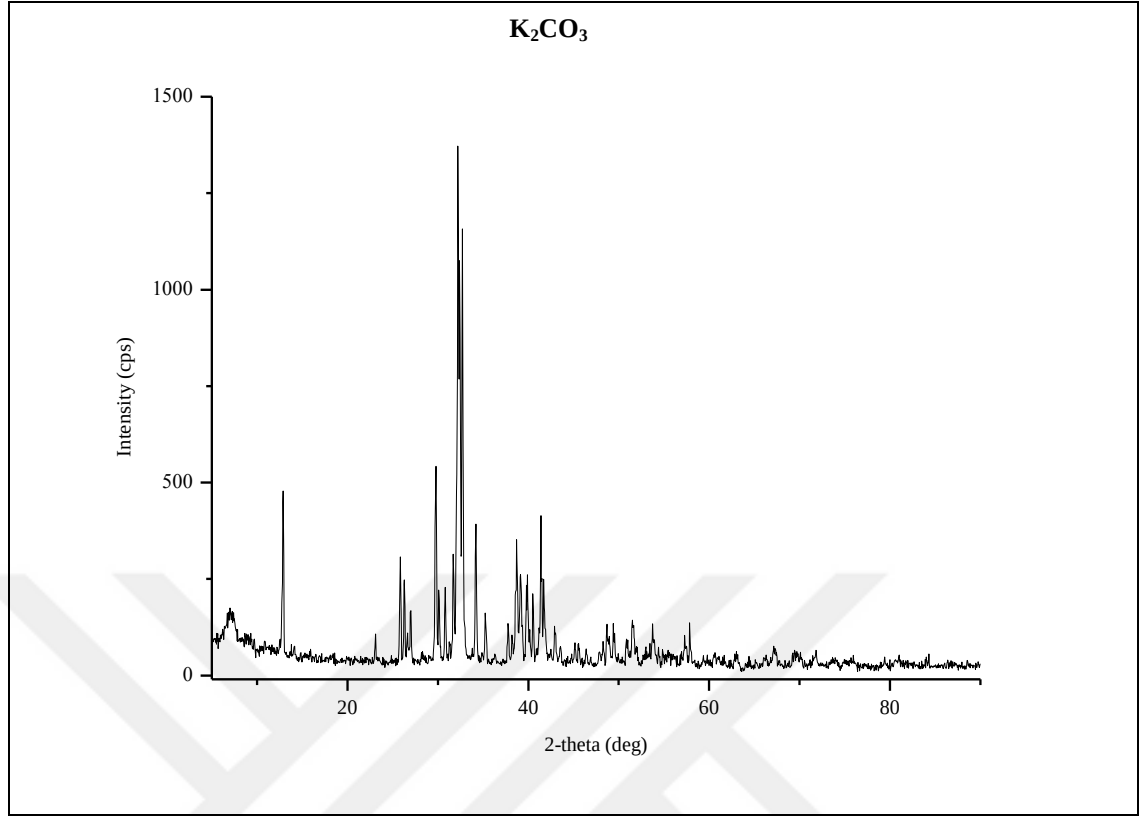
Şekil 4.45. (Devam) Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}K_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve K₂CO₃ bileşimine ait XRD diyagramları



Şekil 4.45. (Devam) Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}K_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve K₂CO₃ bileşimine ait XRD diyagramları

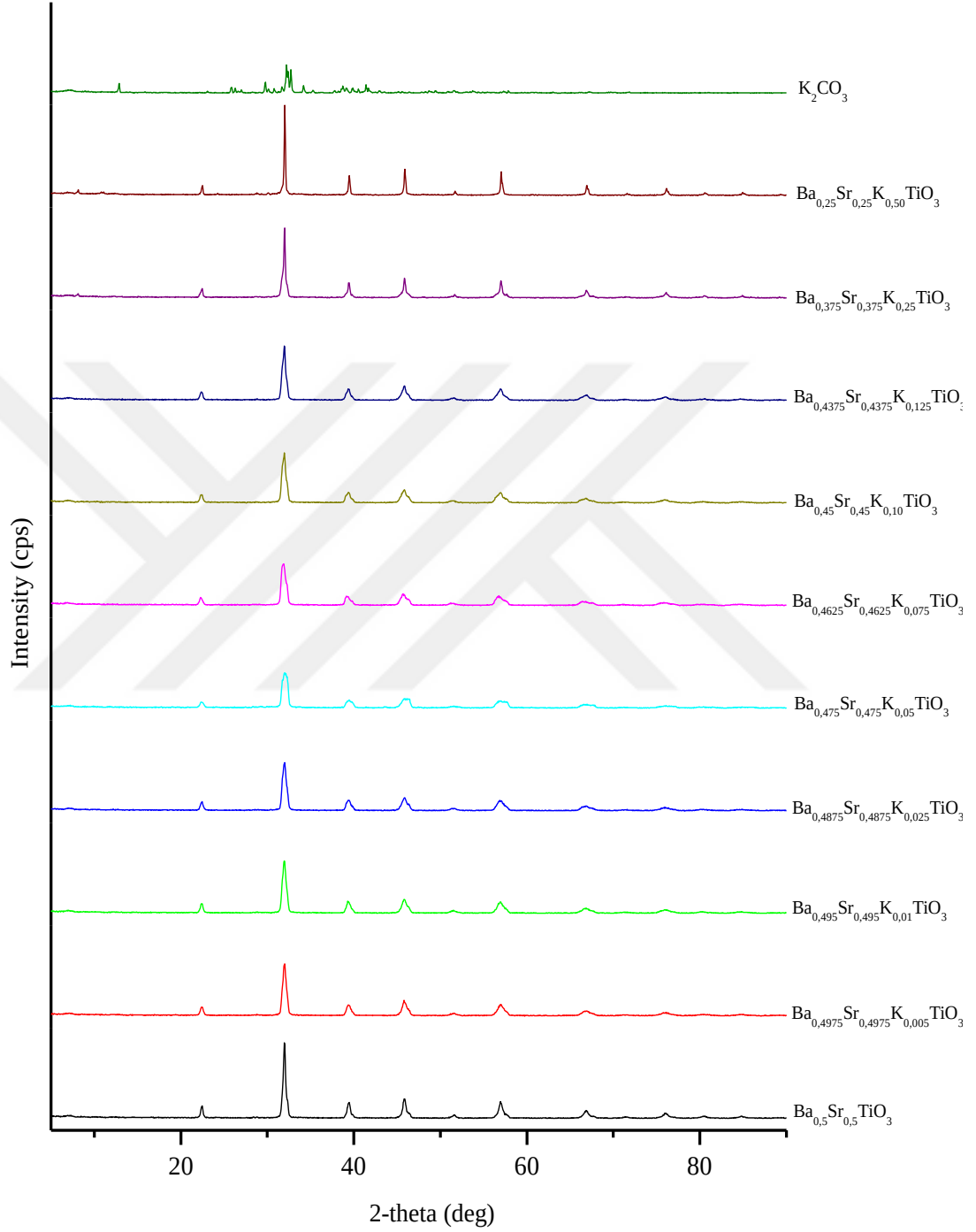


Şekil 4.45. (Devam) Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}K_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve K₂CO₃ bileşigine ait XRD diyagramları

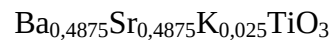
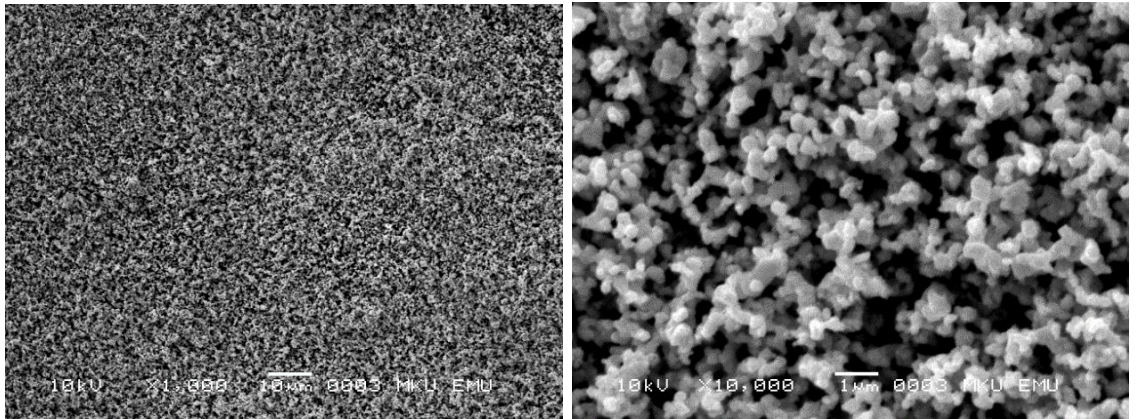
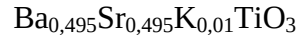
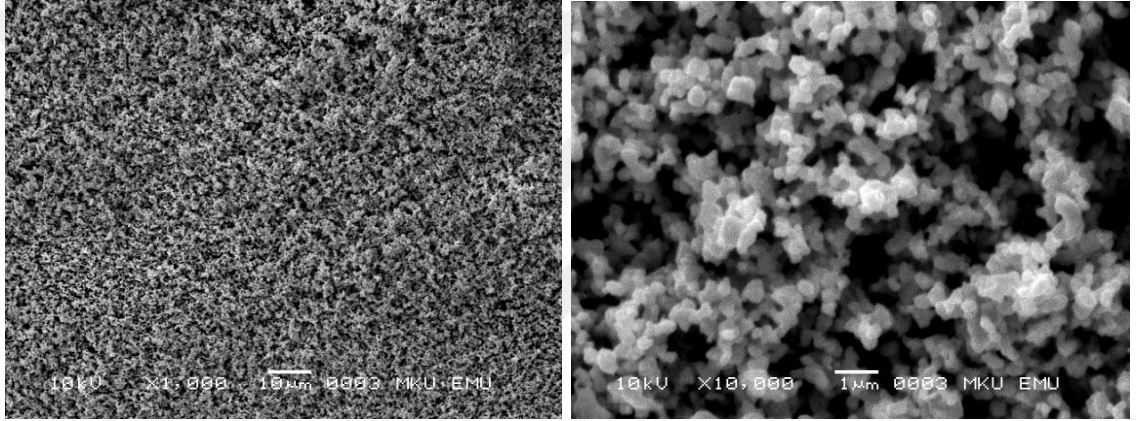
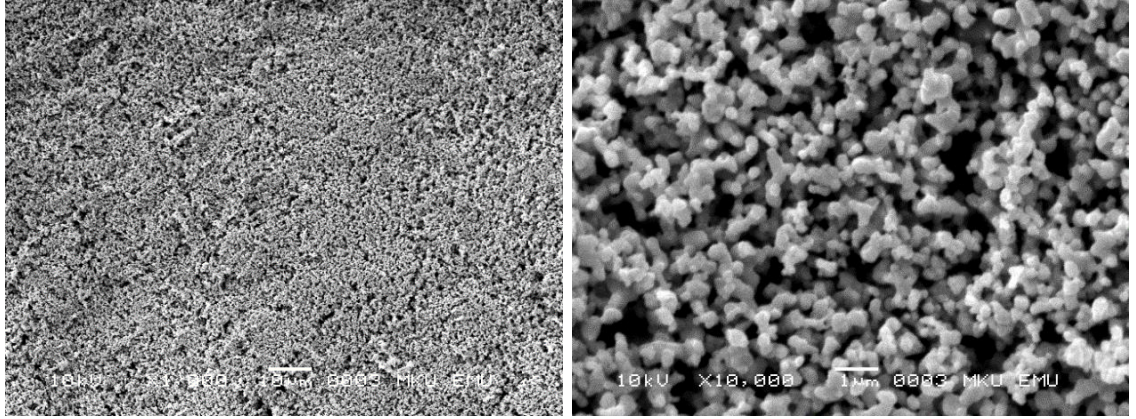


Şekil 4.45. (Devam). $\text{Ba}_{0,5-x/2}\text{Sr}_{0,5-x/2}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve K_2CO_3 bileşiğine ait XRD diyagramları

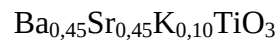
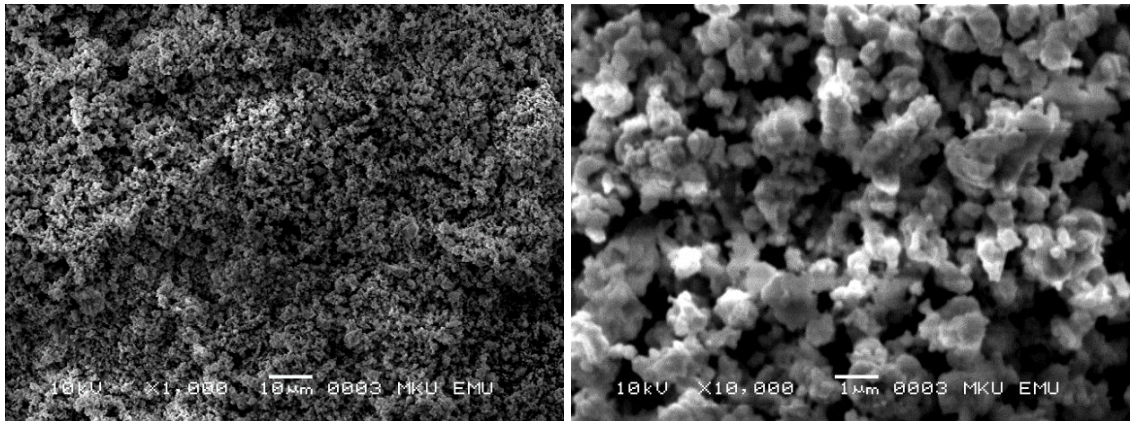
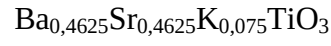
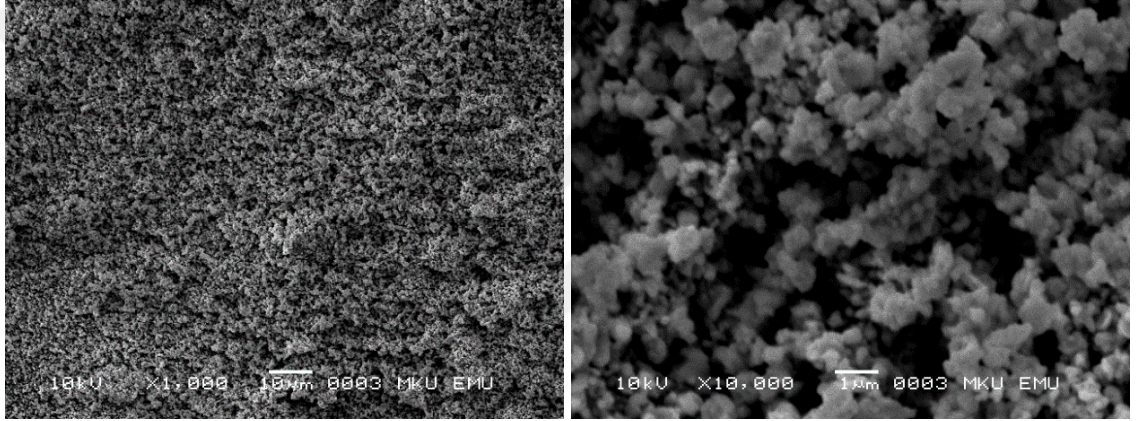
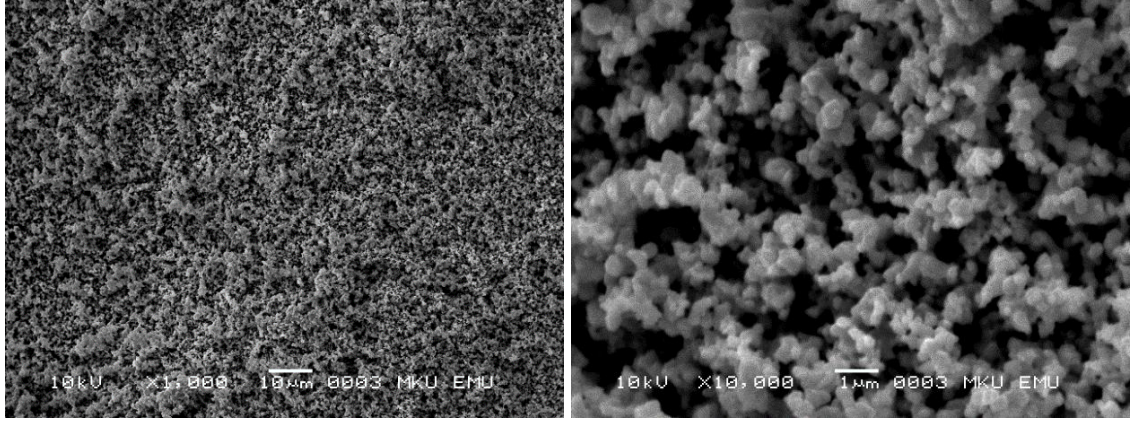
Katkısız baryum stronsiyum titanat bileşiğine 0,01 mol potasyum katkılındığı da 46° ; 51° ve 57° açı değerlerindeki piklerde çatallaşmalar oluşmaya başlamış; 0,05 mol potasyum katkısında ise bu piklerin üst kısımlarında yarılmalara daha çok artmış; 32° pikte de az miktarda yarılma meydana gelmiştir. Katkı miktarı arttıkça (0,075 mol; 0,10 mol; 0,125 mol; 0,25 mol; 0,50 mol) piklerdeki yarılmalar azalmaya başlamış ve pikler daha keskin bir hal almıştır. 0,25 mol potasyum katkısında 8° açı değerinde potasyuma ait bir karakteristik pike rastlanılmış, katkı miktarı 0,50 mole çıkarıldığında ise bu pik ile birlikte 11° açı değerinde yeni bir karakteristik pik oluşumu gözlenmiştir. Katkı miktarının artışıyla baryum stronsiyum titanata ait karakteristik piklerde meydana gelen değişimler ve yeni bir pik oluşumunun görülmesi kristal yapıda bozulmaların başladığını göstermektedir.



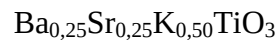
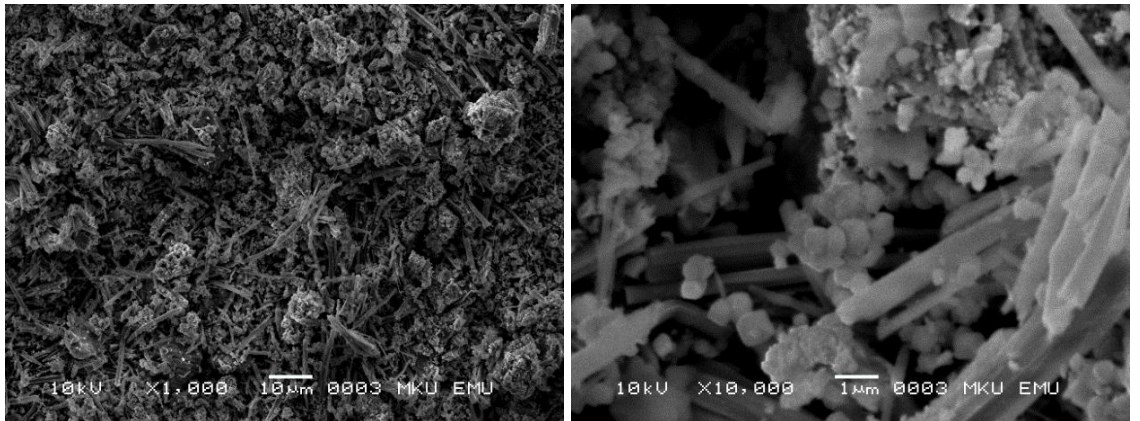
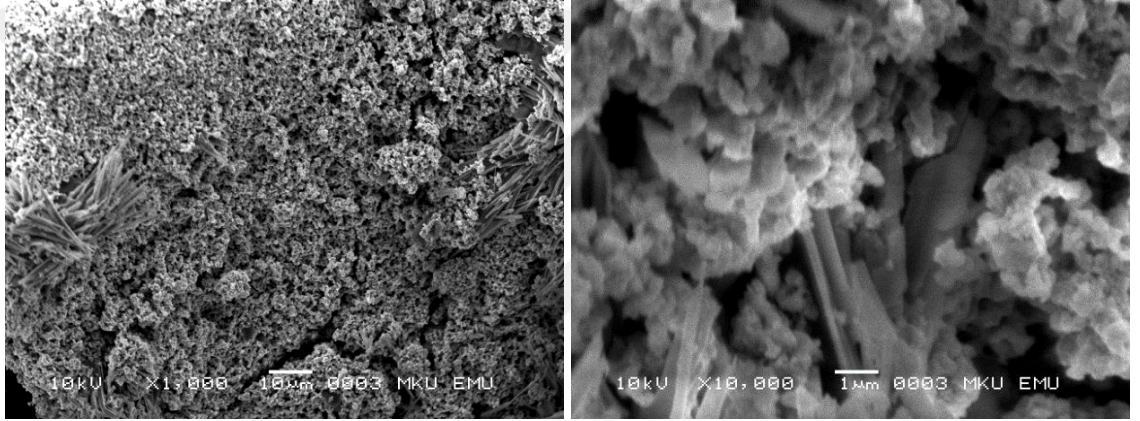
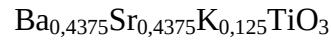
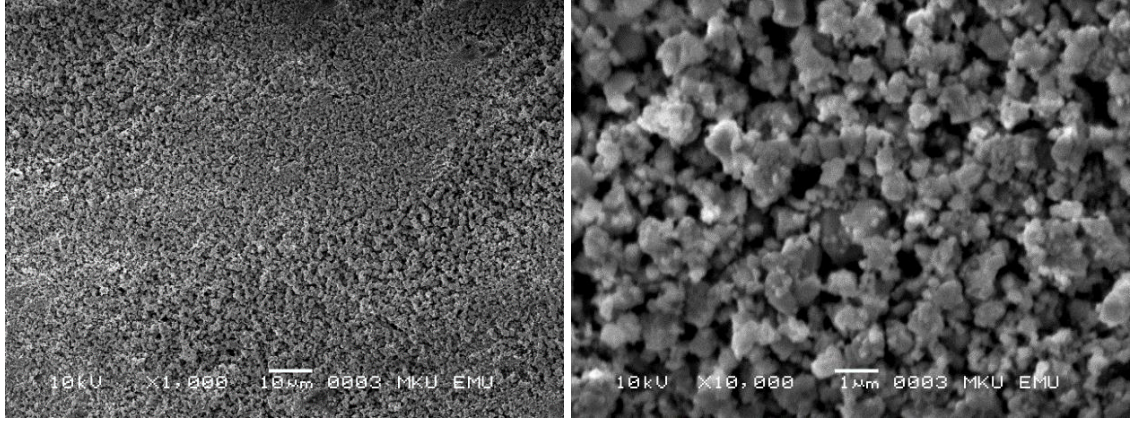
Şekil 4.46. $\text{Ba}_{0,5-x/2}\text{Sr}_{0,5-x/2}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve K_2CO_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı



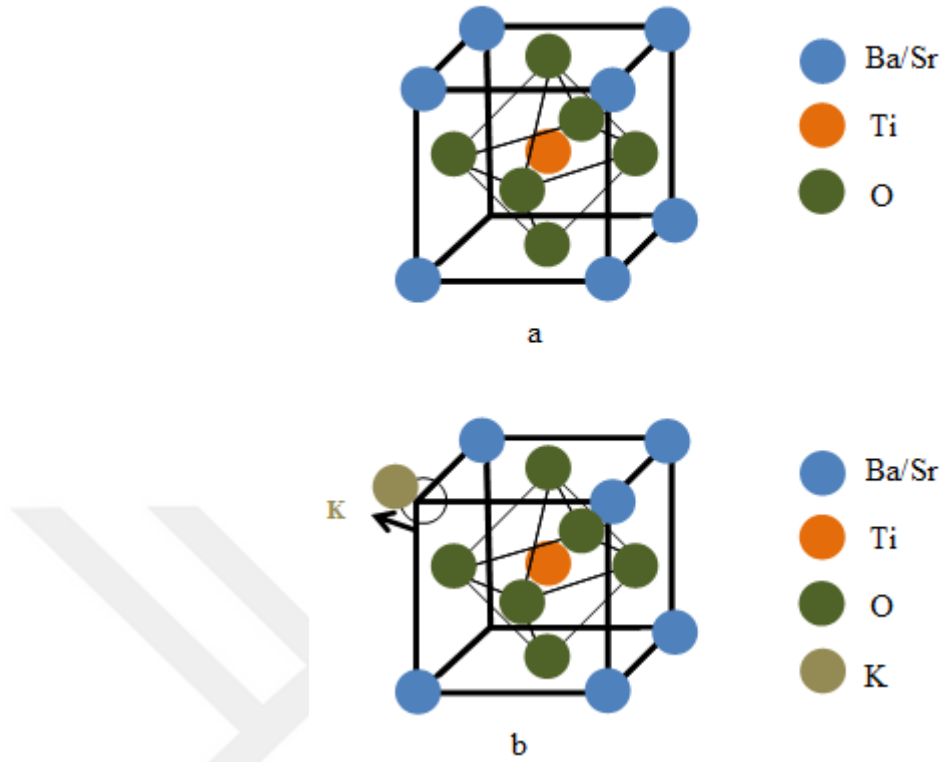
Şekil 4.47. $\text{Ba}_{0,5-x/2}\text{Sr}_{0,5-x/2}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x : 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ait SEM görüntüleri



Şekil 4.47. (Devam) $\text{Ba}_{0,5-x/2}\text{Sr}_{0,5-x/2}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ait SEM görüntüleri



Şekil 4.47. (Devam) $\text{Ba}_{0,5-x/2}\text{Sr}_{0,5-x/2}\text{K}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ait SEM görüntüleri



Şekil 4.48. a) Kübik kristal yapı ($\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$ seramiği kafes yapısı) b) K_2CO_3 katkılı $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$ seramiğinde K iyonu ile Ba ve Sr iyonlarının yer değişimi

Farklı mol oranlarında katı hal sentez yöntemi kullanılarak üretilen $\text{Ba}_{0.5-x/2}\text{Sr}_{0.5-x/2}\text{K}_x\text{TiO}_3$ bileşiklerinde kübik yapı fazına rastlanılmıştır. SEM görüntüleri incelendiğinde baryum stronsiyum titanata 0,25 mol ve 0,50 mol K_2CO_3 katkılanmasıyla yapıyı oluşturan taneciklerin kristal yönelimleri değişmiş daha düzgün, daha iğnemsiz yeni bir kristal yapının oluştuğu görülmüştür. Bu seramik yapıların XRD kırınım desenleri incelendiğinde ise kübik yapı fazının hakim olduğu tespit edilmiştir. K_2CO_3 bileşiğinin katkısı ile yapıda değişimler meydana gelmiş fakat kristal yapının K_2CO_3 bileşiğinin kristal yapısı olan monoklinik yapıya dönüşmesine yetecek kadar olmadığı belirlenmiştir. Sekhar ve arkadaşları, farklı mol oranlarında K katkılı BaSrTiO_3 bileşiklerini katı hal sentez yöntemiyle sentezlemişler ve ince filmlerinin dielektrik ve ayarlanabilir karakteristiklerini incelemişlerdir. XRD analiz sonuçlarına göre ikinci bir kristal yapı fazının meydana gelmediğini; bütün seramik yapıların kübik yapı fazına sahip olduğunu belirtmişlerdir (Sekhar ve ark., 2013).

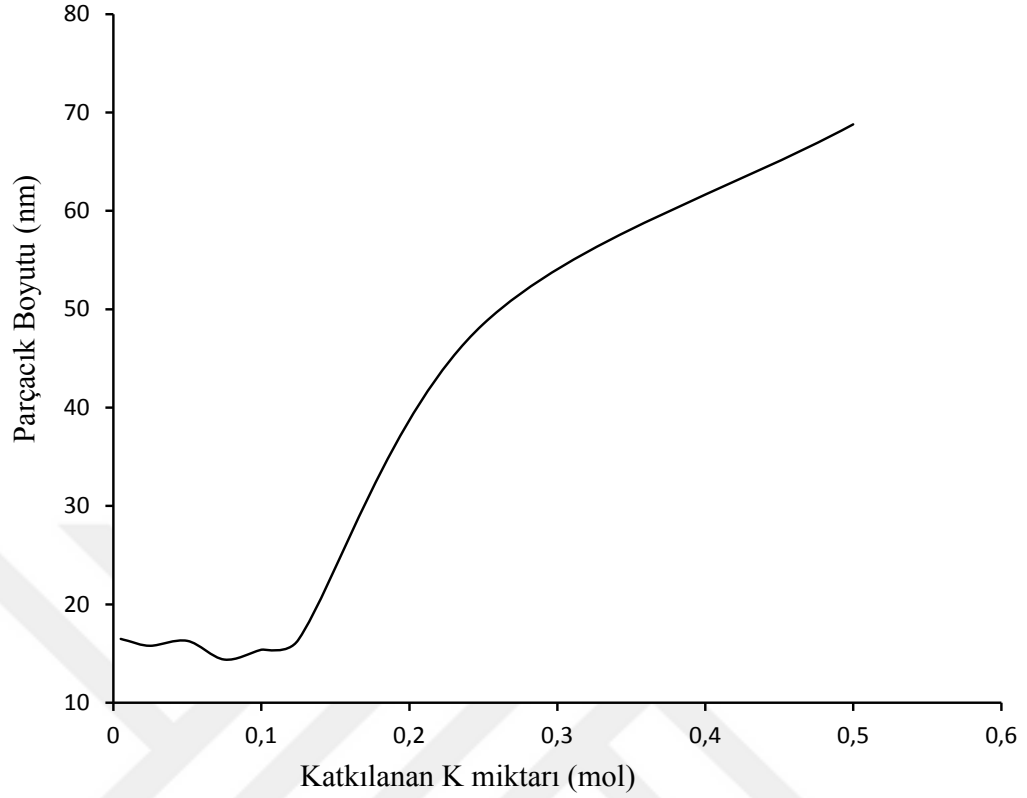
Farklı mol oranlarında K katkılanan SrTiO₃ seramiklerinin her bir katkılama sonucunda elde edilen yapılarının XRD kırınım desenlerinden yararlanılarak ortalama tanecik boyutları Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ve Çizelge 4.6’da verilmiştir.

$$D = \frac{0,9 \lambda}{\beta \cos \theta} \quad \lambda = 1,5400 \text{Å} \quad (4.7)$$

Çizelge 4.6. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları

Örnek	Ortalama Tanecik Boyutu (nm)
Ba _{0,4975} Sr _{0,4975} K _{0,005} TiO ₃	16,5
Ba _{0,495} Sr _{0,495} K _{0,01} TiO ₃	16,3
Ba _{0,4875} Sr _{0,4875} K _{0,025} TiO ₃	15,8
Ba _{0,475} Sr _{0,475} K _{0,05} TiO ₃	16,3
Ba _{0,4625} Sr _{0,4625} K _{0,075} TiO ₃	14,4
Ba _{0,45} Sr _{0,45} K _{0,10} TiO ₃	15,4
Ba _{0,4375} Sr _{0,4375} K _{0,125} TiO ₃	16,4
Ba _{0,375} Sr _{0,375} K _{0,25} TiO ₃	48,5
Ba _{0,25} Sr _{0,25} K _{0,50} TiO ₃	68,8

Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}K_xTiO₃ katkılı örneklerinin parçacık boyutları 14,4 – 68,8 nm aralığında değişen değerler almaktadır. Katkılama miktarına bağlı olarak ortalama tanecik boyutundaki değişim Şekil 4.49’daki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.49. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi

$Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}K_xTiO_3$ katkılı seramik tozların XRD kırınım desenleri ve SEM görüntüleri incelendiğinde katkı miktarına bağlı olarak oluşan seramik yapıların kübik kristal yapı fazına sahip olduğu; 0,25 mol ve daha yüksek mol oranlarında K_2CO_3 katkısıyla elde edilen yapılarda yeni oluşan kristal yapıya ait 8° açı değerindeki karakteristik pikin varlığı tespit edilmiştir. Kristal yapıyı oluşturan taneciklerin ortalama boyutu Debye Scherrer eşitliğinden yararlanılarak hesaplanmış ve 14,4 – 68,8 nm aralığında değişen değerler aldığı görülmüştür (Sekhar ve ark., 2013).

4.2.3. İndiyum Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu

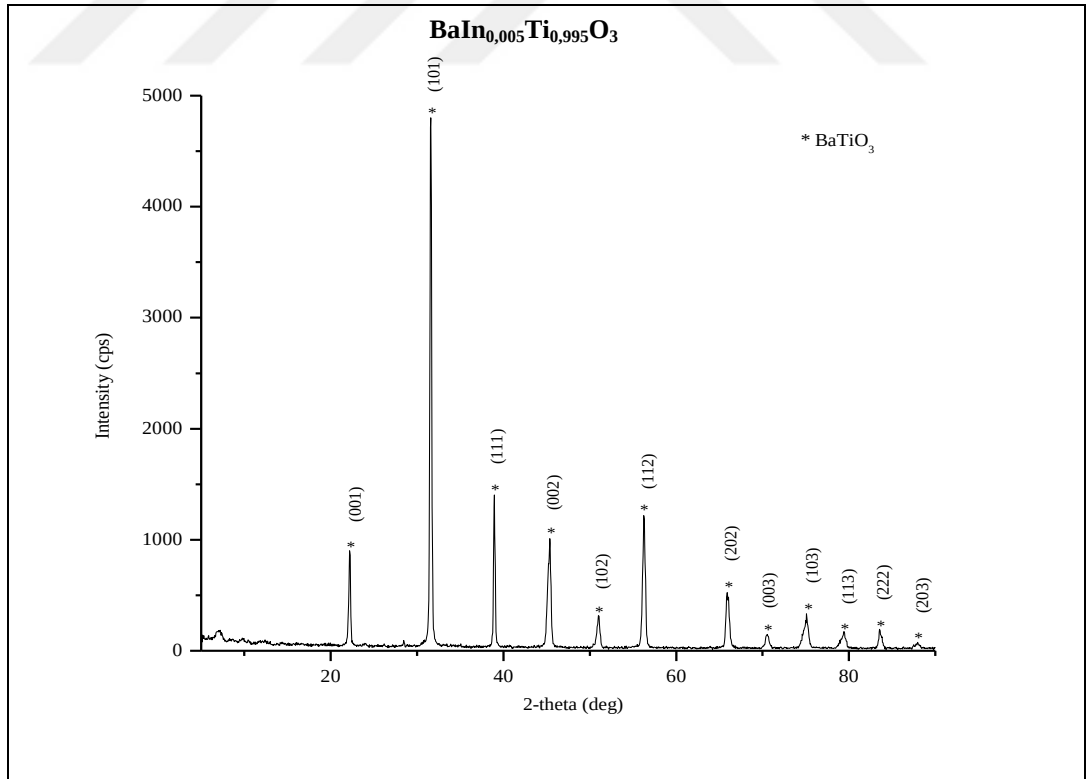
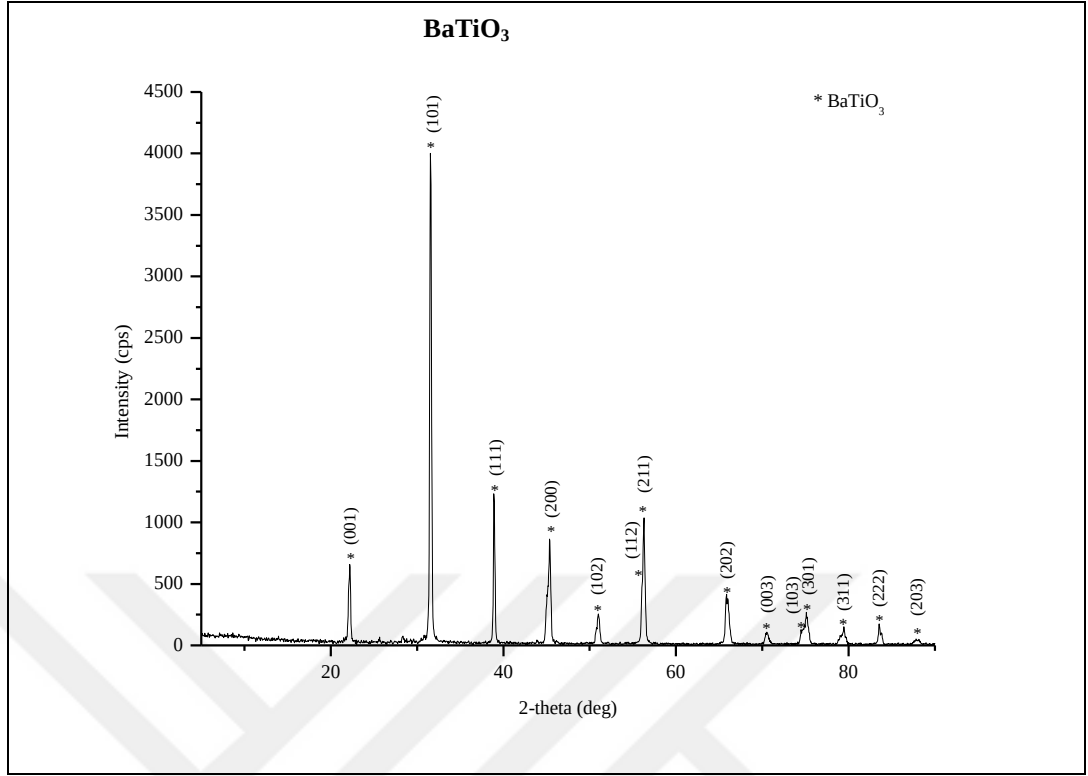
Bölüm 3.2.3.3'de anlatıldığı gibi katı hal sentez yöntemi kullanılarak farklı mol oranlarında indiyum katkılı baryum titanat ($\text{BaIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$), stronsiyum titanat ($\text{SrIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$), ve baryum/stronsiyum titanat ($\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$) üretilmiştir.

In^{3+} ($r = 76$ pm) iyonunun yarıçapı BaTiO_3 (Ba^{+2} ; $r = 149$ pm), SrTiO_3 (Sr^{+2} ; $r = 132$ pm) ve Ba/SrTiO_3 seramiklerindeki Ti^{3+} ($r = 81$ pm) iyonunun yarıçapına yakın olduğundan dolayı kristal yapıda titanyum iyonunun yerine geçeceği öngörülmüştür.

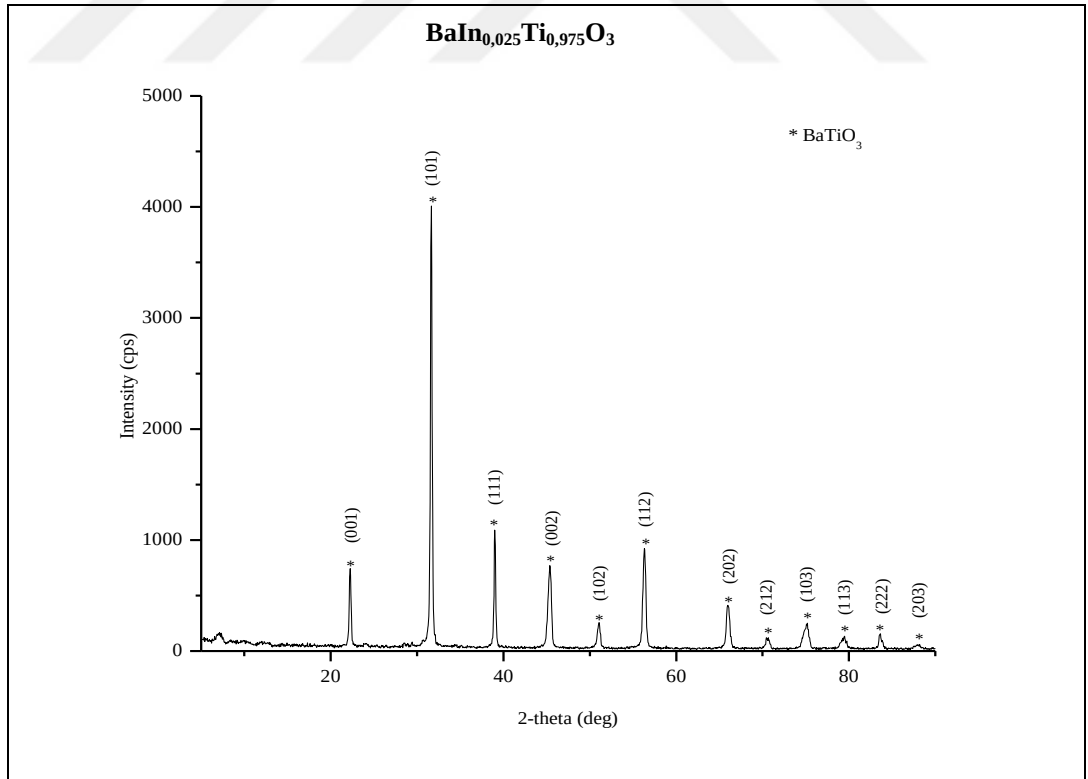
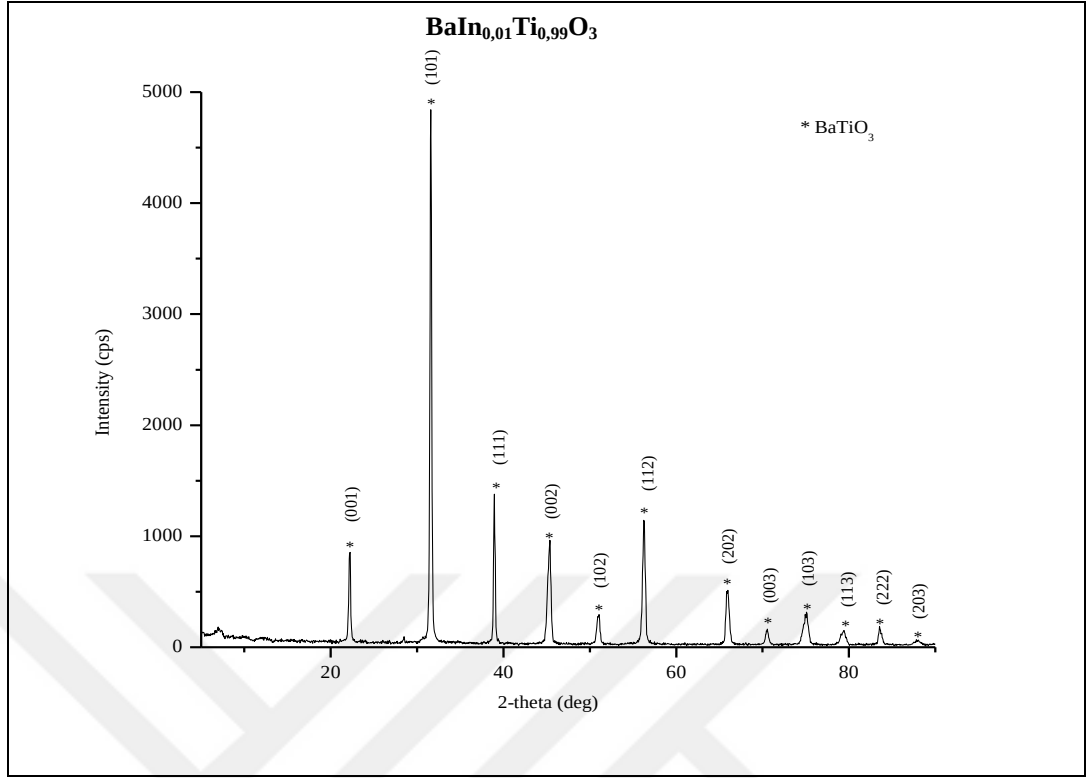
Literatüre bakıldığında titanyum iyonunun yarıçapına yakın olan mangan iyonu Langhammer ve arkadaşları tarafından baryum stronsiyum titanat seramik yapısına katkılanmış ve yapıda mangan iyonunun titanyum iyonu ile yer değiştirdiği belirtilmiştir. Yoon ve arkadaşları ise rutenyum iyonunu lantanyum stronsiyum titanat yapısına katkılar ve rutenyumun yapıda kendi iyon yarıçapına yakın yarıçapa sahip olan titanyum iyonunun yerine geçtiğini ifade etmişlerdir. (Langhammer, 2003; Yoon, 2015).

Elde edilen seramik yapılarda katkılanan indiyum miktarına bağlı olarak piklerde kaymalar, pik şiddet değerlerinde değişimler, örgü parametrelerinde farklılıklar oluştuğu tespit edilmiştir. Piklerde meydana gelen bu değişimler; katkılama miktarının artışına bağlı olarak Ti atomunun yerine In atomunun geçmesiyle BaTiO_3 ; SrTiO_3 ve Ba/SrTiO_3 yapılarının değişerek yeni kristal yapıların meydana geldiği görülmüştür. Bu kristal yapılarda meydana gelen değişim (var olan kristal yapının bozulması, yeni kristal yapının oluşması) In miktarının artışına bağlı olarak farklılık göstermektedir.

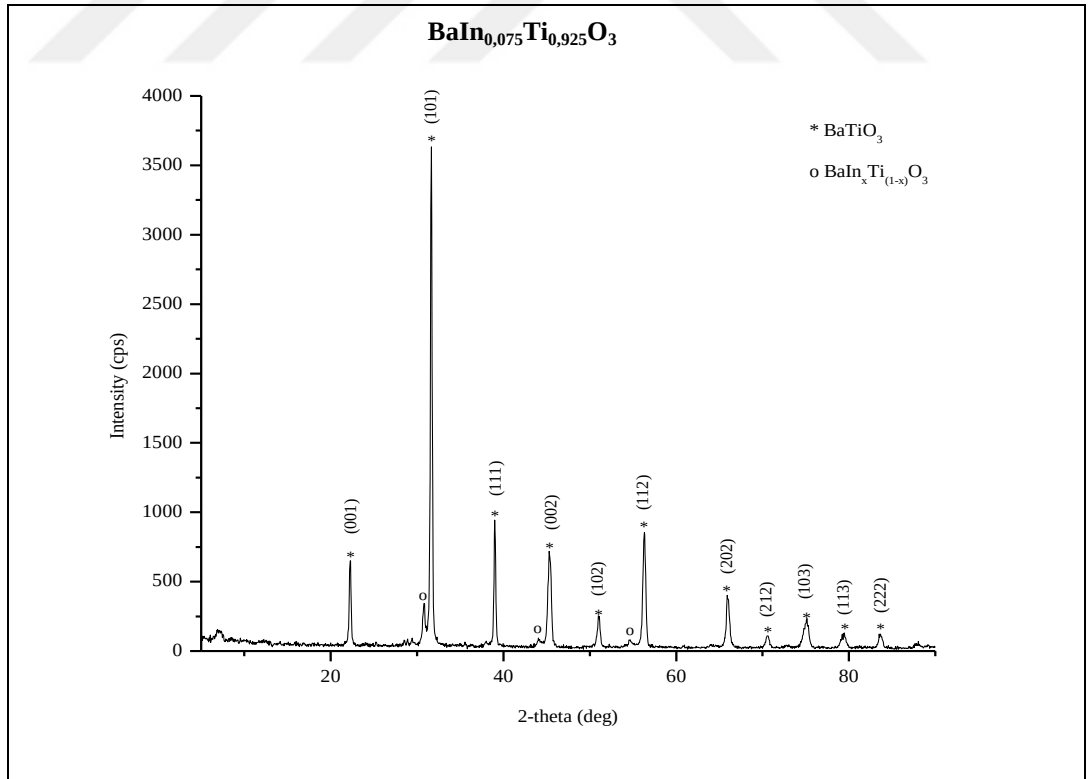
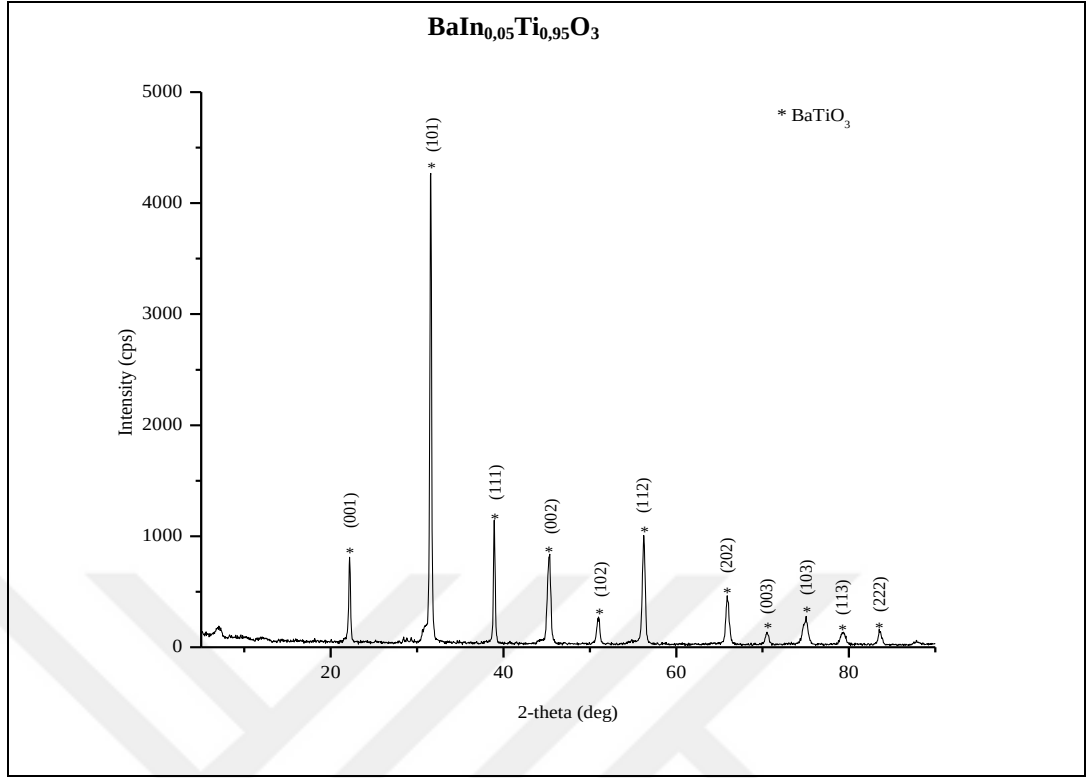
- İndiyum katkılı baryum titanatın katı hal sentez yöntemiyle elde edilişi: Katı hal sentez yöntemiyle farklı mol oranlarında $\text{BaIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x : 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) katkılı seramik tozları bölüm 3.2.3.3'de anlatıldığı gibi sentezlenmiş ve karakterize edilmiştir. Katkılı seramik tozlarının ve katkılanan In_2O_3 katkı maddesinin $5^\circ \leq 2\theta \leq 90^\circ$ aralığında ki XRD kırınım desenleri Şekil 4.50 ve Şekil 4.51'de; SEM görüntüleri ise Şekil 4.52'de görülmektedir.



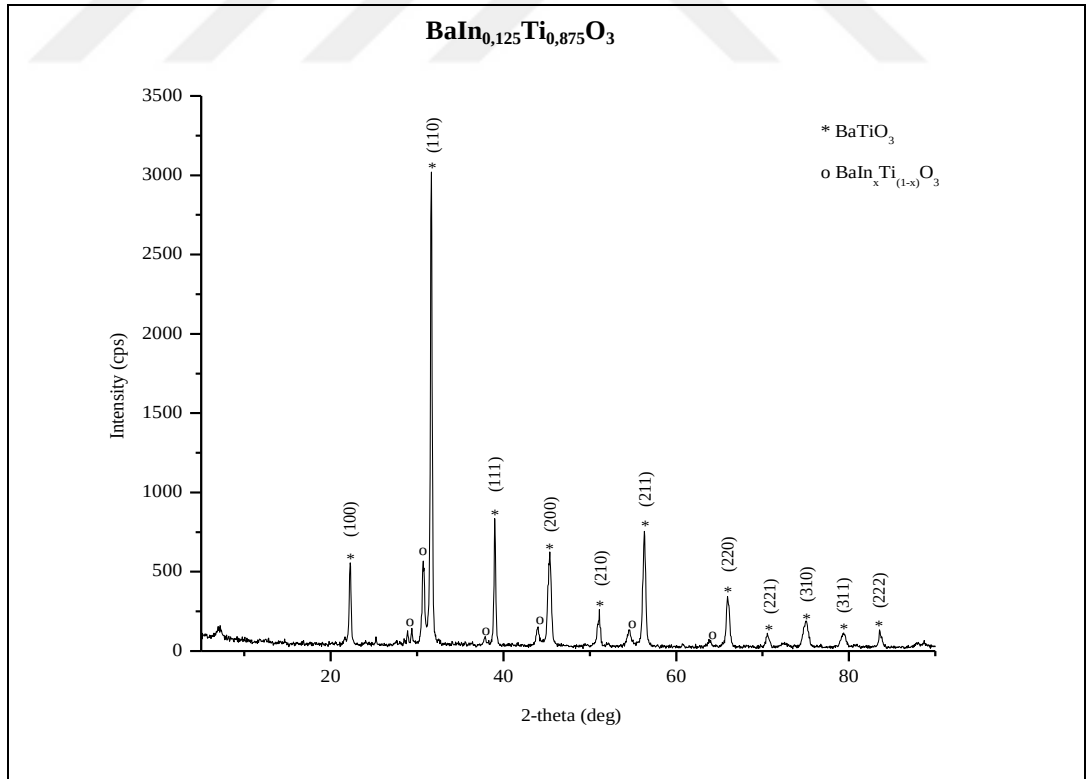
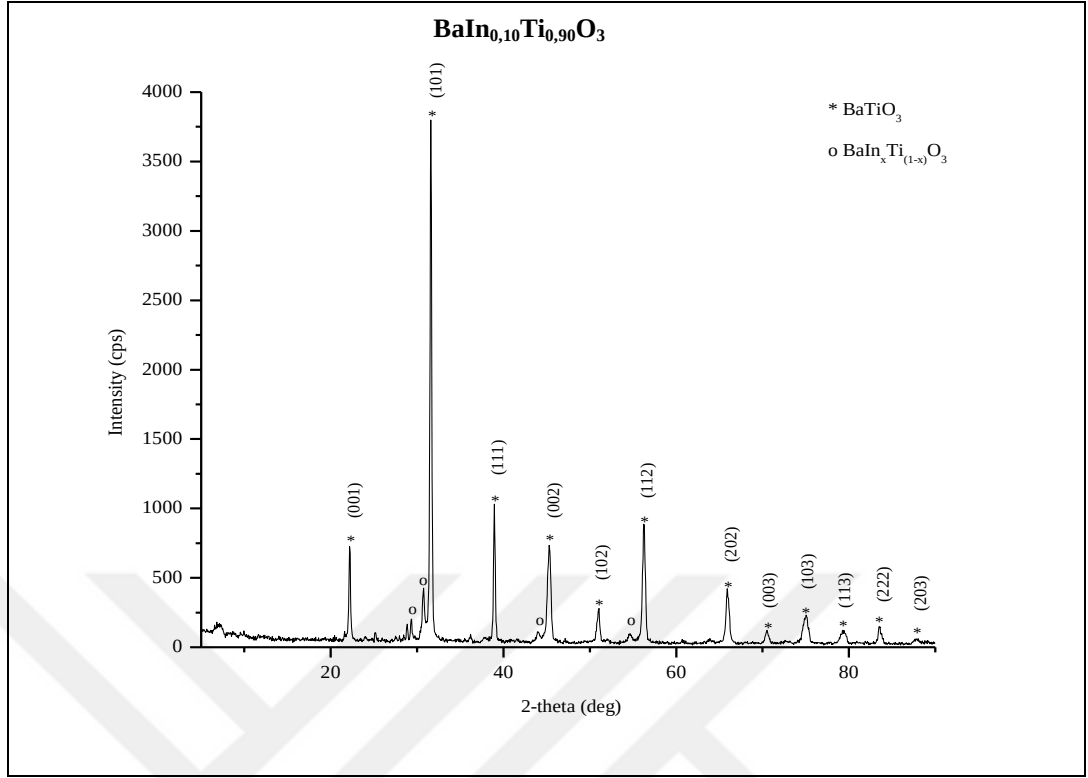
Şekil 4.50. BaIn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve In₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



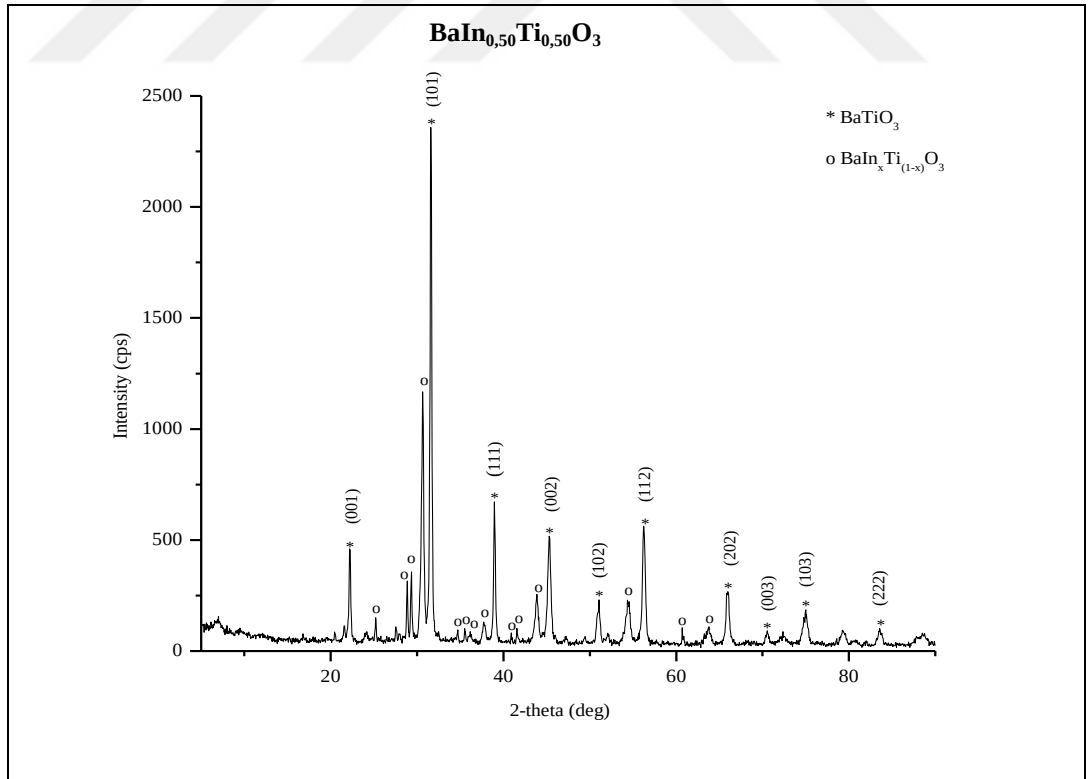
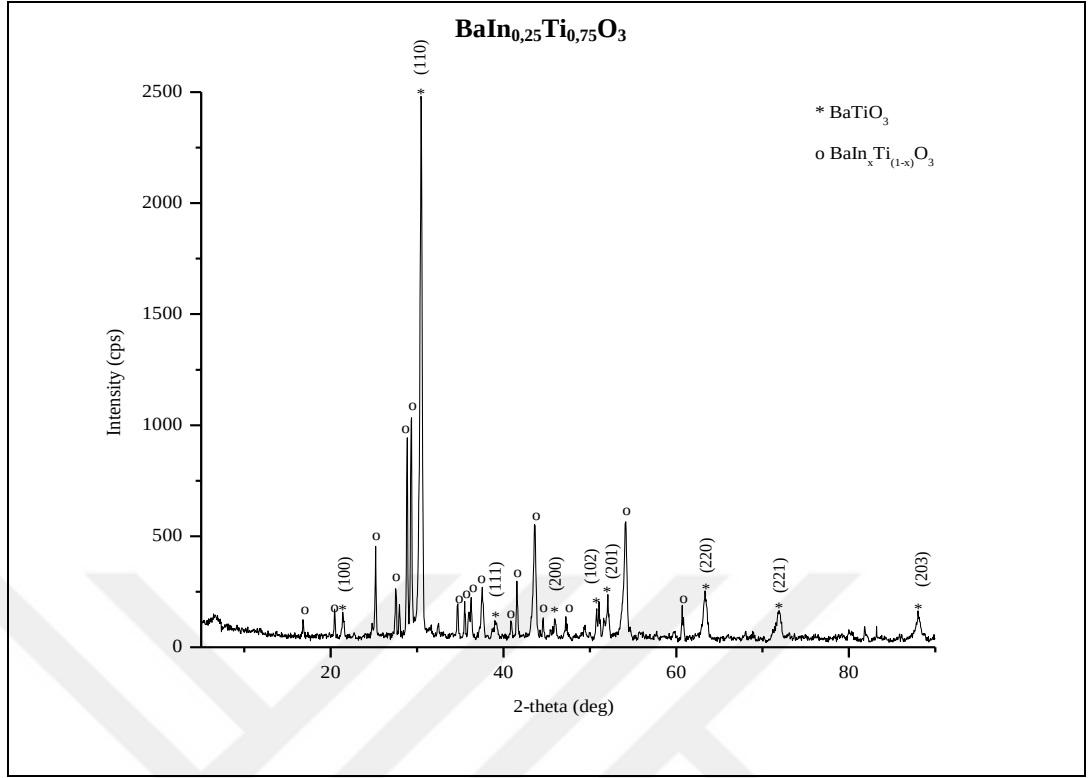
Şekil 4.50. (Devam) BaIn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve In₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



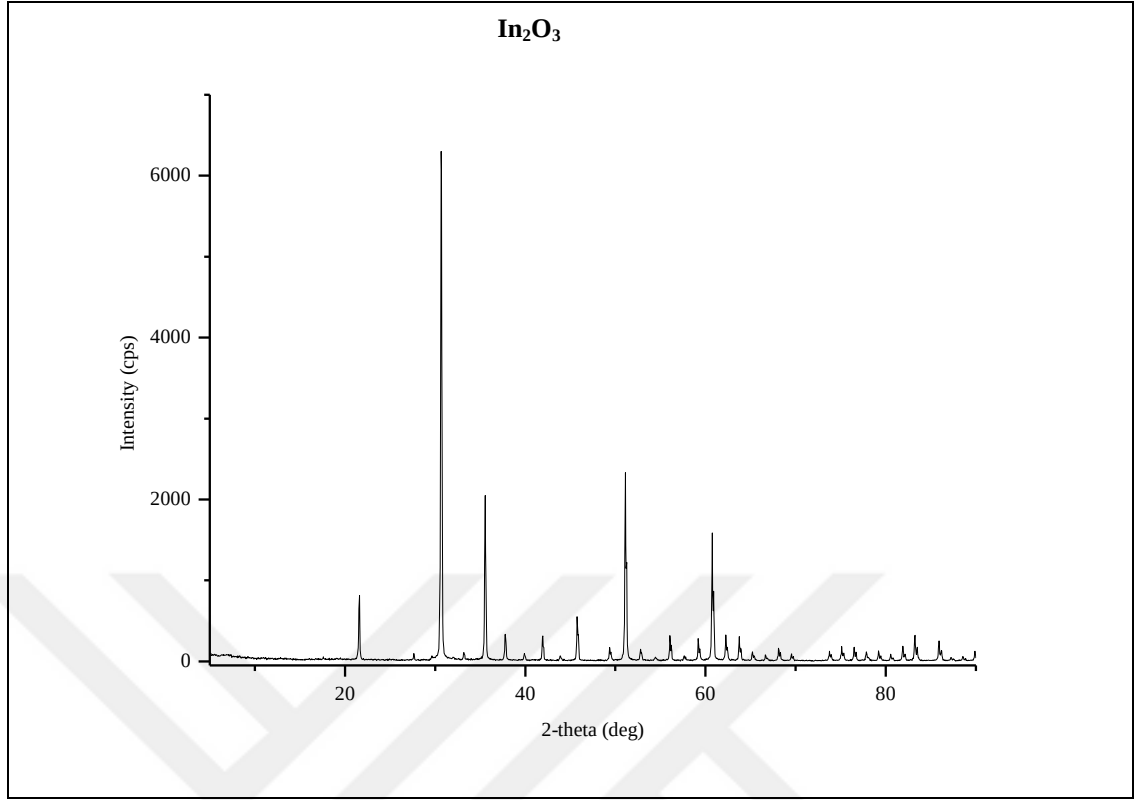
Şekil 4.50. (Devam) BaIn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve In₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



Şekil 4.50. (Devam) BaIn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve In₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları

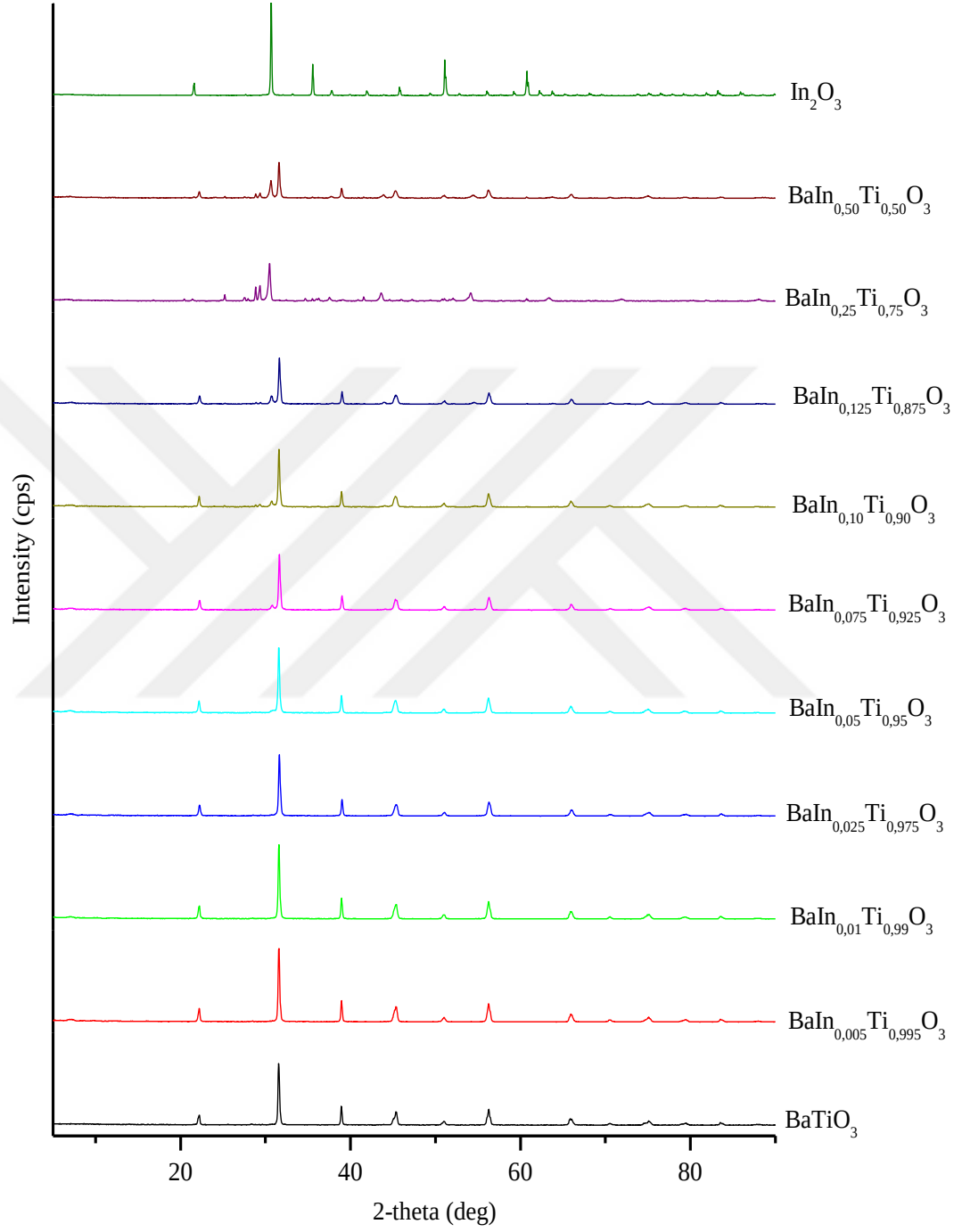


Şekil 4.50. (Devam) BaIn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve In₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları

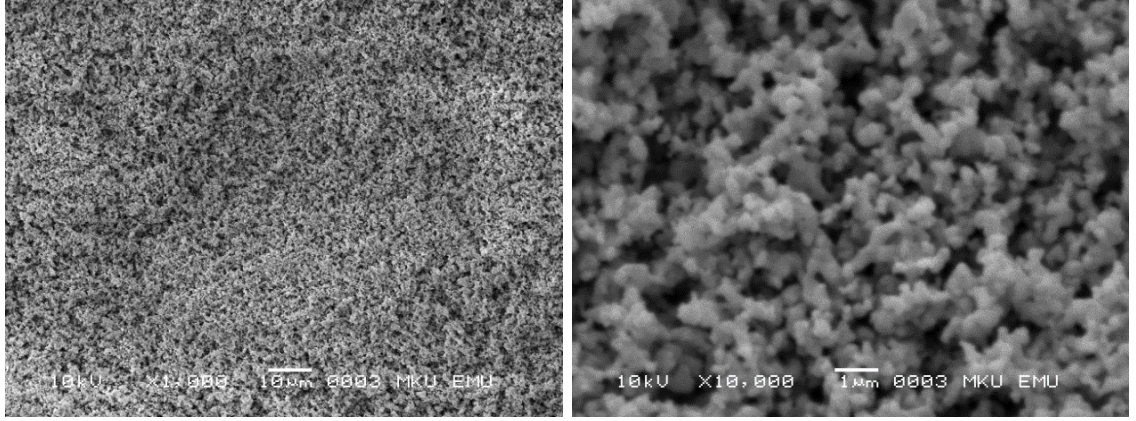


Şekil 4.50. (Devam) $\text{BaIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve In_2O_3 bileşiğine ait XRD diyagramları

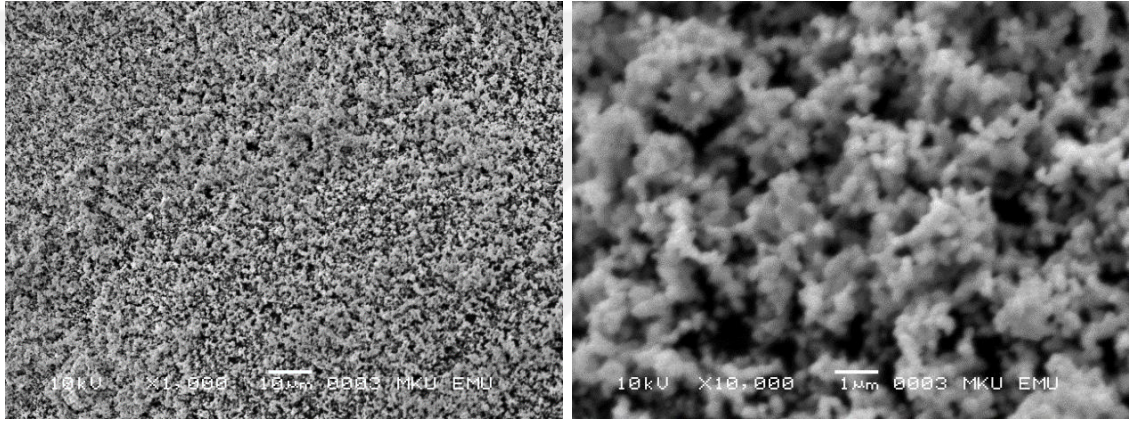
Baryum titanata 0,005 mol-0,05 mol aralığında indiyum katkılандığında, kristal yapıda herhangi bir değişim gözlenmemiştir. Katkılanan indiyumun titanyumla yer değiştirdiği kristal yapı içerisinde kalarak oksijen eksikliğine rağmen kristal yapıda bir değişim meydana getirebilecek bir büyüklük oluşturamamaktadır. Artan indiyum miktarıyla 0,075 mol indiyum katkısı ile baryum titanat yapısına katkılандığında; katkısız baryum titanatın açısall konumu 32° olan karakteristik pikinin şiddeti azalmış, yeni oluşan seramik yapıya ait pikler (30° , 44° , 54°) görülmüştür. 0,50 mole kadar olan indiyum katkısında oluşan seramik yapıya ait karakteristik piklerin (25° , 27° , 28° , 29° , 35° , 41° , 50° , 52° , 60° , 81° ..) sayısı ve pik şiddetleri giderek artmış; 0,50 mol de ise piklerin şiddetinde ve sayısında azalma meydana gelmiştir. Katkısız baryum titanat seramik yapısına indiyum iyonları katkılандığında indiyum iyonlarının titanyum iyonlarıyla yer değiştirdiği ve yapıda deformasyonlara sebep olduğu piklerde meydana gelen değişimlerle tespit edilmiştir.



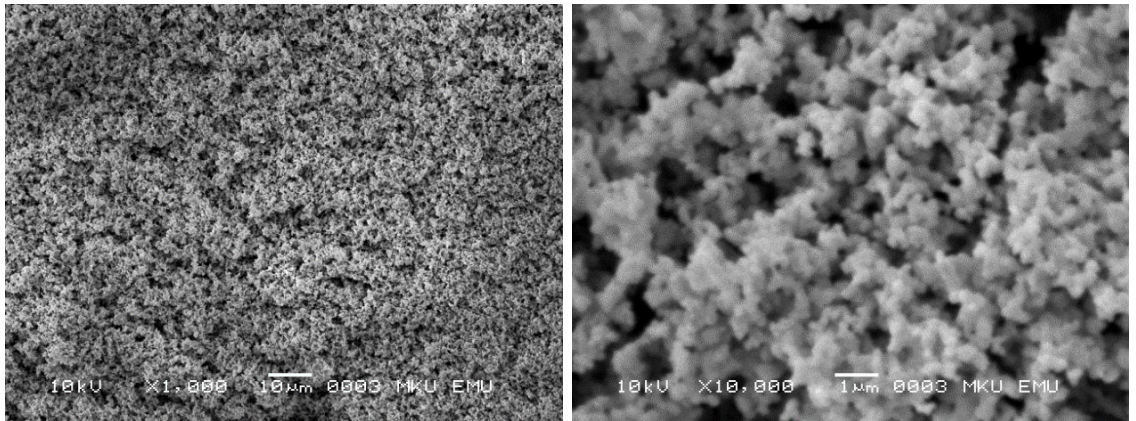
Şekil 4.51. $\text{BaIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve In_2O_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı



$\text{BaIn}_{0,005}\text{Ti}_{0,995}\text{O}_3$

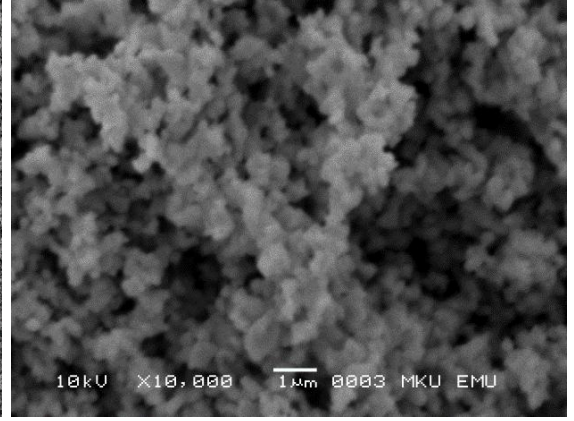
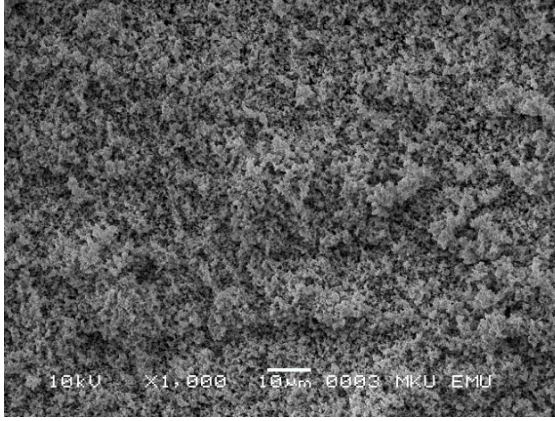


$\text{BaIn}_{0,01}\text{Ti}_{0,99}\text{O}_3$

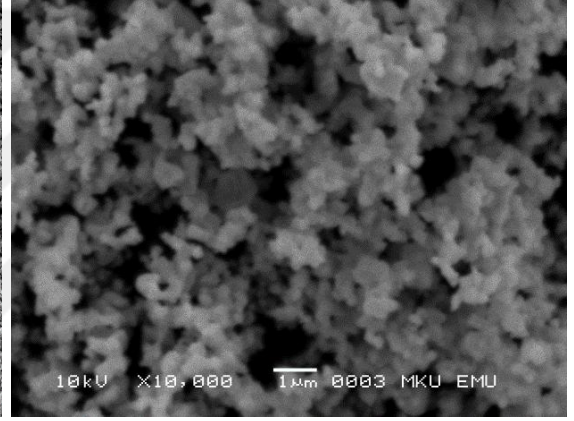
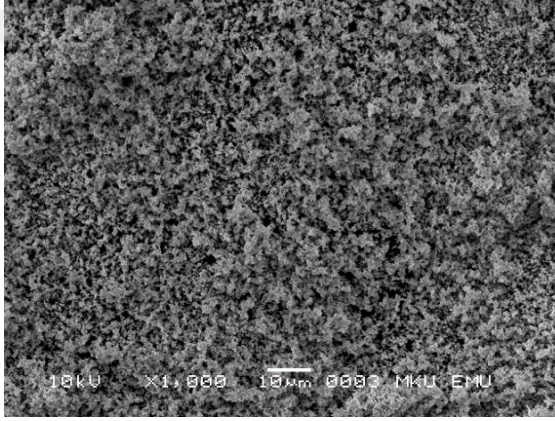


$\text{BaIn}_{0,025}\text{Ti}_{0,975}\text{O}_3$

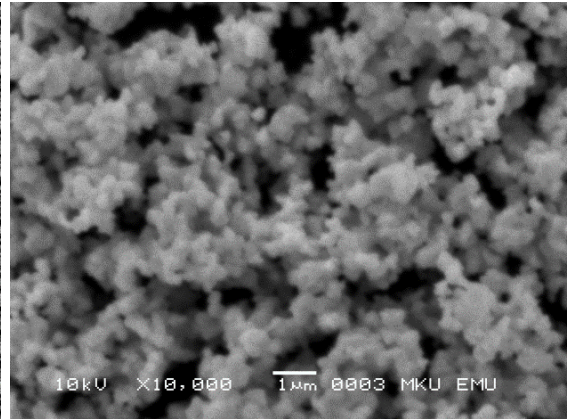
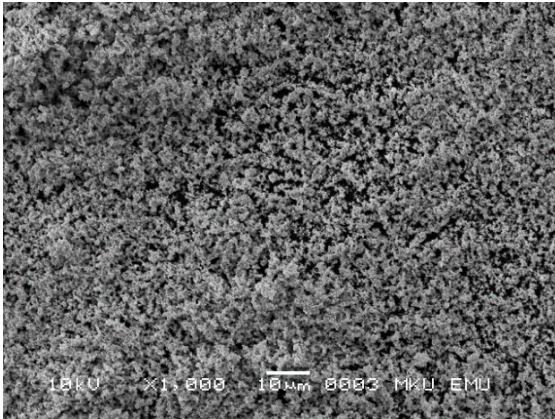
Şekil 4.52. $\text{BaIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



$\text{BaIn}_{0,05}\text{Ti}_{0,95}\text{O}_3$

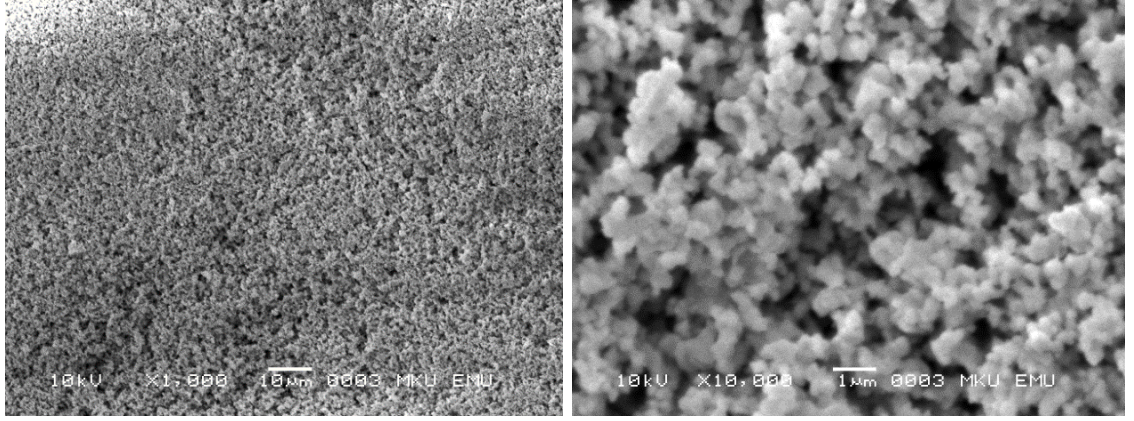


$\text{BaIn}_{0,075}\text{Ti}_{0,925}\text{O}_3$

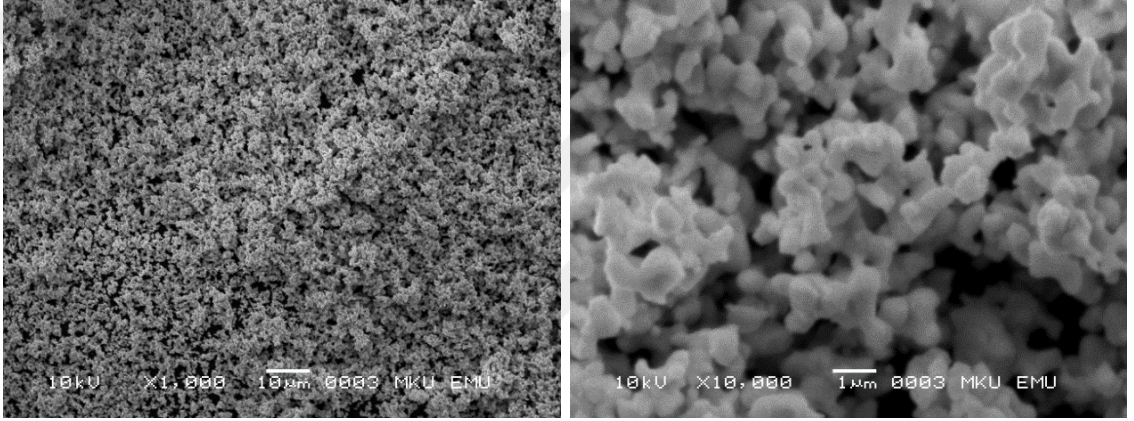


$\text{BaIn}_{0,10}\text{Ti}_{0,90}\text{O}_3$

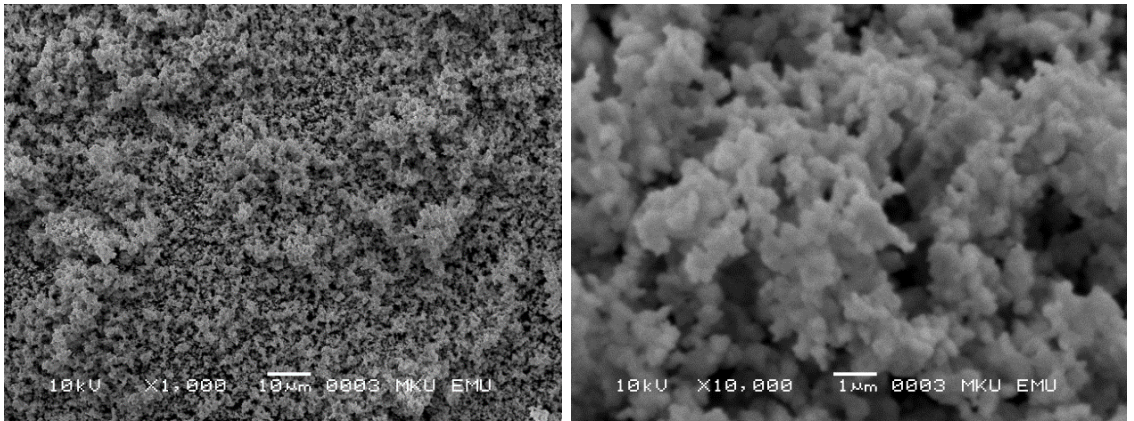
Şekil 4.52. (Devam) $\text{BaIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



$\text{BaIn}_{0,125}\text{Ti}_{0,875}\text{O}_3$



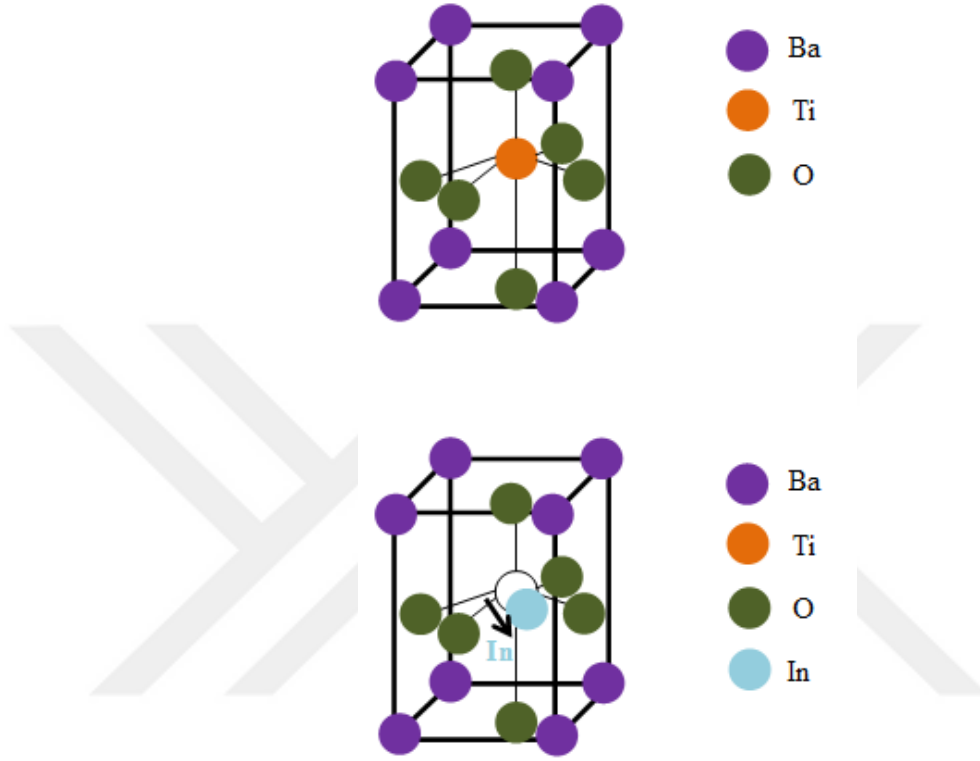
$\text{BaIn}_{0,25}\text{Ti}_{0,75}\text{O}_3$



$\text{BaIn}_{0,50}\text{Ti}_{0,50}\text{O}_3$

Şekil 4.52. (Devam) $\text{BaIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri

Elde edilen seramik yapılara ait SEM görüntüleri incelendiğinde kristal yapıyı oluşturan taneciklerin homojen bir şekilde dağıldığı ve tanecik büyüklüklerinde ise çok fazla bir değişim olmadığı görülmektedir.



Şekil 4.53. a) Tetragonal kristal yapısı (BaTiO_3 seramiği kafes yapısı) b) In_2O_3 katkılı BaTiO_3 seramiğinde In iyonu ile Ti iyonunun yer değişimi

Tetragonal kristal yapı fazına sahip olan baryum titanata indiyum katkılı olduğunda kristali oluşturan taneciklerin yöneliminde değişme meydana gelmiş ve yeni oluşan seramik yapının indiyumun kristal yapısına (kübik yapı fazı) benzediği XRD kırınım deseni incelendiğinde görülmüştür. Literatüre bakıldığında Langhammer ve arkadaşları baryum titanata indiyum iyonu gibi yapıda titanyum iyonu ile yer değiştirecek olan bakır iyonunu katkılar ve kristal yapının bakır katkısıyla birlikte tetragonal fazdan hekzagonal faza geçtiğini ifade etmişlerdir (Langhammer ve ark., 2003).

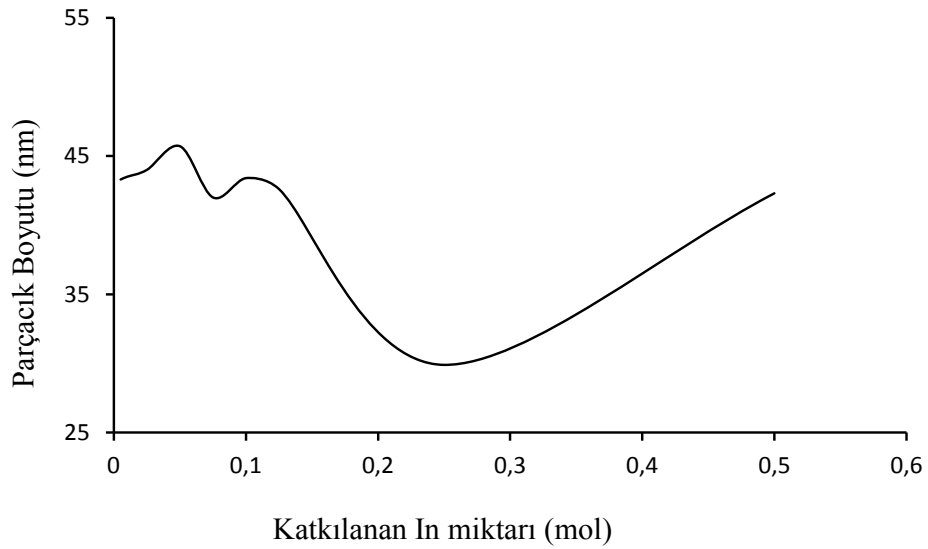
Farklı mol oranlarında indiyum katkılanan BaTiO_3 seramiklerinin her bir katkılama sonucunda elde edilen yapılarının XRD kırınım desenlerinden yararlanılarak ortalama tanecik boyutları Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ve Çizelge 4.7’de verilmiştir.

$$D = \frac{0,9 \lambda}{\beta \cos \theta} \quad \lambda = 1,5400 \text{Å} \quad (4.8)$$

Çizelge 4.7. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları

Örnek	Ortalama Tanecik Boyutu (nm)
BaIn _{0,005} Ti _{0,995} O ₃	43,3
BaIn _{0,01} Ti _{0,99} O ₃	43,5
BaIn _{0,025} Ti _{0,975} O ₃	44,0
BaIn _{0,05} Ti _{0,95} O ₃	45,7
BaIn _{0,075} Ti _{0,925} O ₃	42,0
BaIn _{0,10} Ti _{0,90} O ₃	43,4
BaIn _{0,125} Ti _{0,875} O ₃	42,6
BaIn _{0,25} Ti _{0,75} O ₃	29,9
BaIn _{0,50} Ti _{0,50} O ₃	42,3

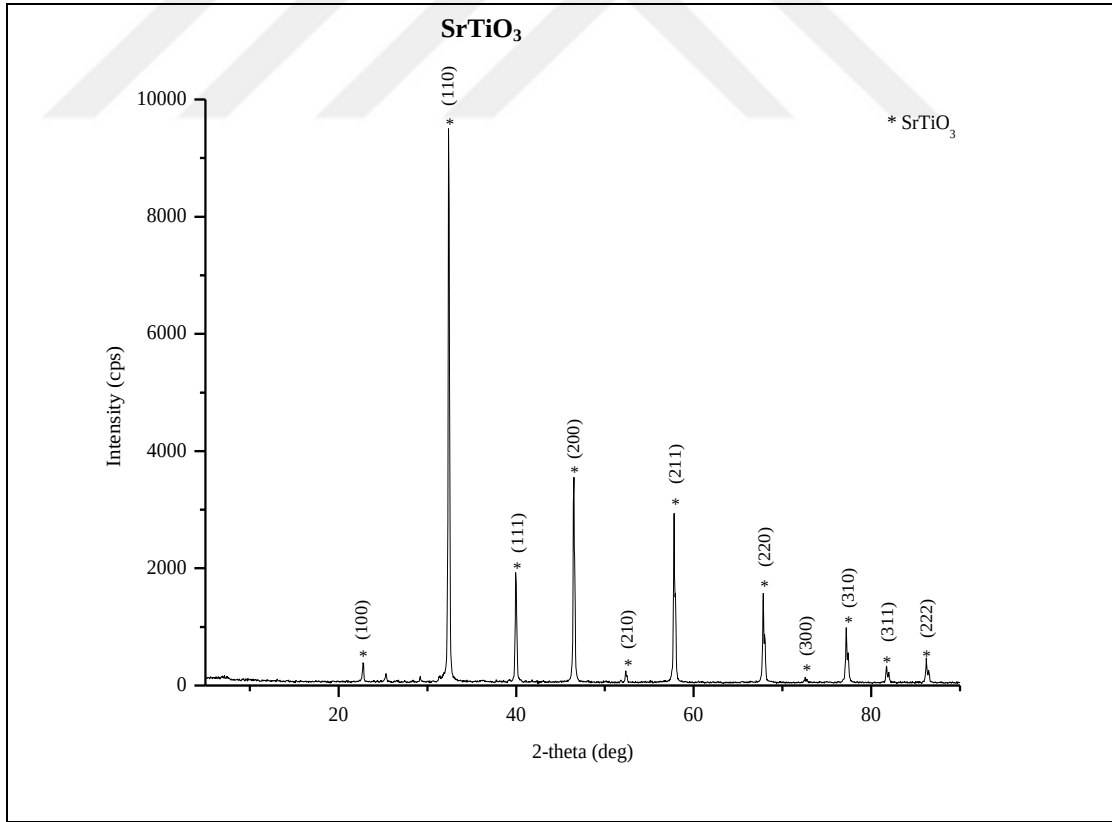
Tablodan görüldüğü gibi tanecik boyutları 29,90– 45,70 nm aralığında değişen değerler almıştır. Katkılama miktarına bağlı olarak ortalama tanecik boyutundaki değişim Şekil 4.54'deki grafikte gösterilmiştir.



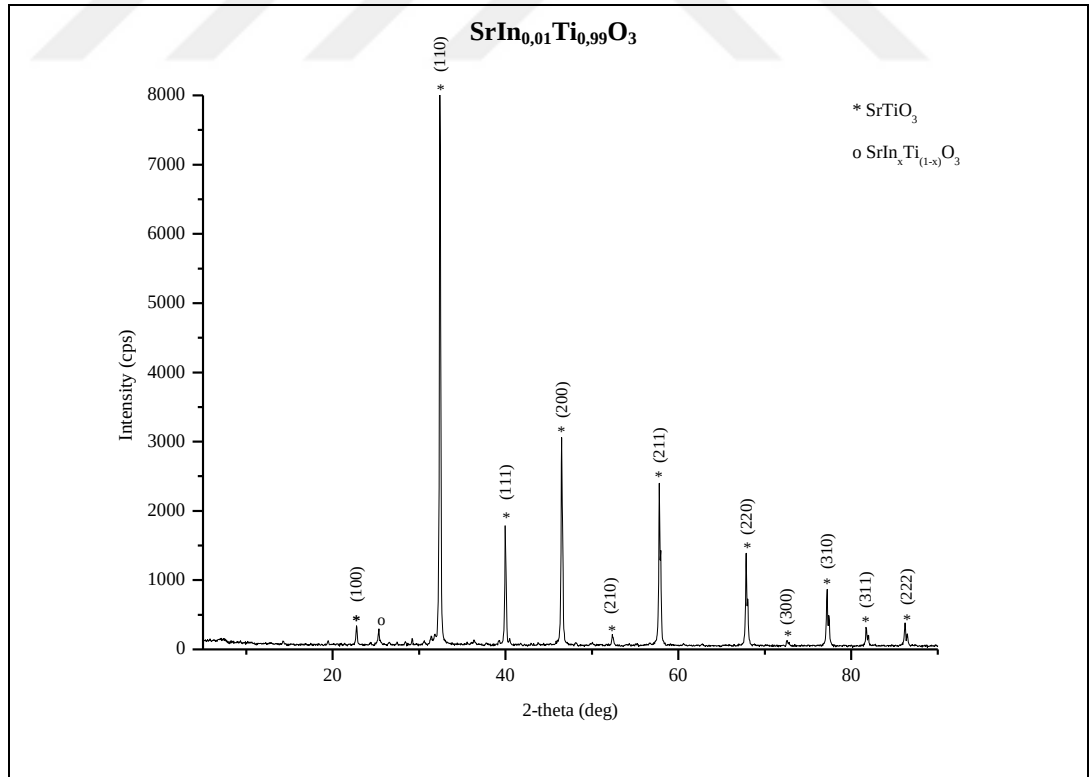
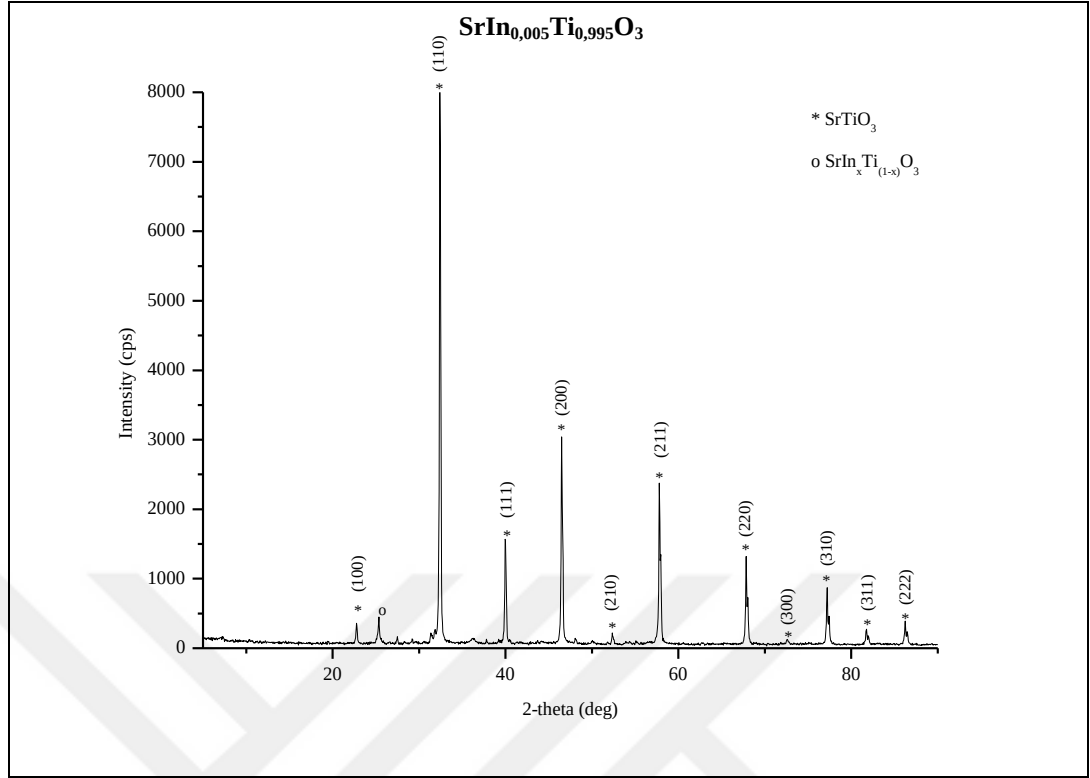
Şekil 4.54. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi

Katı hal sentez yöntemiyle elde edilen seramik yapıların XRD kırınım desenleri incelendiğinde 0,05 mole kadar yapılan indiyum katkısında kristal yapıda herhangi bir değişim gözlenmemiş; 0,075 mol oranında indiyum katkılı seramik yapı da ise yapıya ait karakteristik piklerin (30° , 44° , 54°) oluşmaya başladığı görülmüştür. Katkı miktarının artmasıyla katkısız baryum titanata ait karakteristik piklerin sayısında ve şiddetinde azalış görülürken oluşan seramik yapılara ait karakteristik piklerin sayısında ve şiddetinde artış olduğu görülmüştür. Yapıyı oluşturan taneciklerin boyutları 29,90–45,70 nm aralığında değişen değerler aldığı görülmüştür (Langhammer ve ark., 2003).

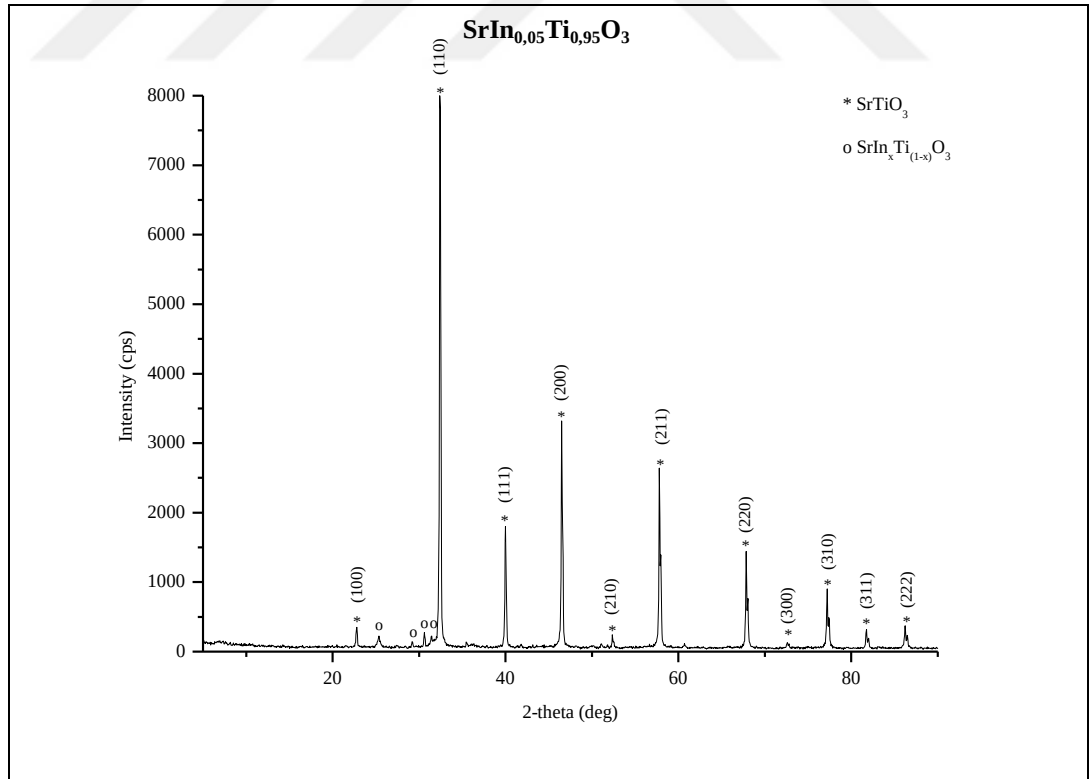
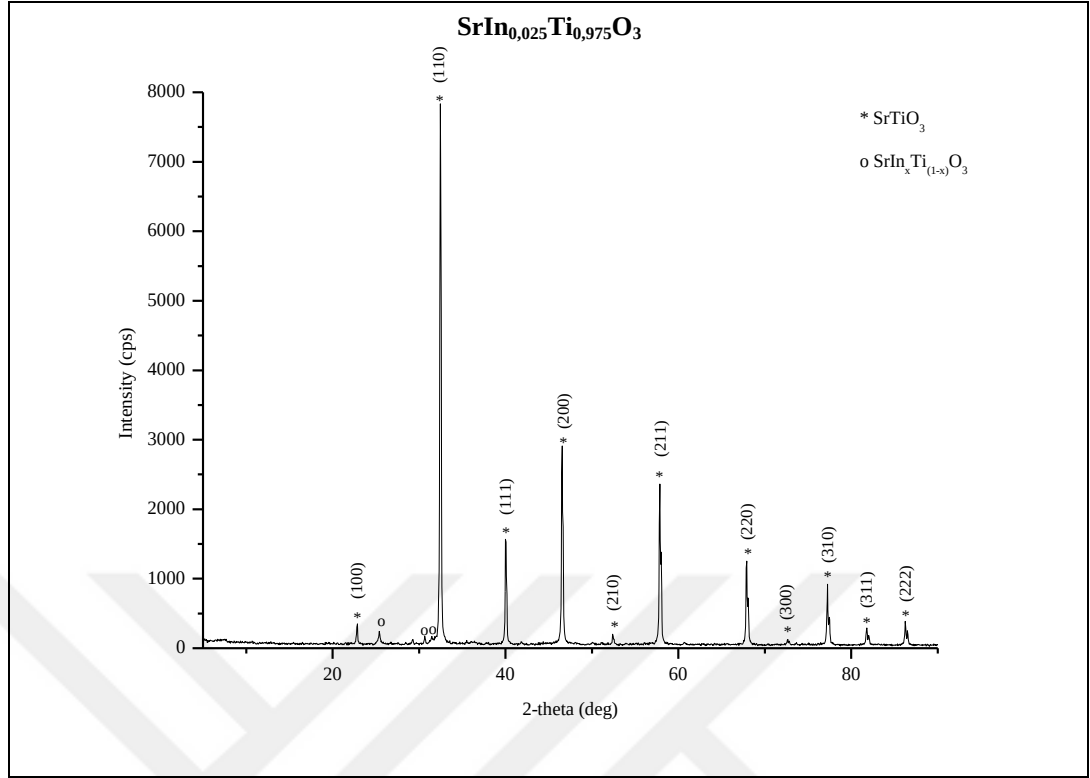
- İndiyum katkılı stronsiyum titanatın katı hal sentez yöntemiyle elde edilişi: Katı hal sentez yöntemi ile farklı mol oranlarında $\text{SrIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) katkılı seramik tozları bölüm 3.2.3.3’de anlatıldığı gibi sentezlenmiş ve kalsine edilmiştir. Elde edilen katkılı seramik tozların ve katkılanan In_2O_3 katkı maddesinin $5^\circ \leq 2\theta \leq 90^\circ$ aralığında ki X-ışını kırınım desenleri Şekil 4.55 ve Şekil 4.56’da; SEM görüntüleri ise Şekil 4.57’de verilmiştir.



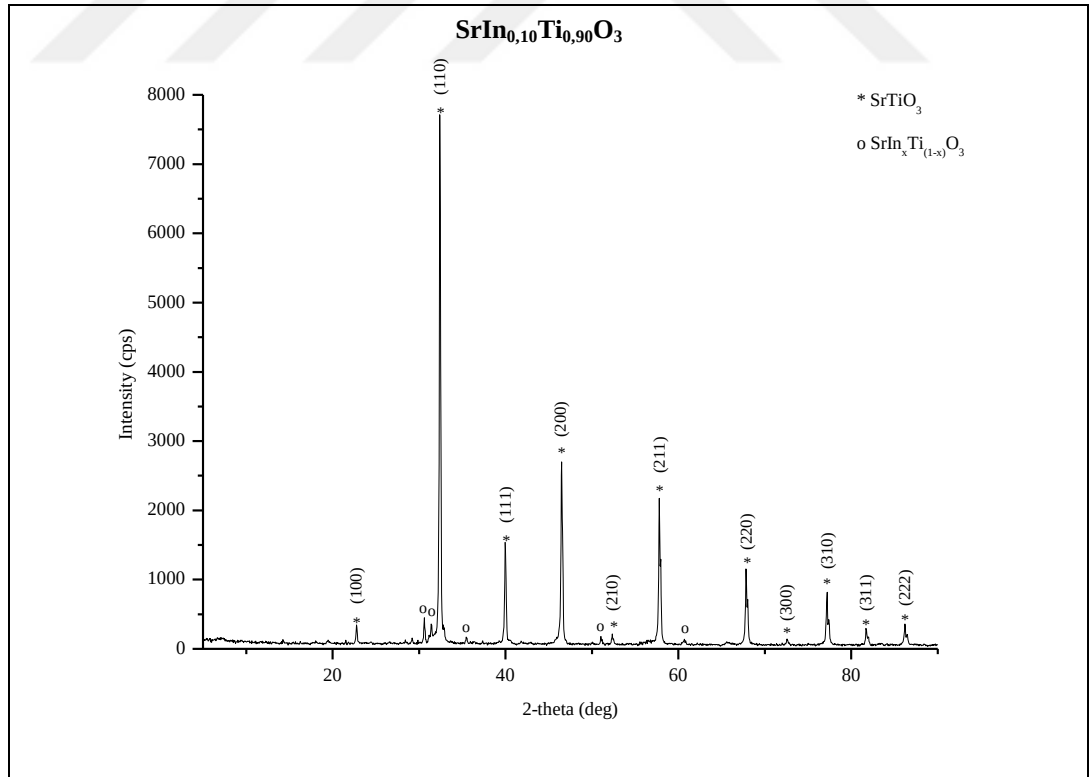
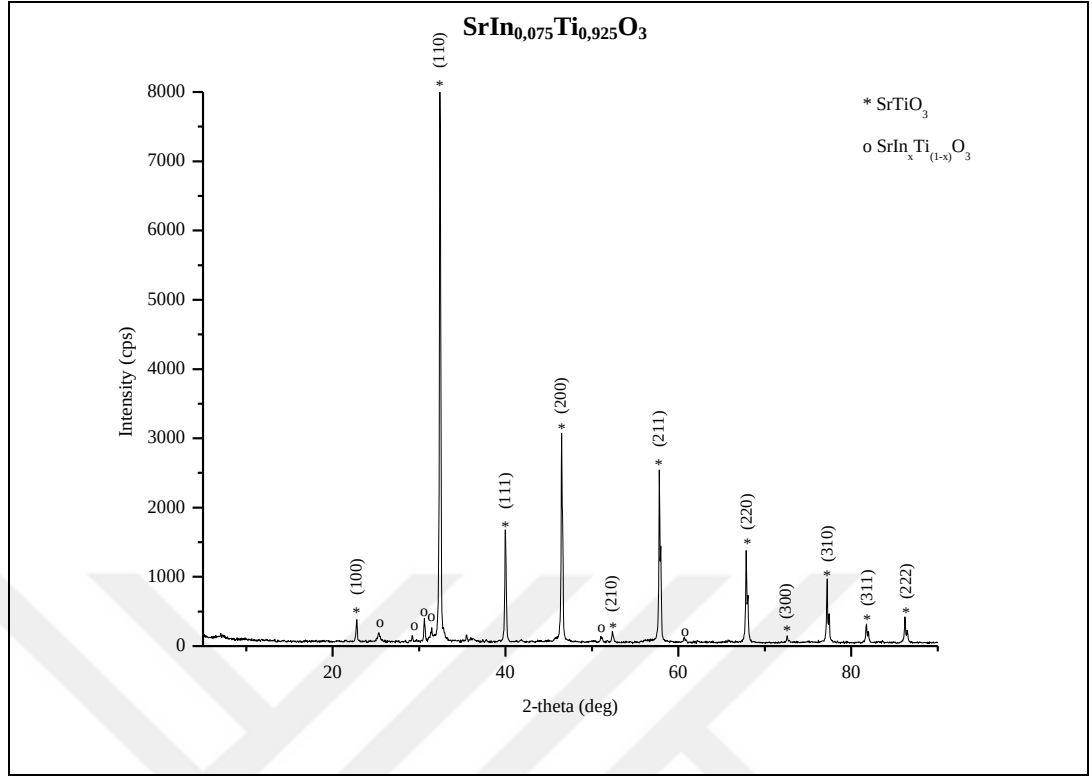
Şekil 4.55. $\text{SrIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve In_2O_3 bileşiğine ait XRD diyagramları



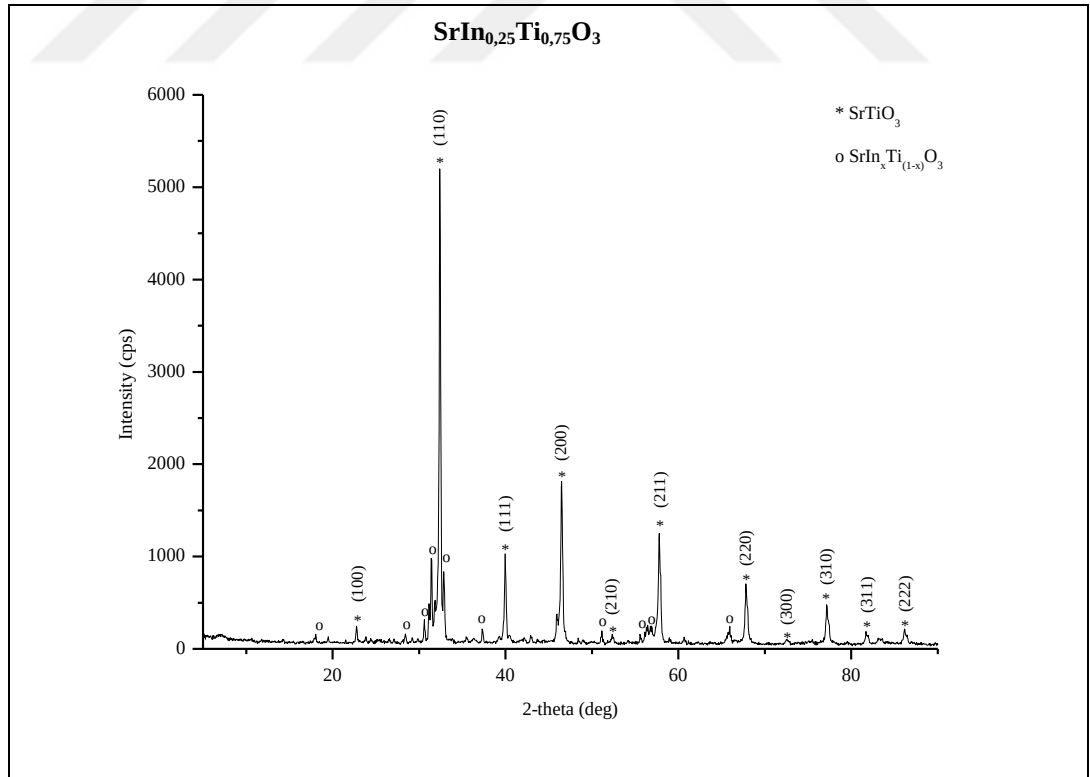
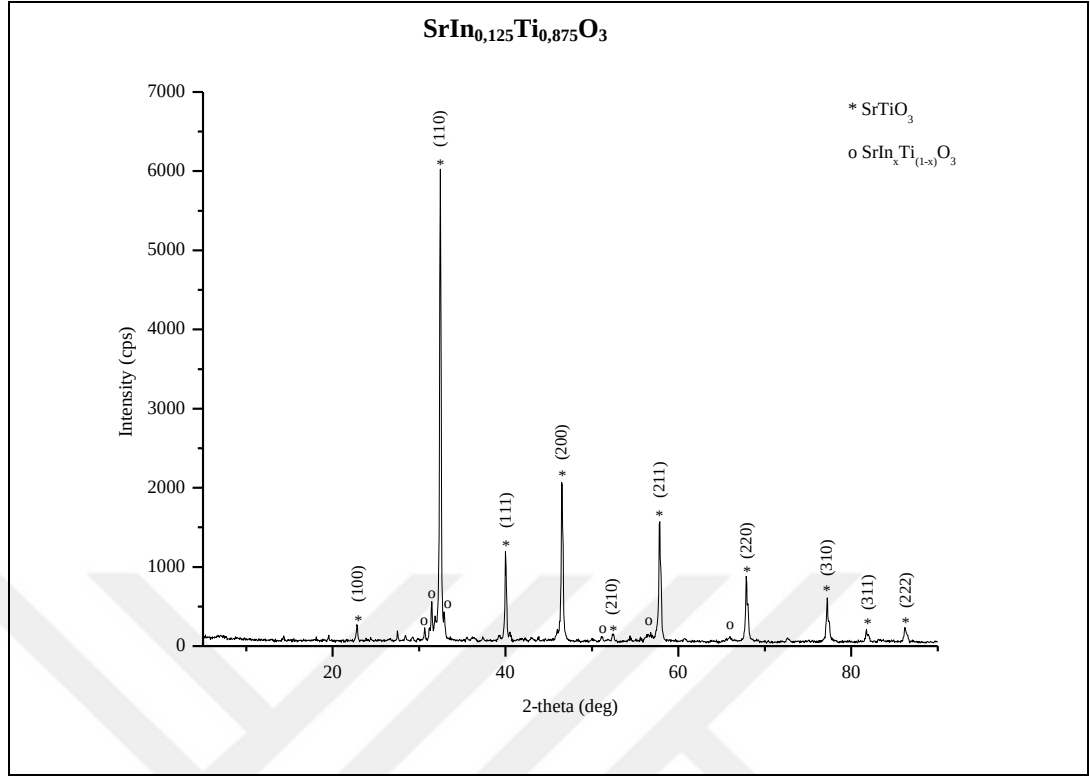
Şekil 4.55. (Devam) SrIn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve In₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



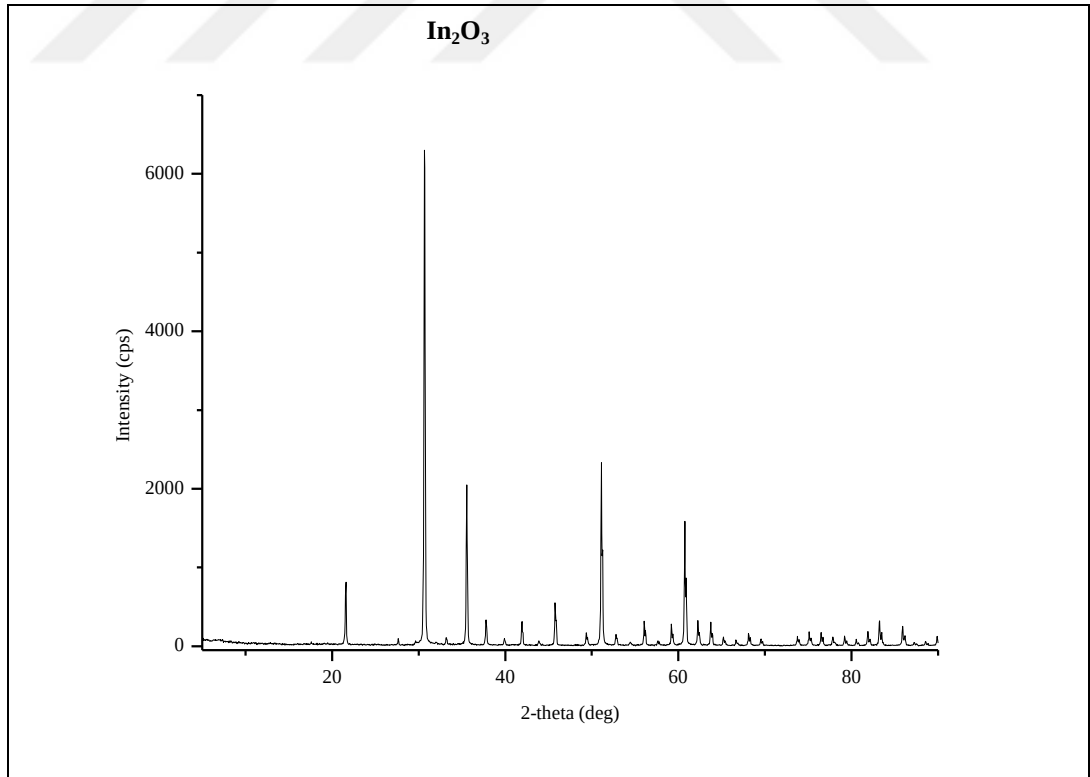
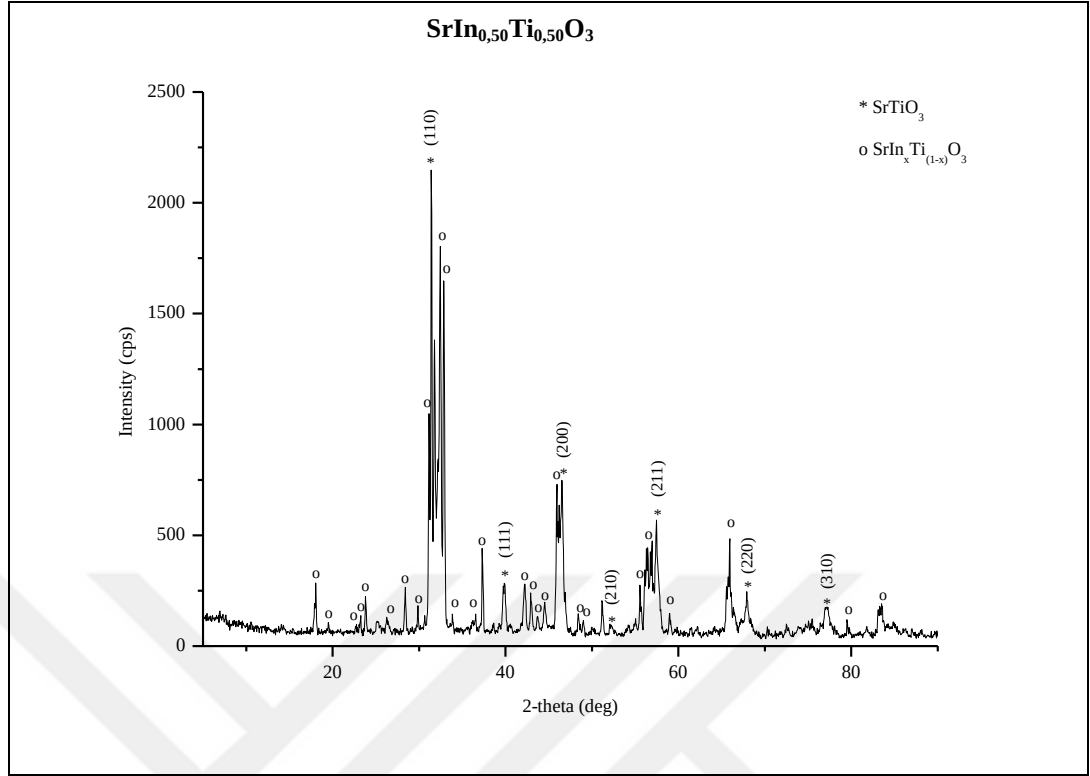
Şekil 4.55. (Devam) SrIn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve In₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



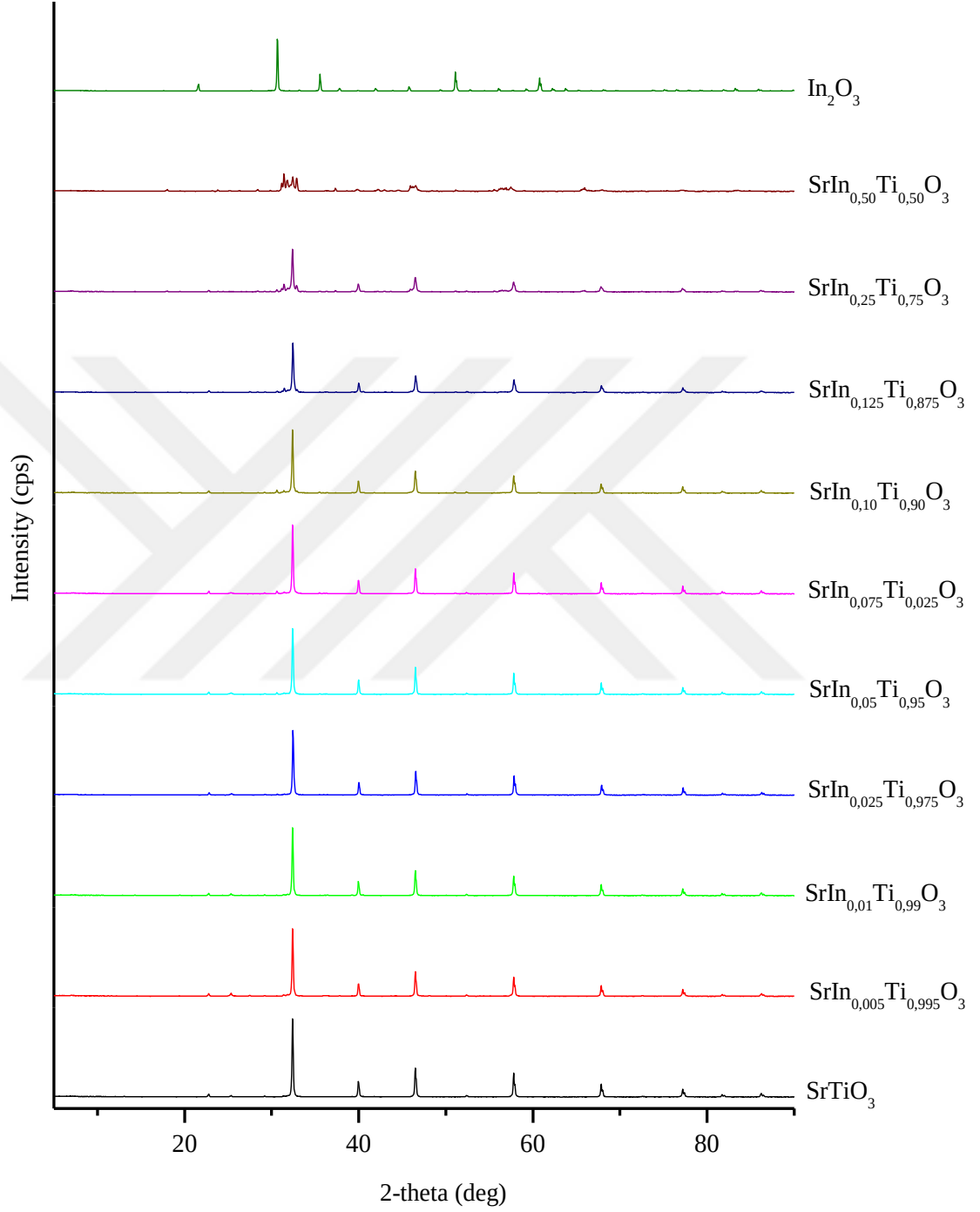
Şekil 4.55. (Devam) SrIn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve In₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



Şekil 4.55. (Devam) SrIn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve In₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları

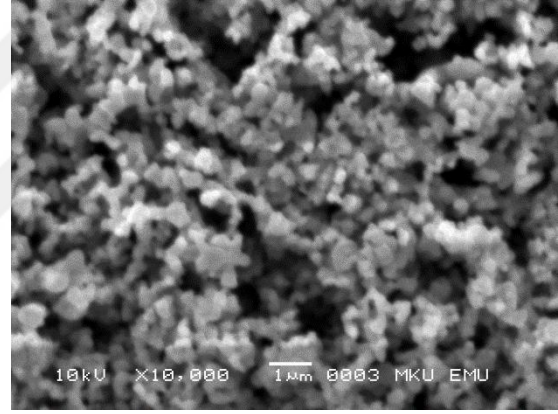
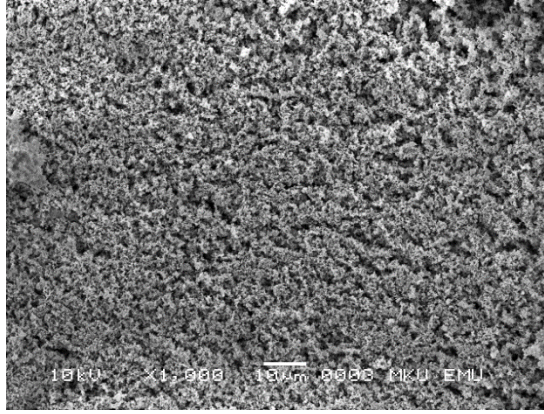


Şekil 4.55. (Devam) SrIn_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve In₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları

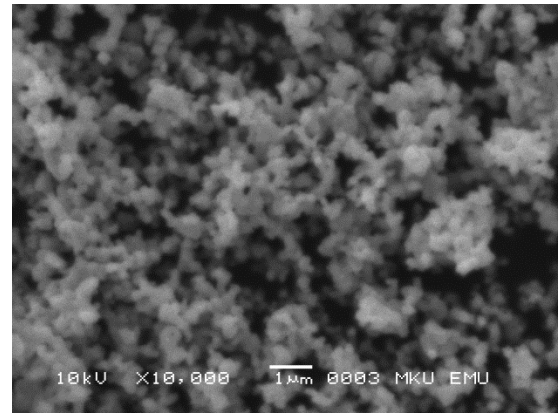
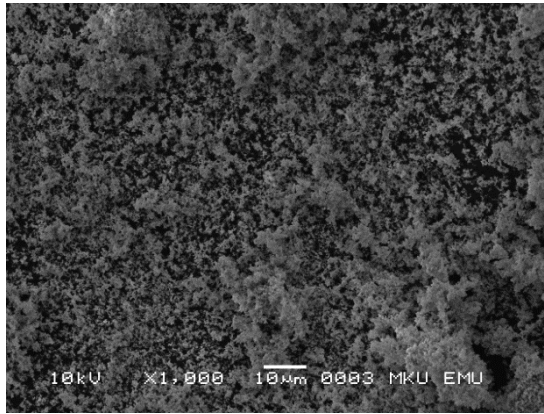


Şekil 4.56. $\text{SrIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve In_2O_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı

Stronsiyum titanata 0,005 mol indiyum katkıldığında stronsiyum titanatın karakteristik piklerinin dışında 25° açı değerinde yeni oluşan seramik yapıya ait bir pik meydana gelmiştir. Katkı miktarı arttıkça 25° açı değerindeki pikin kaybolduğu, yapıya ait farklı karakteristik piklerin (18° , 23° , 31° , 32° , 42° , 46° , 51° , 56° , 65°) oluştuğu; SrTiO_3 yapısına ait karakteristik piklerin şiddetinde (22° , 32° , 40° , 46° , 52° , 57° , 67° , 72° , 77° , 81° , 86°) azalma meydana geldiği görülmüştür. Yoon ve arkadaşları katı oksit yakıt hücrelerinin anodu için lantanyum stronsiyum titanat yapısına farklı mol oranlarında rutenyum iyonunu katkılamlıdır. Katkılama sonucunda rutenyumun lantanyum stronsiyum titanat yapısında titanyum ile yer değiştirerek ve XRD diyagramında rutenyuma ait yeni karakteristik piklerin oluştuğunu belirtmişlerdir (Yoon ve ark., 2015).

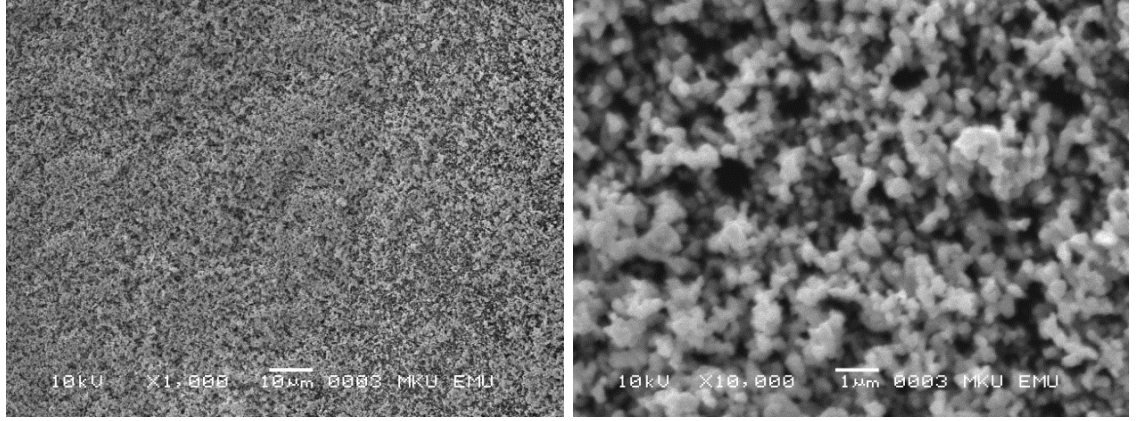


$\text{SrIn}_{0,005}\text{Ti}_{0,995}\text{O}_3$

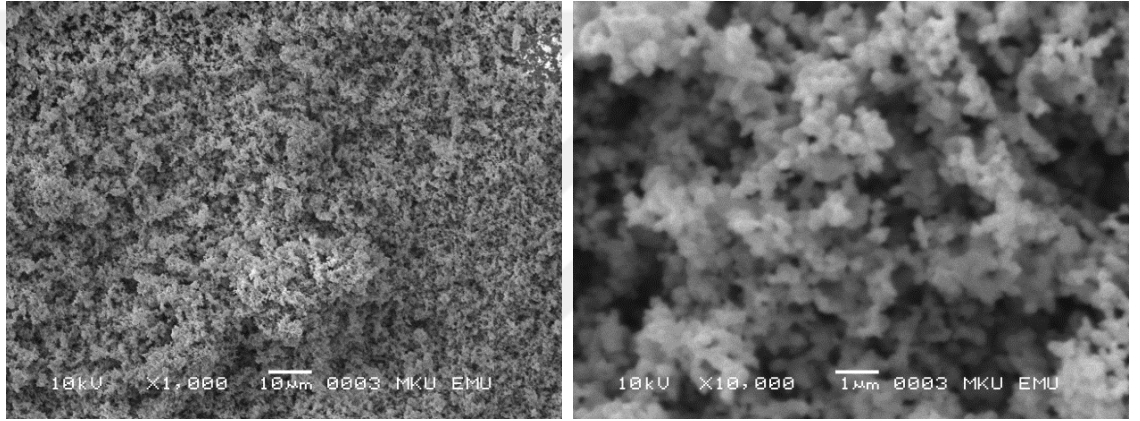


$\text{SrIn}_{0,01}\text{Ti}_{0,99}\text{O}_3$

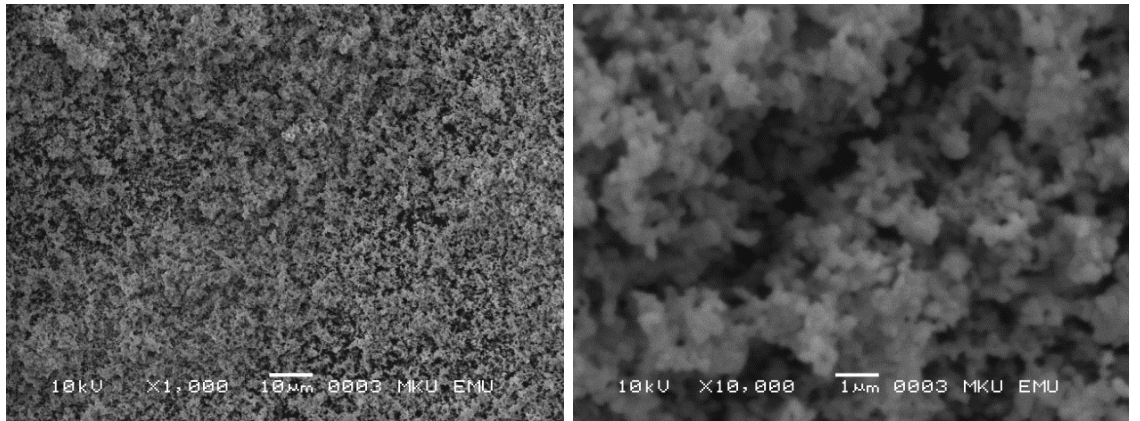
Şekil 4.57. $\text{SrIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



$\text{SrIn}_{0,025}\text{Ti}_{0,975}\text{O}_3$

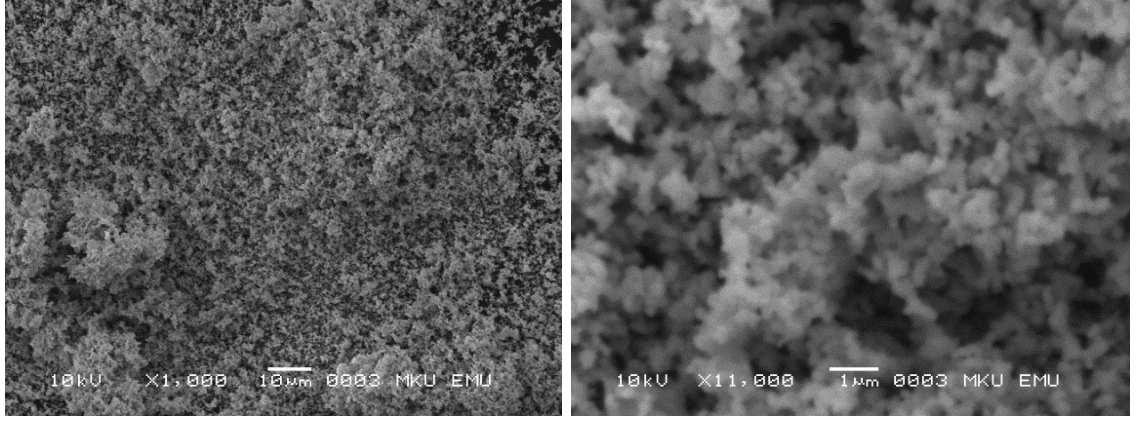


$\text{SrIn}_{0,05}\text{Ti}_{0,95}\text{O}_3$

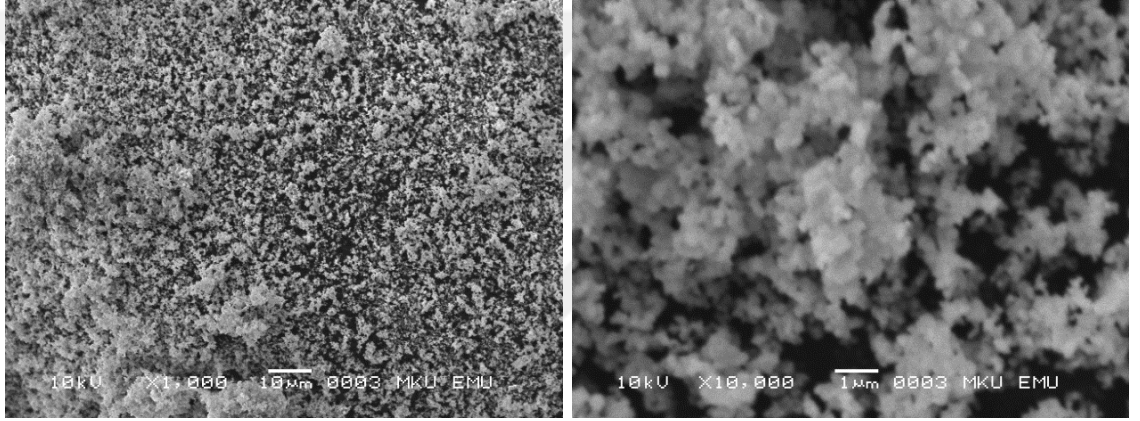


$\text{SrIn}_{0,075}\text{Ti}_{0,925}\text{O}_3$

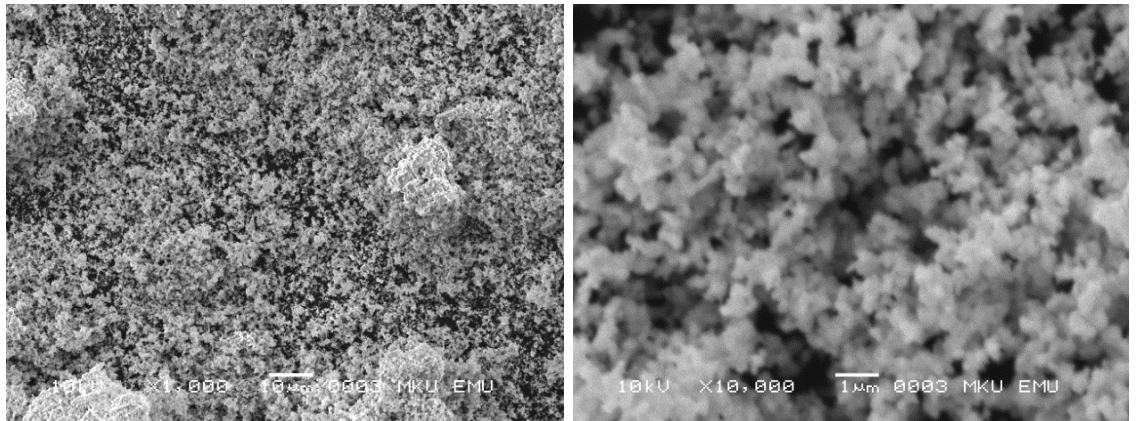
Şekil 4.57. (Devam) $\text{SrIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ait SEM görüntüleri



$\text{SrIn}_{0,10}\text{Ti}_{0,90}\text{O}_3$



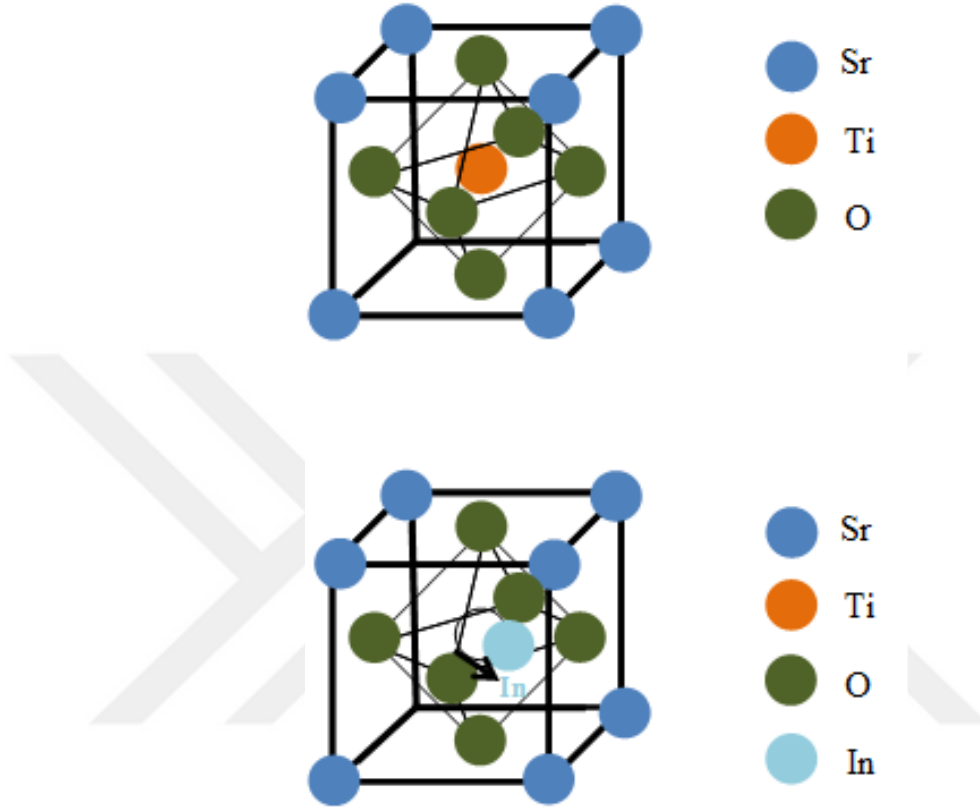
$\text{SrIn}_{0,25}\text{Ti}_{0,75}\text{O}_3$



$\text{SrIn}_{0,5}\text{Ti}_{0,5}\text{O}_3$

Şekil 4.57. (Devam) $\text{SrIn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri

SEM görüntüleri incelendiğinde de kübik yapı fazının yapıya hakim olduğu, taneciklerin yapı içerisinde homojen bir dağılım gösterdiği ve ortalama tanecik büyüklüklerinin katkı miktarıyla değişmediği belirlenmiştir.



Şekil 4.58. a) Kübik kristal yapı (SrTiO_3 seramiği kafes yapısı) b) In_2O_3 katkılı SrTiO_3 seramiğinde In iyonu ile Ti iyonunun yer değişimi

Stronsiyum titanat ve In_2O_3 kübik kristal yapı fazına sahiptir. Bundan dolayı katkısız stronsiyum titanata indiyum iyonlarının katkılanmasıyla elde edilen bütün seramik yapılar da kristal yapı değişmeyip kübik olarak kaldığı tespit edilmiştir. Elde edilen seramik tozlar aynı kristal yapıya sahip olmalarına rağmen kristal yapıyı oluşturan taneciklerin yönelimleri, yapı parametreleri (a, b, c) farklı olduğu için XRD kırınım desenlerinde yapıya ait piklerde değişiklik görülmüştür. Literatür incelendiğinde Hu ve arkadaşları benzer bir çalışma olarak stronsiyum titanata farklı mol oranlarında disprosyum iyonunu katı hal sentez yöntemini kullanarak katkılanmışlardır. Elde ettikleri seramiklerin XRD analizlerine göre katkısız stronsiyum titanatla disprosyum katkılı stronsiyum titanat seramiklerinin aynı kristal örgü yapısına (kübik) sahip olduğunu;

kristal yapı parametrelerinde ise değişiklikler görüldüğünü ifade etmişlerdir (Hu ve ark., 2014).

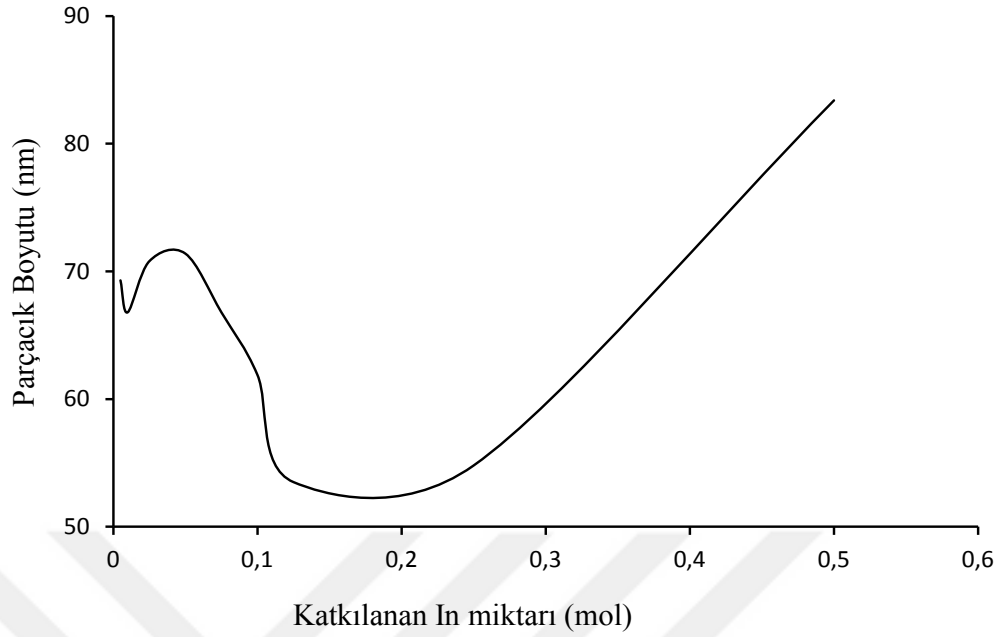
Farklı mol oranlarında indiyum katkılanan SrTiO_3 seramiklerinin her bir katkılama sonucunda elde edilen yapılarının XRD kırınım desenlerinden yararlanılarak ortalama tanecik boyutları Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ve Çizelge 4.8’de verilmiştir.

$$D = \frac{0,9 \lambda}{\beta \cos \theta} \quad \lambda = 1,5400 \text{Å} \quad (4.9)$$

Çizelge 4.8. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları

Örnek	Ortalama Tanecik Boyutu (nm)
$\text{SrIn}_{0,005}\text{Ti}_{0,995}\text{O}_3$	69,3
$\text{SrIn}_{0,01}\text{Ti}_{0,99}\text{O}_3$	66,8
$\text{SrIn}_{0,025}\text{Ti}_{0,975}\text{O}_3$	70,8
$\text{SrIn}_{0,05}\text{Ti}_{0,95}\text{O}_3$	71,4
$\text{SrIn}_{0,075}\text{Ti}_{0,925}\text{O}_3$	66,8
$\text{SrIn}_{0,10}\text{Ti}_{0,90}\text{O}_3$	61,9
$\text{SrIn}_{0,125}\text{Ti}_{0,875}\text{O}_3$	53,5
$\text{SrIn}_{0,25}\text{Ti}_{0,75}\text{O}_3$	54,8
$\text{SrIn}_{0,50}\text{Ti}_{0,50}\text{O}_3$	83,4

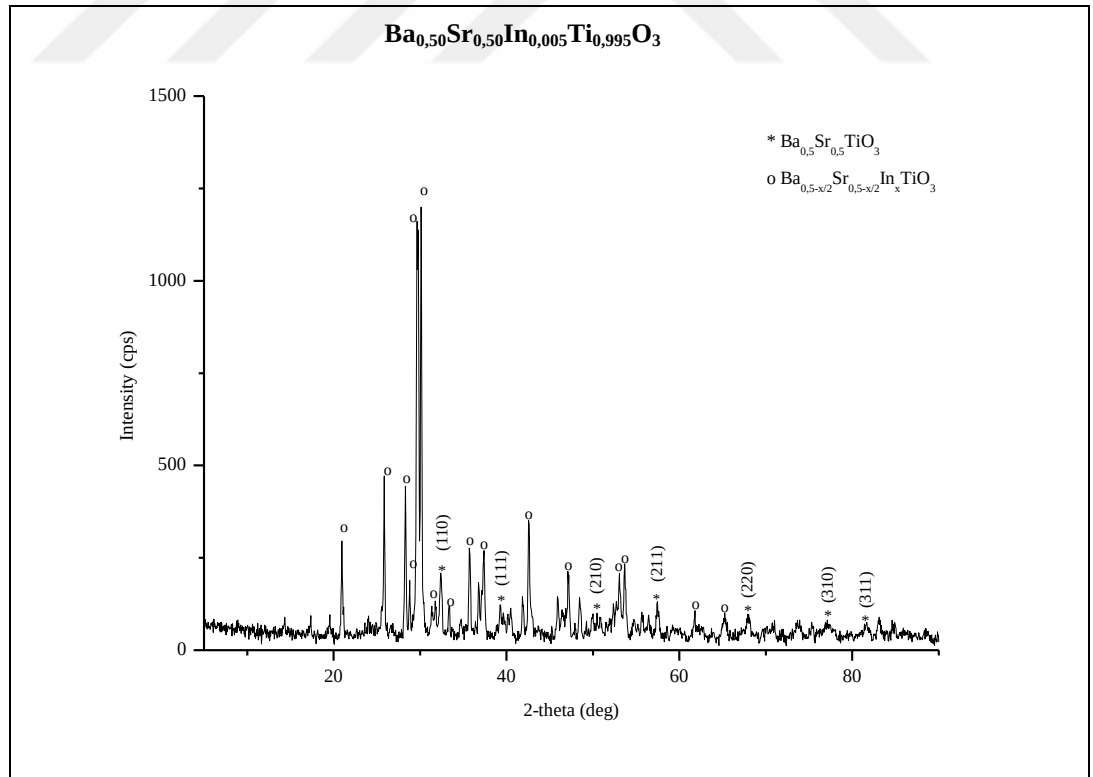
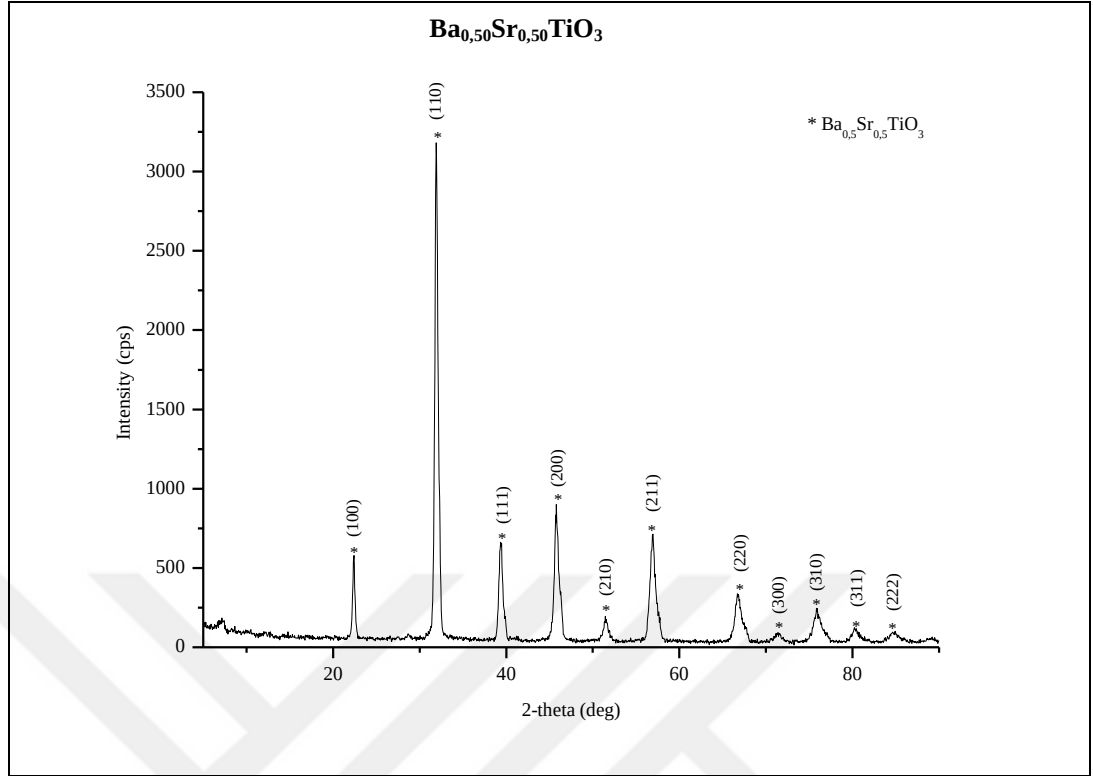
Tablodan da görüldüğü gibi tanecik boyutları 53,5 – 83,4 nm aralığında değişen değerler almaktadır. 0,01 molden 0,075 mole kadar yapılan indiyum katkılarında katkı miktarının artışıyla kristal yapıyı oluşturan taneciklerin boyutunda artış, 0,075 molden daha fazla indiyum katkılандığında ise tanecik boyutunda azalış meydana gelmiştir. 0,50 mol indiyum stronsiyum titanat yapısına katkılандığında ise tanecik boyutunda artış olmuştur. Katkılama miktarına bağlı olarak ortalama tanecik boyutundaki değişim Şekil 4.59’daki grafikte gösterilmiştir.



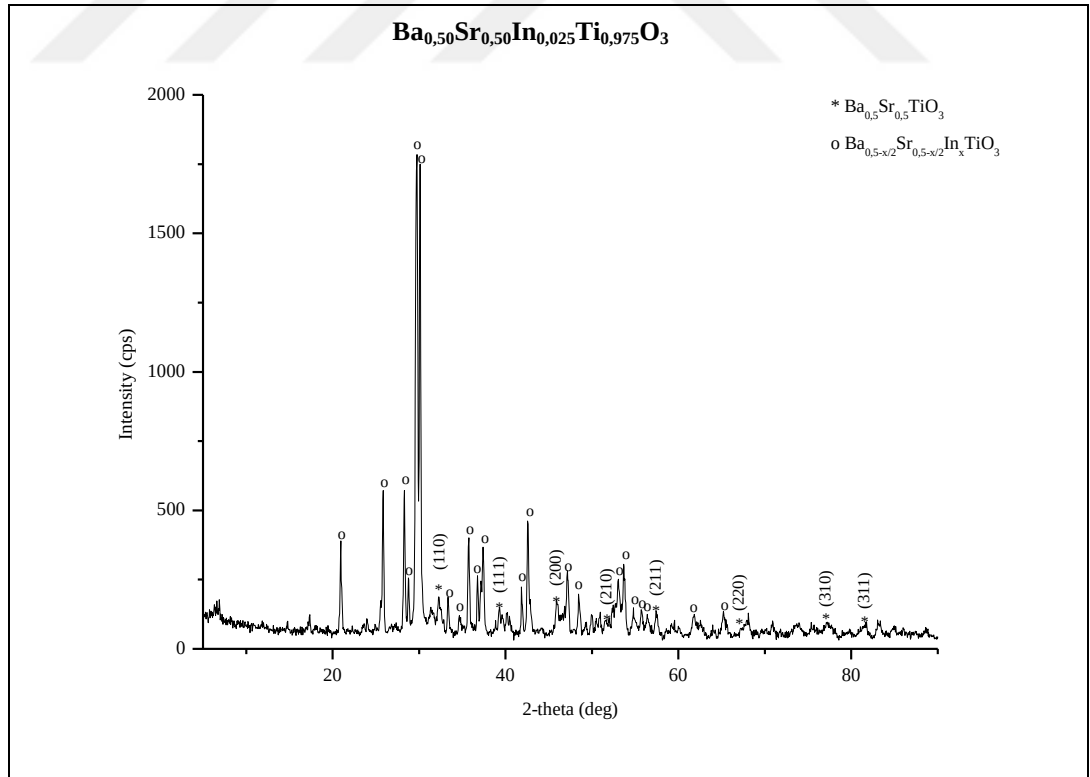
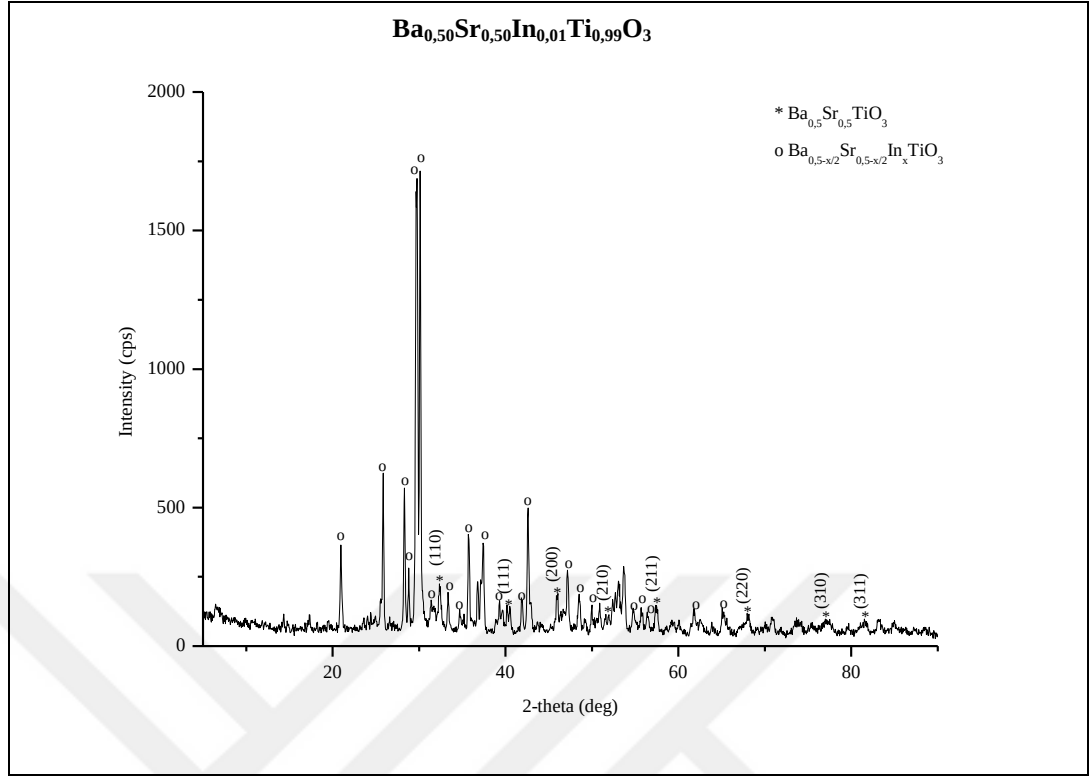
Şekil 4.59. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi

İndiyum iyonunun stronsiyum titanata katkılanmasıyla elde edilen seramik yapılarda katkı miktarının artışıyla seramik yapıya ait karakteristik piklerin sayısında ve şiddetinde artış olduğu; stronsiyum titanata ait piklerin sayısında ve şiddetinde ise azalış olduğu tespit edilmiştir. Elde edilen bütün seramik yapılar kübik kristal yapı fazına sahip olmakla birlikte yapıyı oluşturan taneciklerin ortalama boyutları 53,5 – 83,4 nm aralığında değişmektedir (Hu ve ark., 2014; Yoon ve ark., 2015).

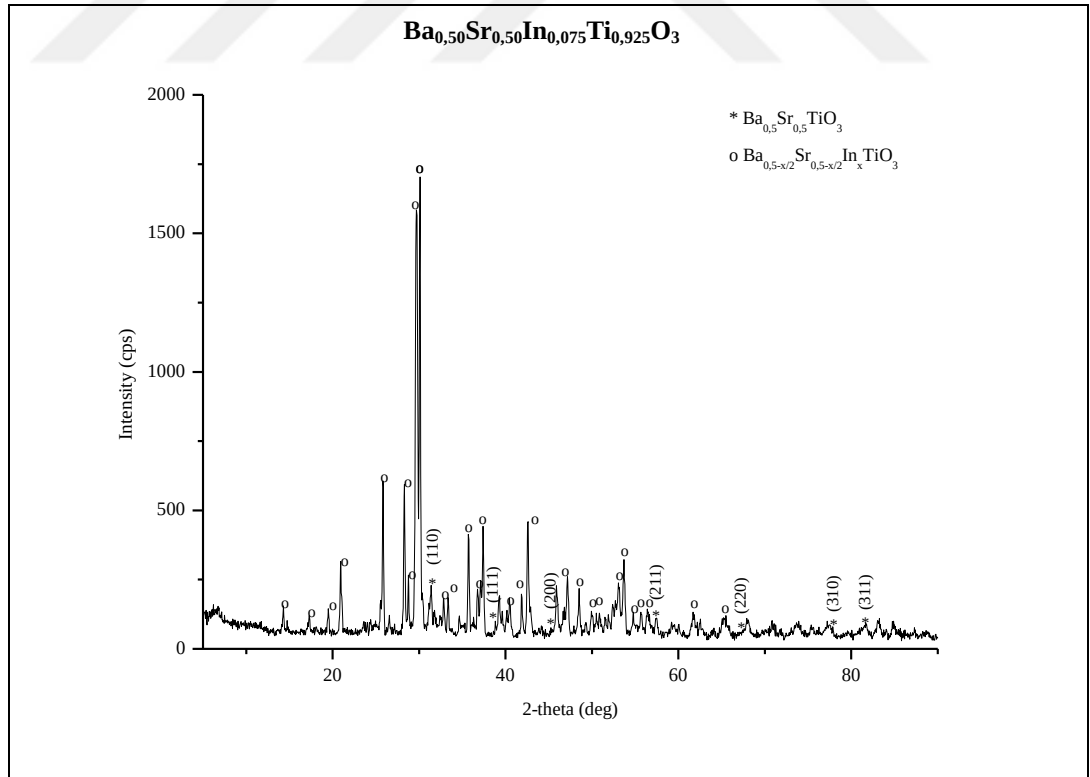
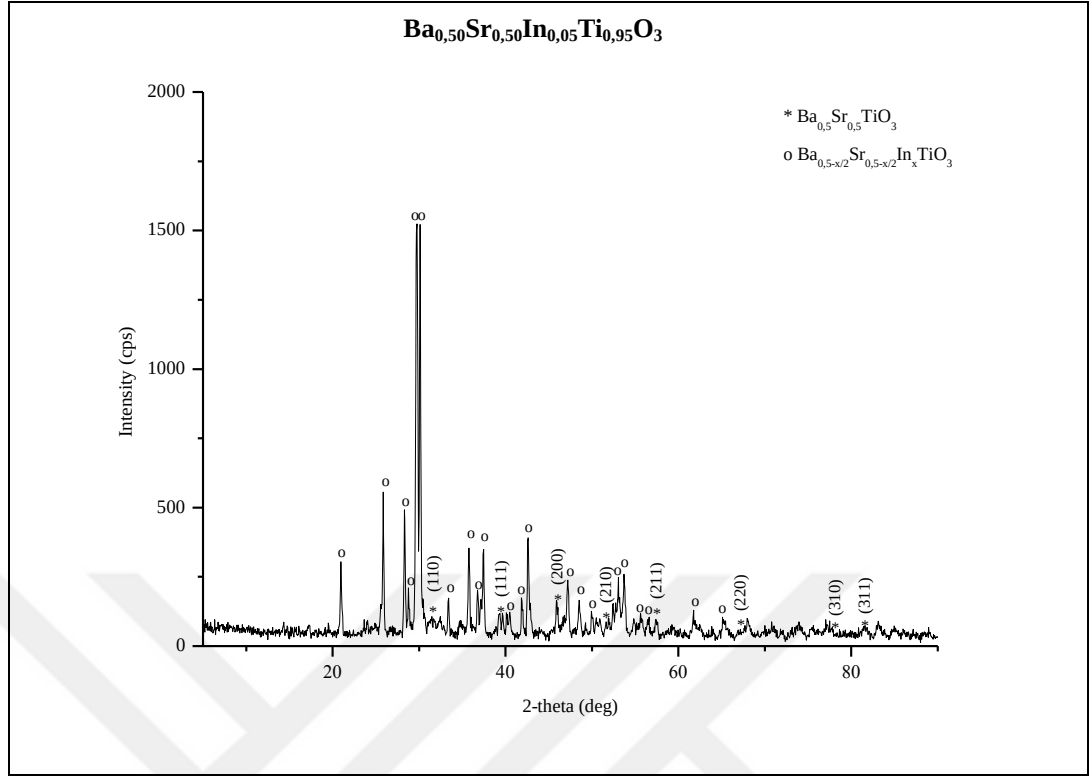
- **İndiyum katkılı baryum/stronsiyum titanatın katı hal sentez yöntemiyle elde edilişi:** Katı hal sentez yöntemi ile farklı mol oranlarında $Ba_{0,5}Sr_{0,5}In_xTi_{1-x}O_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) katkılı seramik tozları bölüm 3.2.3.3’de anlatıldığı gibi sentezlenmiş ve kalsine edilmiştir. Elde edilen seramik tozların ve katkılanan In_2O_3 katkı maddesinin $5^\circ \leq 2\theta \leq 90^\circ$ aralığında ki XRD kırınım desenleri Şekil 4.60 ve Şekil 4.61’de; SEM görüntüleri ise Şekil 4.62’de verilmiştir.



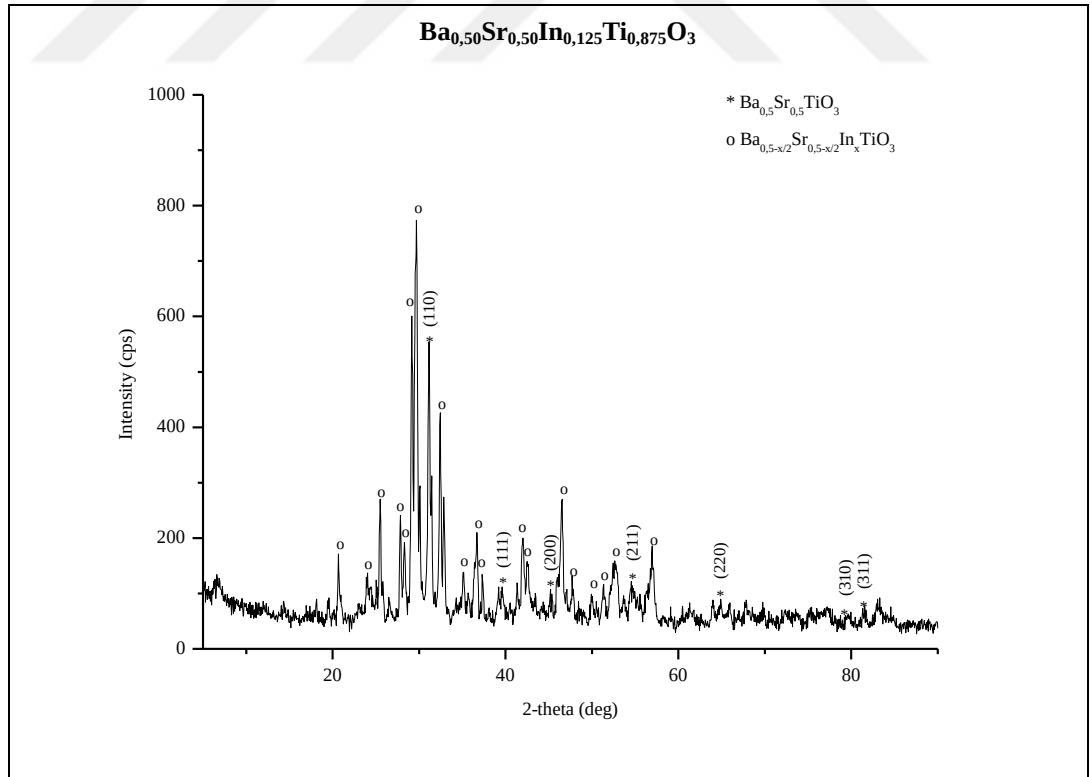
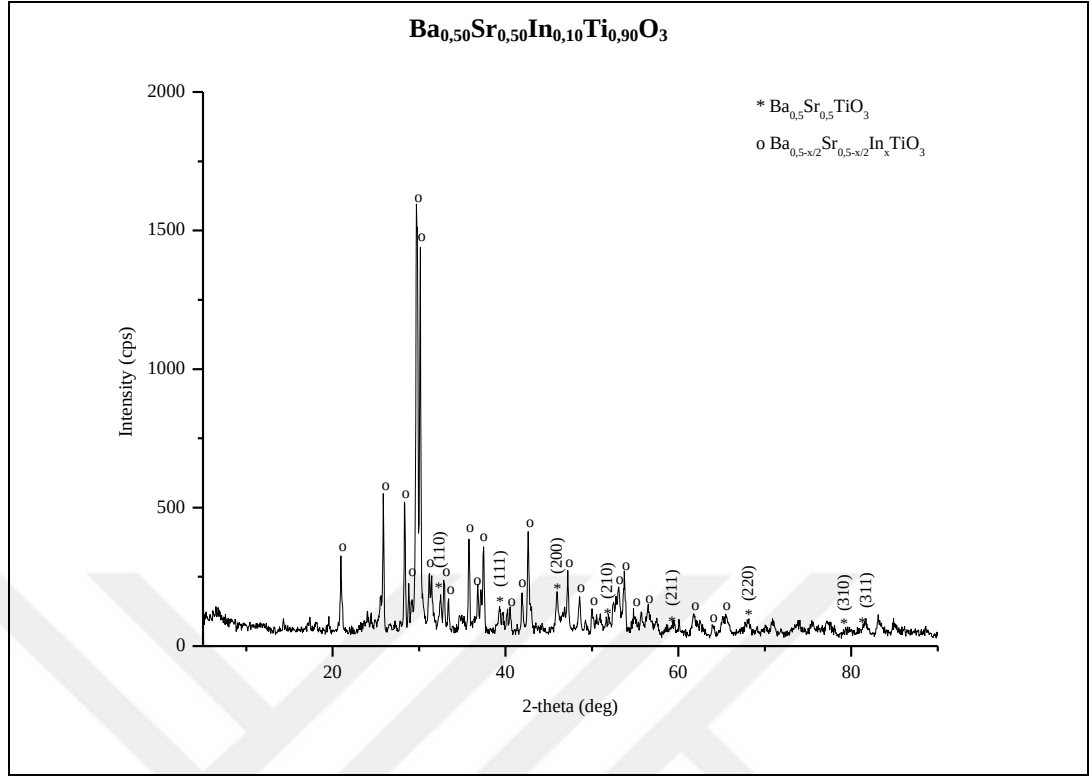
Şekil 4.60. Ba_{0,5}Sr_{0,5}In_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve In₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



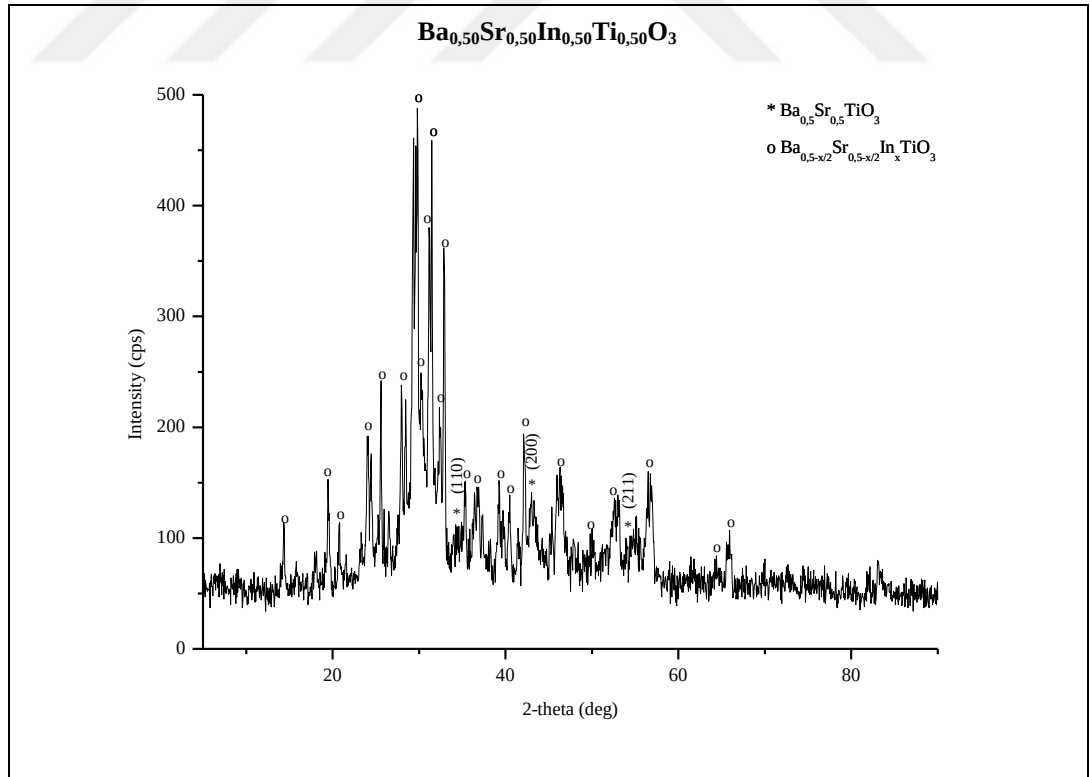
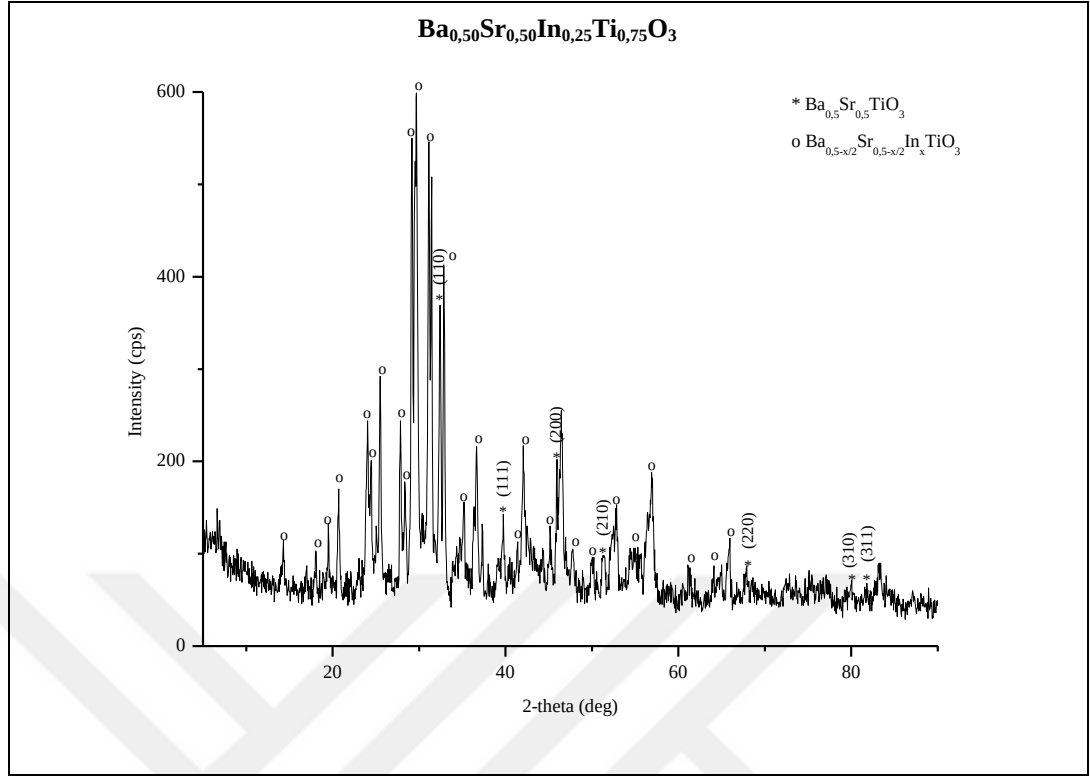
Şekil 4.60. (Devam) Ba_{0,5}Sr_{0,5}In_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve In₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



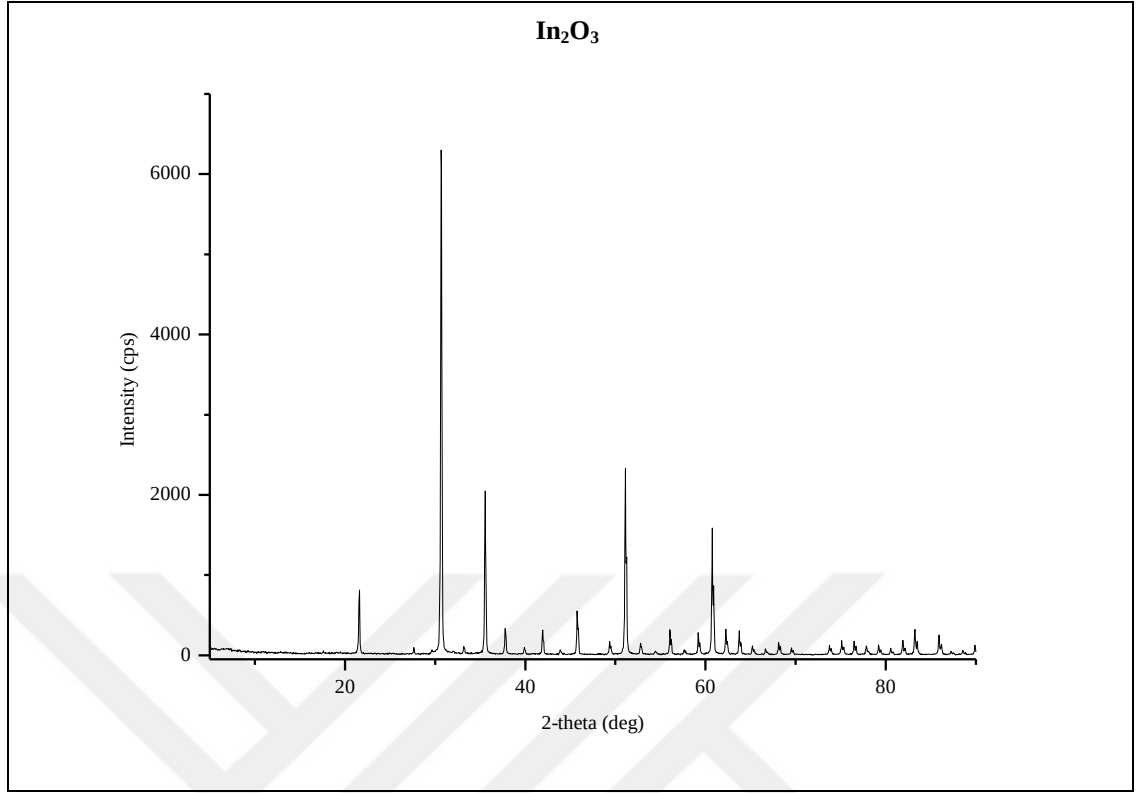
Şekil 4.60. (Devam) Ba_{0,5}Sr_{0,5}In_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve In₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



Şekil 4.60. (Devam) Ba_{0,5}Sr_{0,5}In_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve In₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



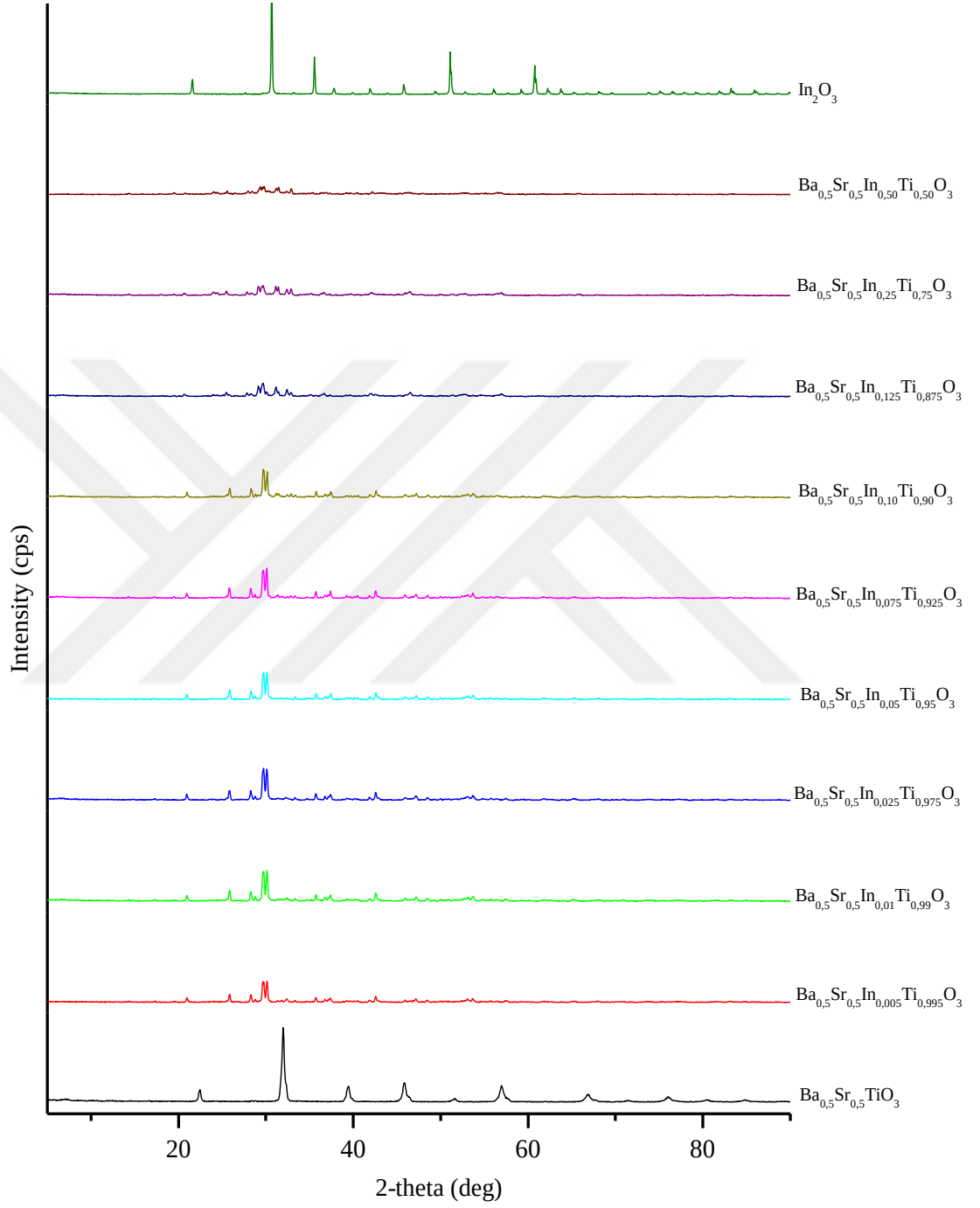
Şekil 4.60. (Devam) Ba_{0,5}Sr_{0,5}In_xTi_{1-x}O₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve In₂O₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



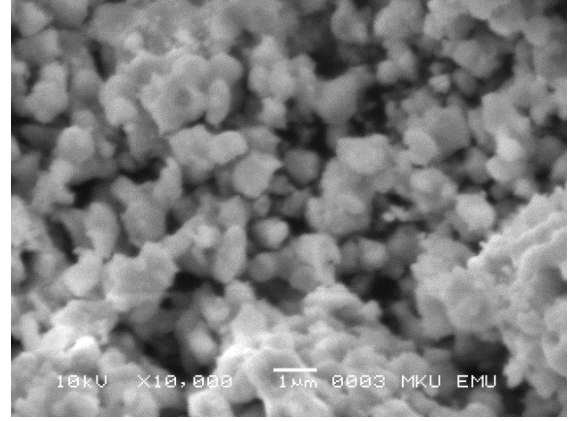
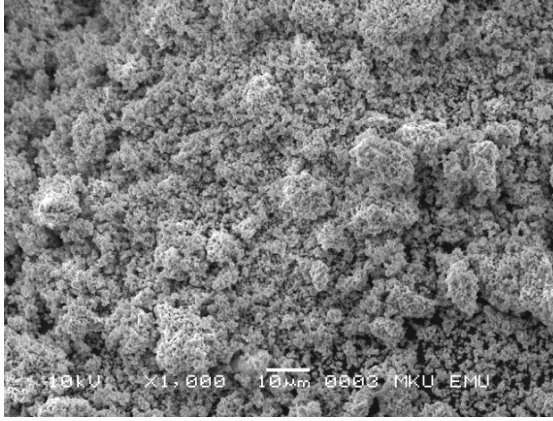
Şekil 4.60. (Devam) $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve In_2O_3 bileşiğine ait XRD diyagramları

Baryum stronsiyum titanata 0,005 mol - 0,50 mol aralığında indiyum katkılандığında kristal yapıda en küçük katkı oranından itibaren değişim gözlenmiş, yeni oluşan yapıya ait karakteristik pikler belirginleşmiştir. Katkısız baryum stronsiyum titanatın açılal konumu 32° olan karakteristik pikinin şiddeti yapıya katılalanan indiyumun katkı miktarı arttıkça artmış; indiyum katkı miktarı 0,10 molün üzerine çıktığında bu pikin şiddetinde azalma meydana gelmiştir. Katkılama miktarıyla birlikte piklerde meydana gelen bu değişimler kristal yapının deforme olduğunu ve yeni kristal yapı fazının meydana geldiğini göstermektedir.

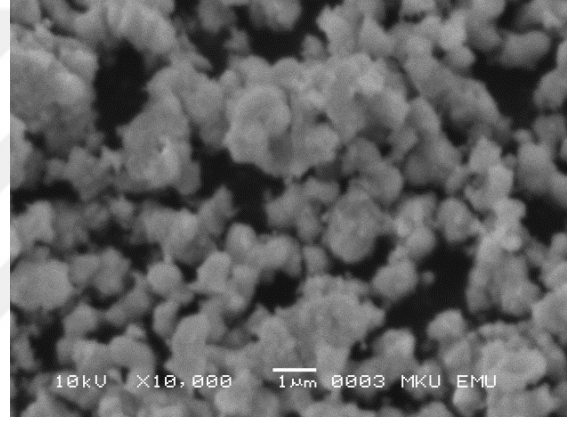
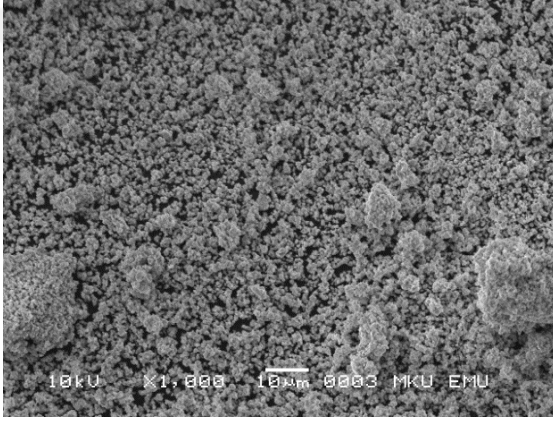
Attar ve arkadaşları baryum stronsiyum titanata farklı mol oranlarında bizmut iyonunu sol-jel metodunu kullanarak katkılamlışlardır. Bizmut iyonunun yarıçapı titanyum iyonuna yakın olduğu için baryum stronsiyum titanat yapısında tıpkı indiyum iyonunda olduğu gibi titanyum iyonuyla yer değıştirmiştir. XRD analizlerine göre bizmut katkısıyla birlikte yeni oluşan yapıya ait karakteristik piklerin var olduğunu; bizmut katkılı bileşiklerin katkısız baryum stronsiyum titanatın kristal yapı fazıyla aynı kristal yapı fazına sahip olduğunu belirtmişlerdir (Attar ve ark., 2017).



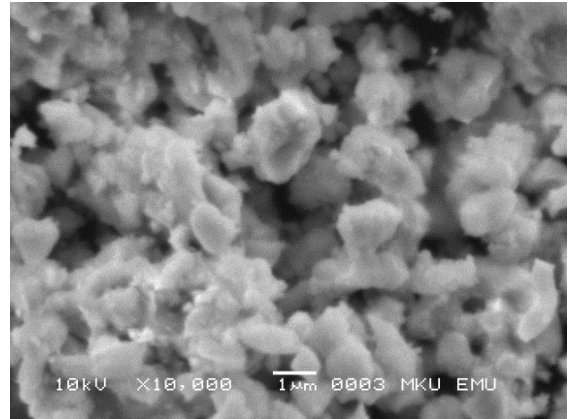
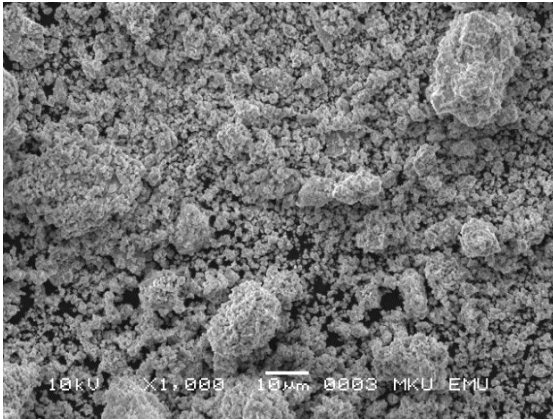
Şekil 4.61. $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve In_2O_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı



$\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_{0,01}\text{Ti}_{0,99}\text{O}_3$

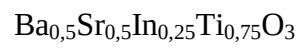
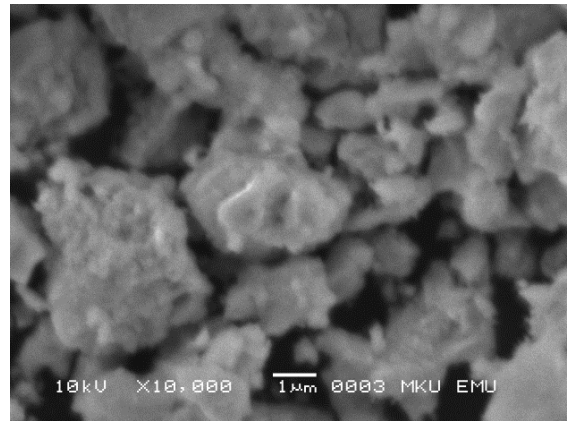
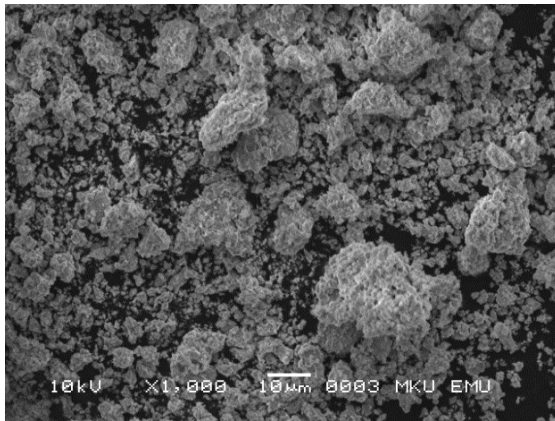
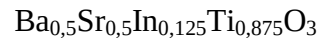
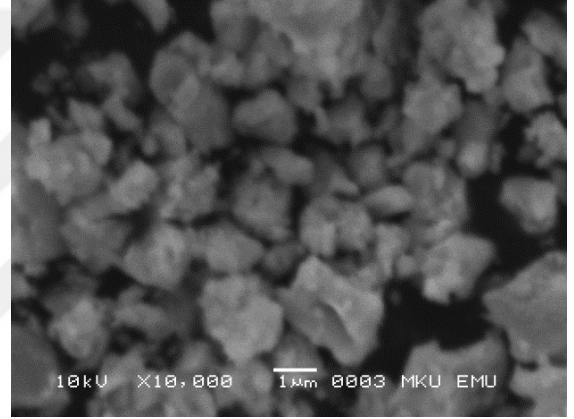
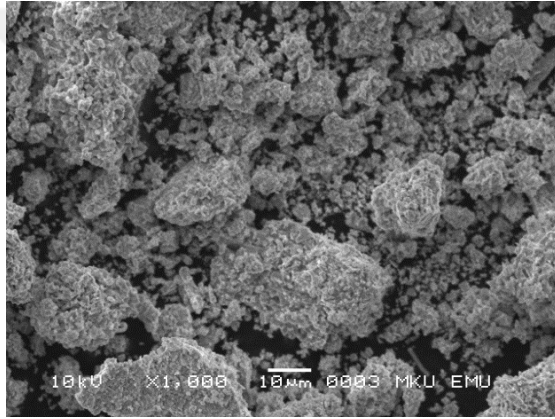
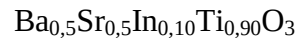
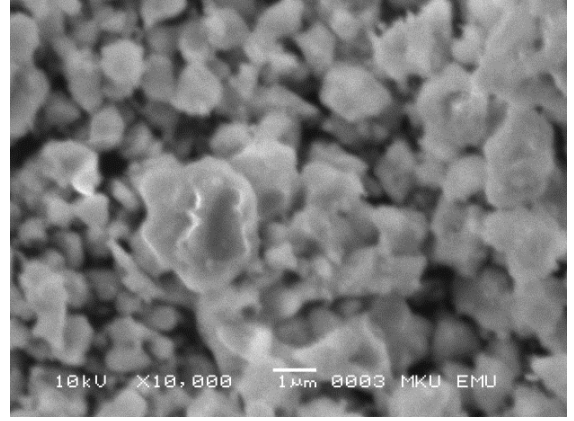
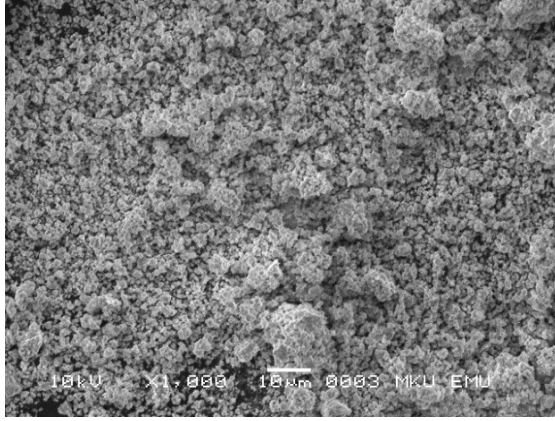


$\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_{0,025}\text{Ti}_{0,975}\text{O}_3$

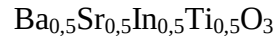
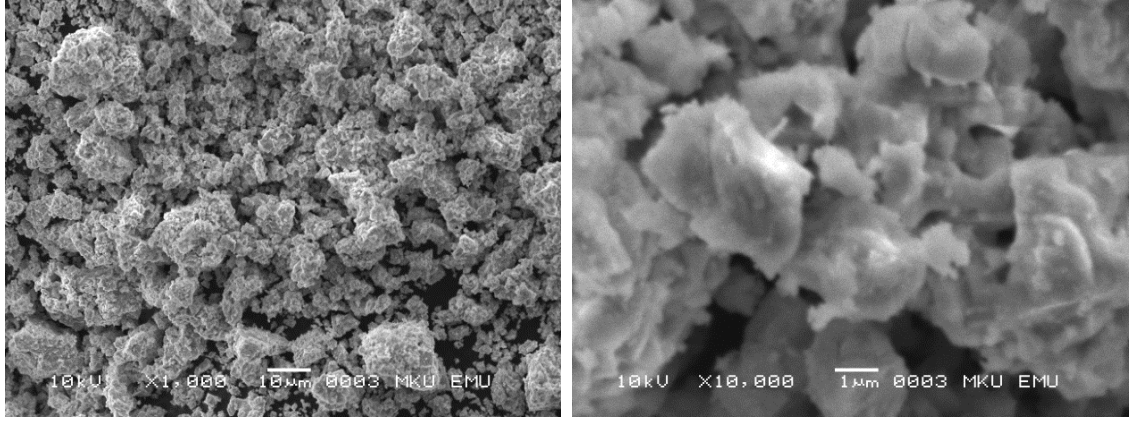


$\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_{0,075}\text{Ti}_{0,925}\text{O}_3$

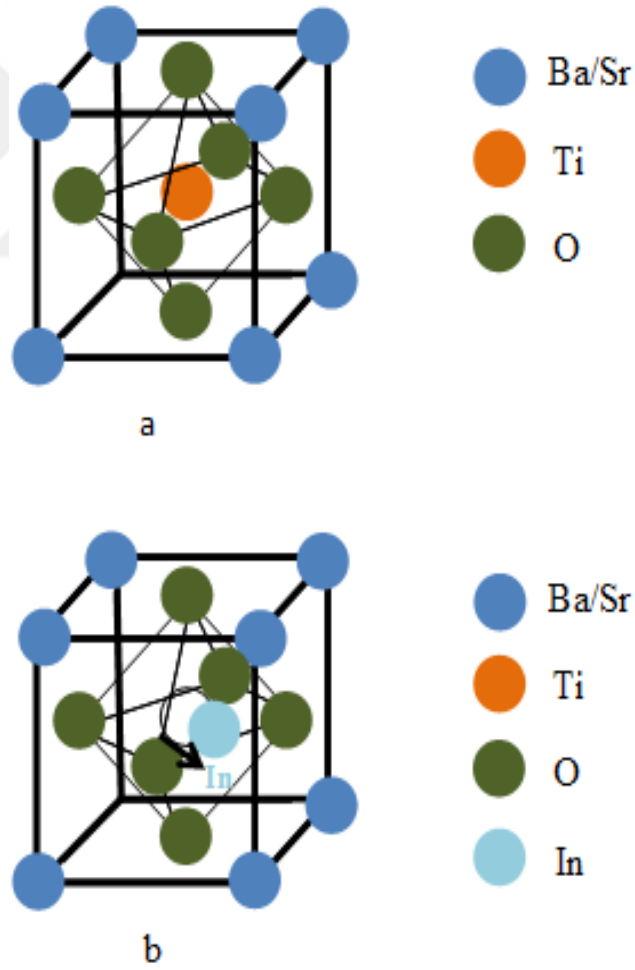
Şekil 4.62. $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x : 0,01; 0,025; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ait SEM görüntüleri



Şekil 4.62. (Devam) $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,01; 0,025; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



Şekil 4.62. (Devam) $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,01; 0,025; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



Şekil 4.63. a) Kübik kristal yapısı ($\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{TiO}_3$ seramiği kafes yapısı) b) In_2O_3 katkılı $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{TiO}_3$ seramiğinde In iyonu ile Ti iyonunun yer değişimi

Baryum stronsiyum titanat ve katkılanan In_2O_3 bileşiği kübik kristal yapı fazına sahiptir. $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{TiO}_3$ seramiğine indiyumun katkılanmasıyla kübik kristal yapı ortorombik yapı fazına dönüşmüştür. Ortorombik yapı fazının oluşumunda kristali oluşturan taneciklerin yönelimleri etkili olmuştur. Literatüre bakıldığında Chen ve arkadaşları baryum stronsiyum kalsiyum titanat yapısına titanyum iyonu ile yer değiştirecek olan niyobyum iyonunu farklı konsantrasyonlarda katkılamlar ve elde ettikleri seramiklerin katkı miktarına bağlı olarak tetragonal ve kübik kristal örgü yapısında olduklarını tespit etmişlerdir (Chen ve ark., 2015).

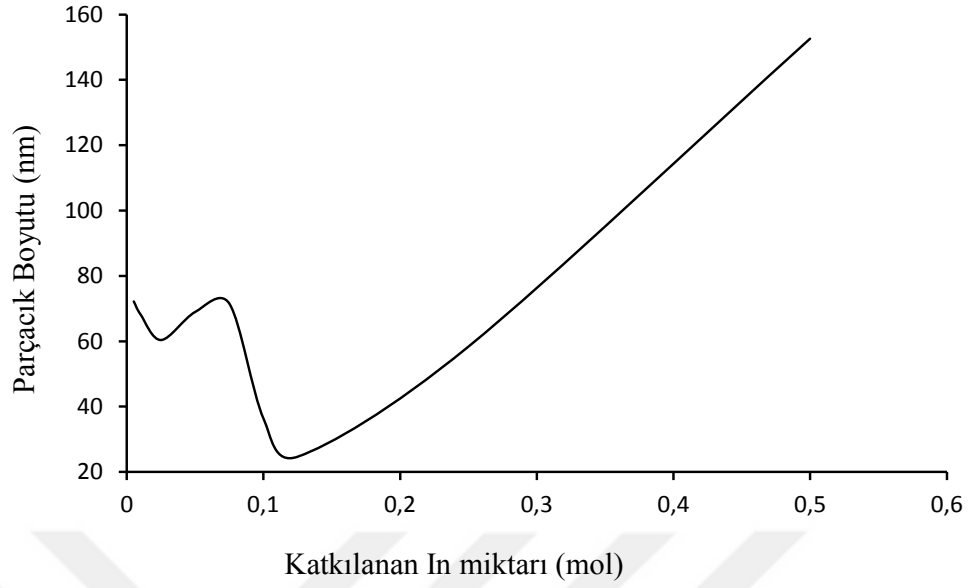
Farklı mol oranlarında indiyum katkılanan $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{TiO}_3$ seramiklerinin her bir katkılama sonucunda elde edilen yapılarının XRD kırınım desenlerinden yararlanılarak ortalama tanecik boyutları Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ve Çizelge 4.9’da verilmiştir.

$$D = \frac{0,9 \lambda}{\beta \cos \theta} \quad \lambda = 1,5400 \text{Å} \quad (4.10)$$

Çizelge 4.9. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları

Örnek	Ortalama Tanecik Boyutu (nm)
$\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_{0,005}\text{Ti}_{0,995}\text{O}_3$	72,2
$\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_{0,01}\text{Ti}_{0,99}\text{O}_3$	68,2
$\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_{0,025}\text{Ti}_{0,975}\text{O}_3$	60,4
$\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_{0,05}\text{Ti}_{0,95}\text{O}_3$	69,0
$\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_{0,075}\text{Ti}_{0,925}\text{O}_3$	71,5
$\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_{0,10}\text{Ti}_{0,90}\text{O}_3$	36,3
$\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_{0,125}\text{Ti}_{0,875}\text{O}_3$	24,7
$\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_{0,25}\text{Ti}_{0,75}\text{O}_3$	58,4
$\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{In}_{0,50}\text{Ti}_{0,50}\text{O}_3$	152,6

Çizelgeden görüldüğü gibi tanecik boyutları katkılama miktarıyla orantılı olmasa da 24,70 – 152,6 nm aralığında değişen değerler almaktadır. Katkılama miktarına bağlı olarak ortalama tanecik boyutundaki değişim Şekil 4.64’deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.64. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi

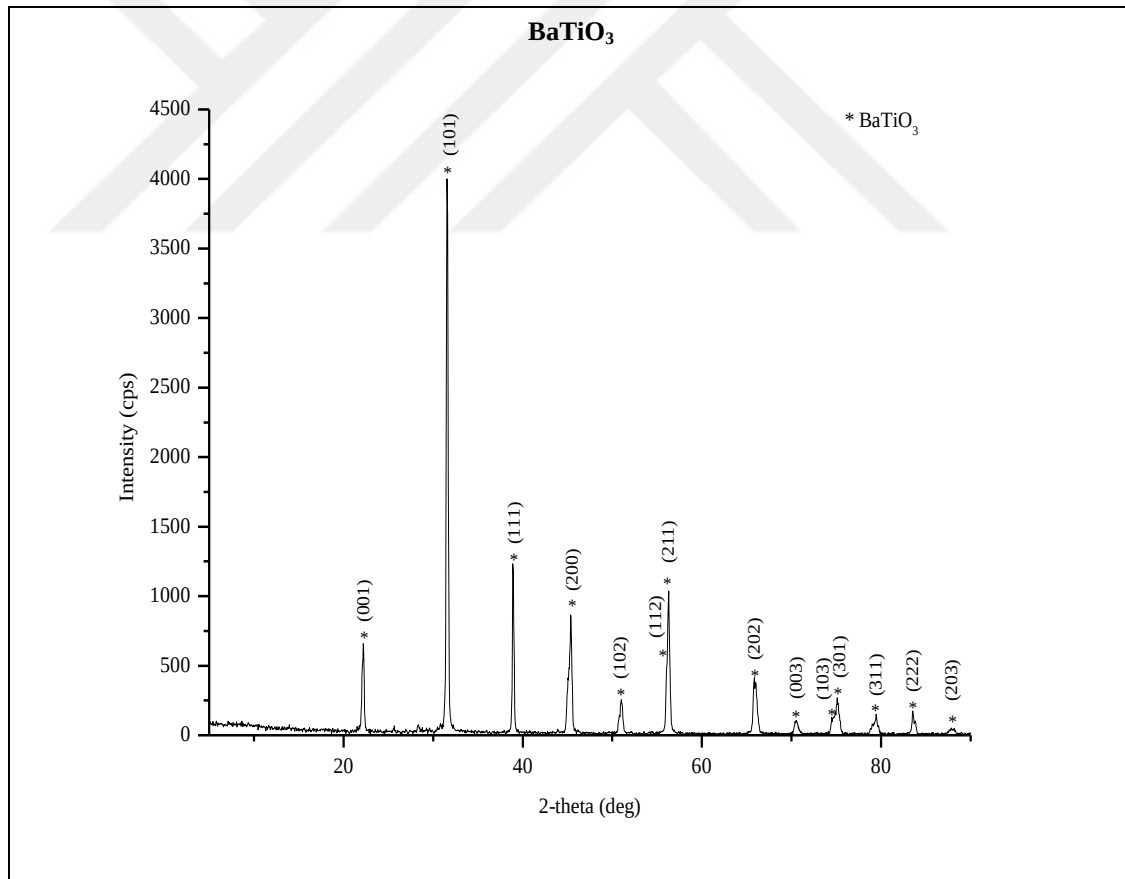
Bölüm 3.2.3.3'de anlatıldığı gibi indiyum katkılı $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ seramik tozlarının XRD kırınım desenleri incelendiğinde 0,10 mol indiyum katkısına kadar olan seramik yapılarda açılal konumu 32 olan baryum stronsiyum titanata ait olan karakteristik pikin şiddetinin katkı miktarının artışıyla birlikte arttığı görülmüştür. Ancak yapıya 0,10 molden daha fazla indiyum katkılendiğinde ise bu pikin şiddetinde azalma meydana geldiği görülmüştür. Aynı zamanda katkısız baryum stronsiyum titanata indiyum katkısıyla elde edilen seramik yapılar da kristal yapı fazının deforme olarak yeni kristal yapı fazının oluştuğu görülmüştür. Elde edilen bütün seramik yapıların ortalama tanecik boyutları Debye Scherrer eşitliğinden yararlanılarak hesaplanmış ve 24,70 – 152,6 nm aralığında değiştiği görülmüştür (Attar ve ark., 2017; Chen ve ark., 2015).

4.2.4. Rubidyum Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu

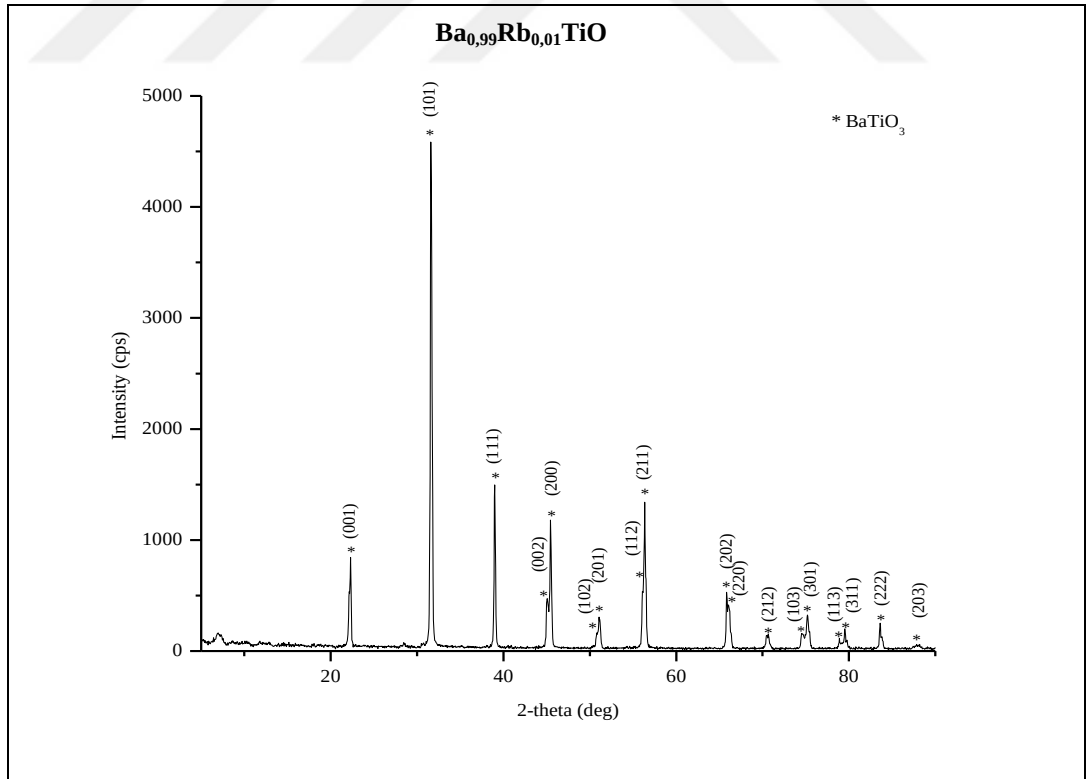
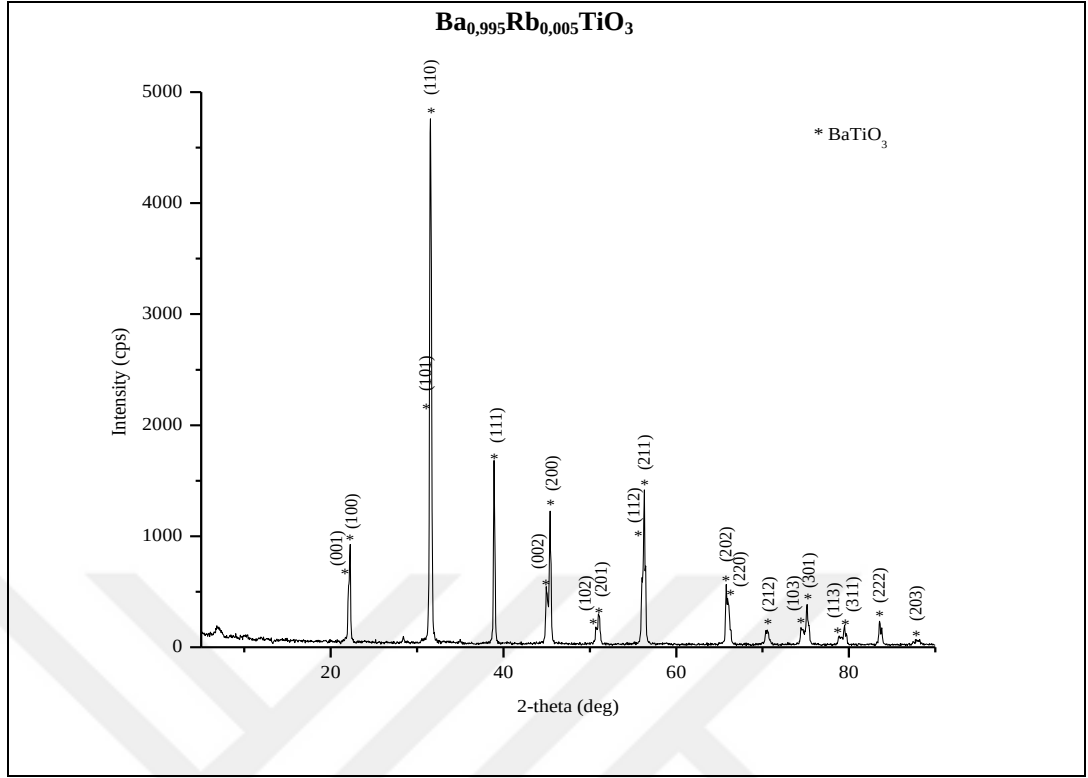
Bölüm 3.2.3.4'de anlatıldığı gibi baryum titanat, stronsiyum titanat ve baryum/stronsiyum titanat yapılarına katkılanan rubidyum katkı miktarındaki artışa bağlı olarak piklerde kaymalar ve şiddet değerlerinde değişimler olduğu tespit

edilmiştir. Rb^+ ($r = 166$ pm) iyonunun yarıçapı BaTiO_3 , SrTiO_3 , Ba/SrTiO_3 seramiklerindeki Ba^{2+} ($r = 149$ pm) ve Sr^{2+} ($r = 132$ pm) iyonlarının yarıçapına yakın olduğundan dolayı Rb^+ iyonunun kristal yapıda baryum ve stronsiyum iyonları ile yer değiştireceği öngörülmüştür. Piklerde meydana gelen bu değişimler Rb atomunun katkılama sonucunda Ba ya da Sr atomunun yerine geçerek BaTiO_3 ; SrTiO_3 ; $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{TiO}_3$ yapılarına yerleşebildiğini göstermektedir.

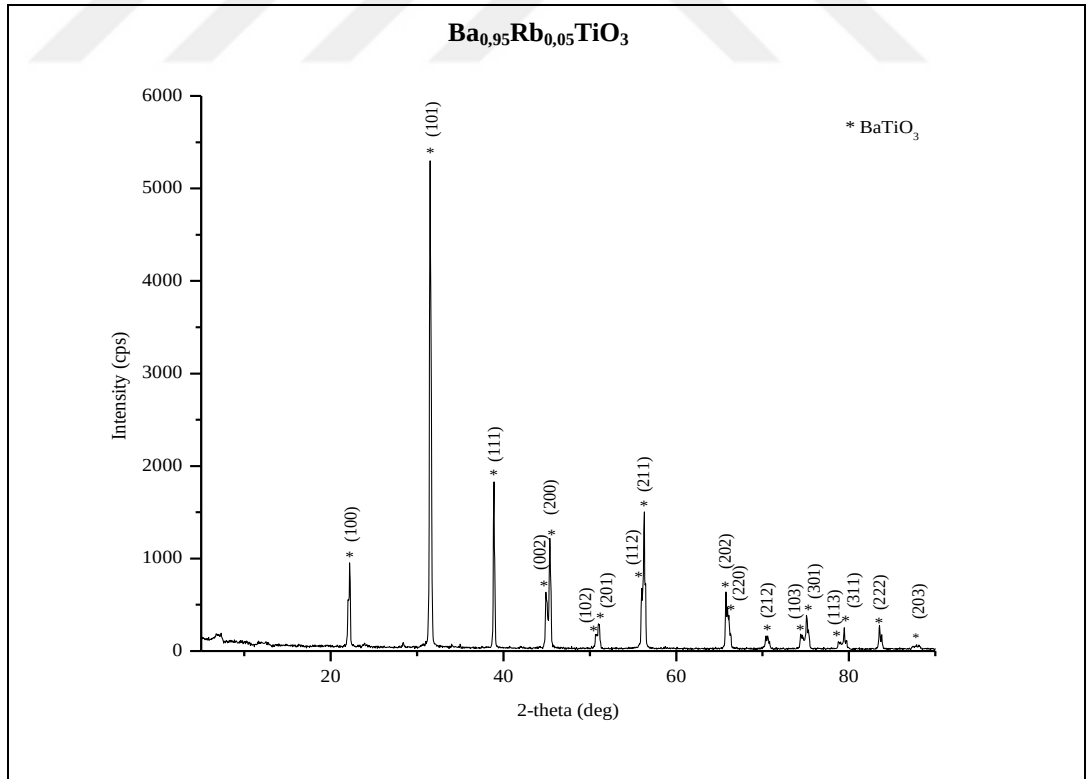
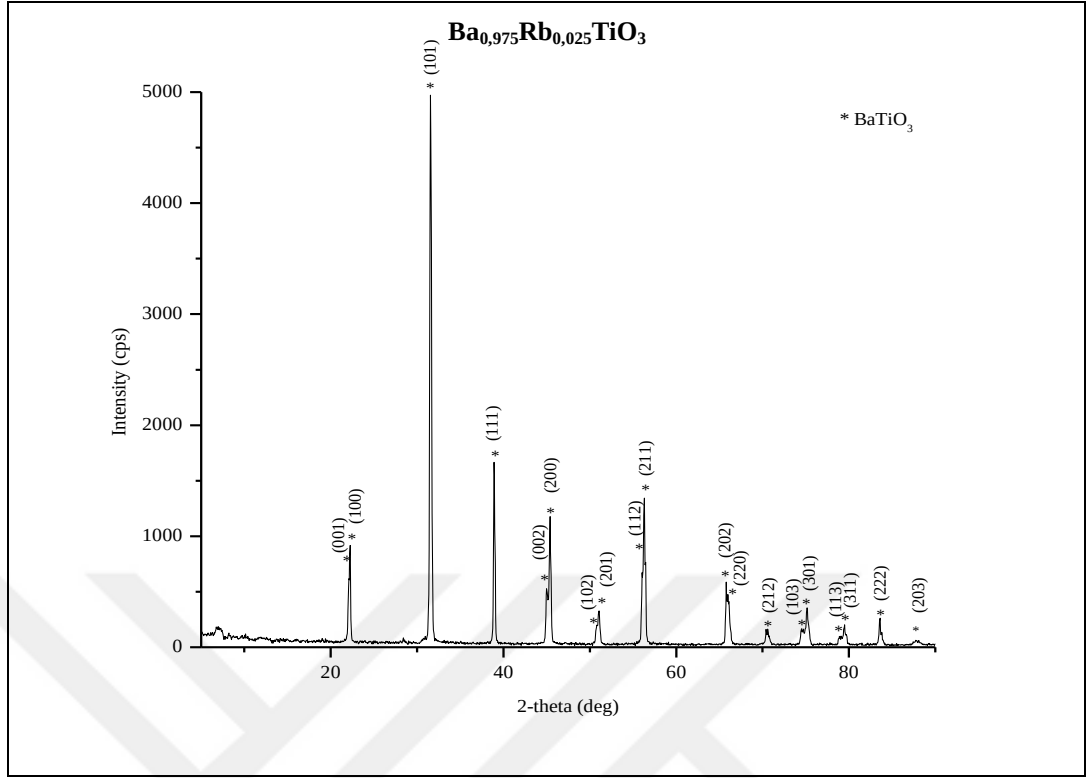
- **Rubidyum katkılı baryum titanatın katı hal sentez yöntemiyle elde edilişi:** Bölüm 3.2.3.4'de anlatıldığı gibi katı hal sentez yöntemiyle farklı mol oranlarında $\text{Ba}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x : 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) seramik tozları sentezlenmiş ve karakterize edilmiştir. Elde edilen örneklerin ve katkılanan Rb_2CO_3 katkı maddesinin $5^\circ \leq 2\theta \leq 90^\circ$ aralığında ki XRD kırınım desenleri Şekil 4.65 ve Şekil 4.66'da; SEM görüntüleri ise Şekil 4.67'de verilmiştir.



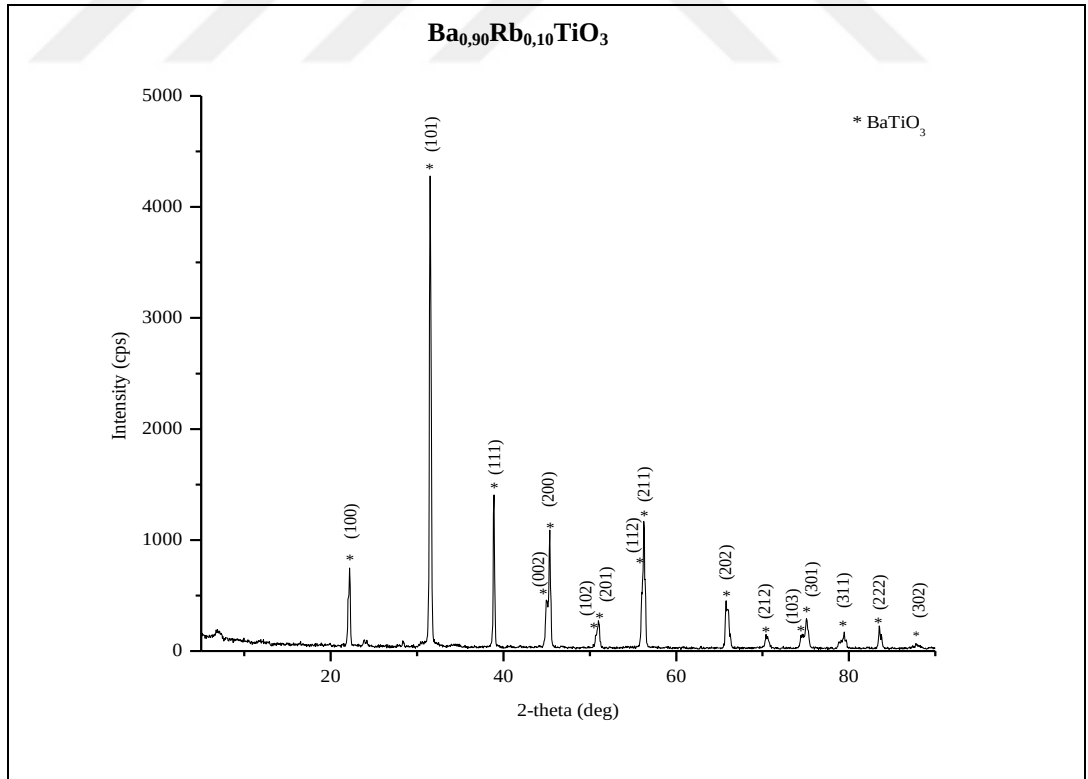
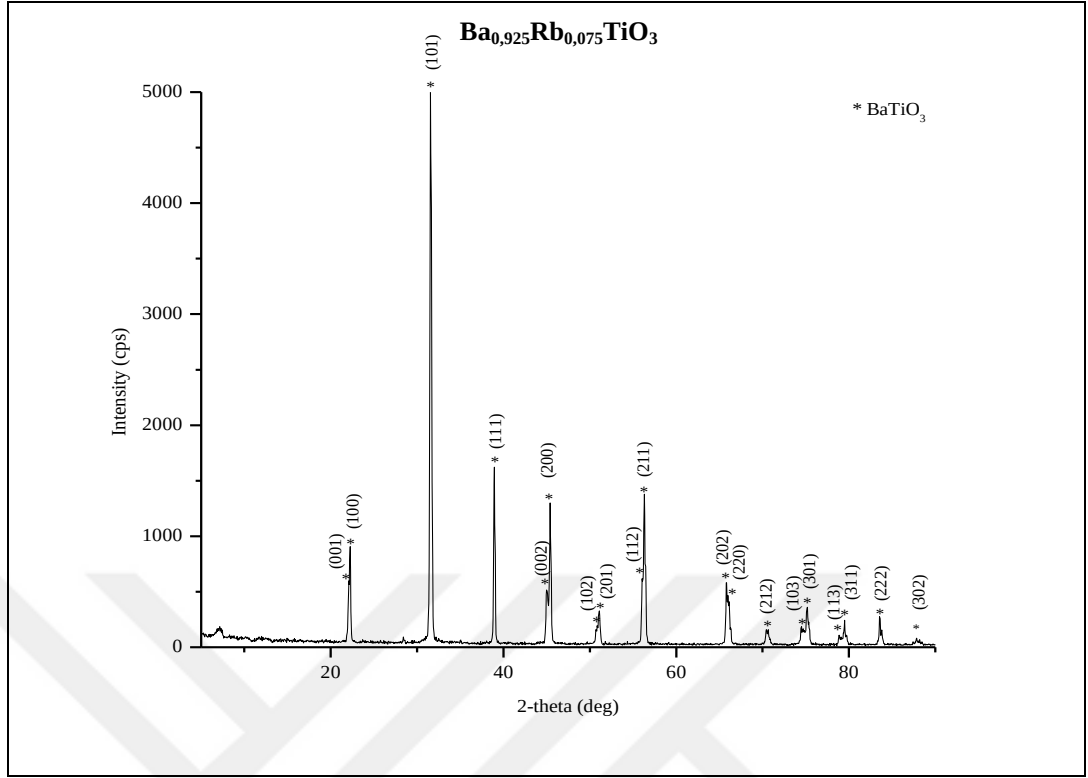
Şekil 4.65. $\text{Ba}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve Rb_2CO_3 bileşiğine ait XRD diyagramları



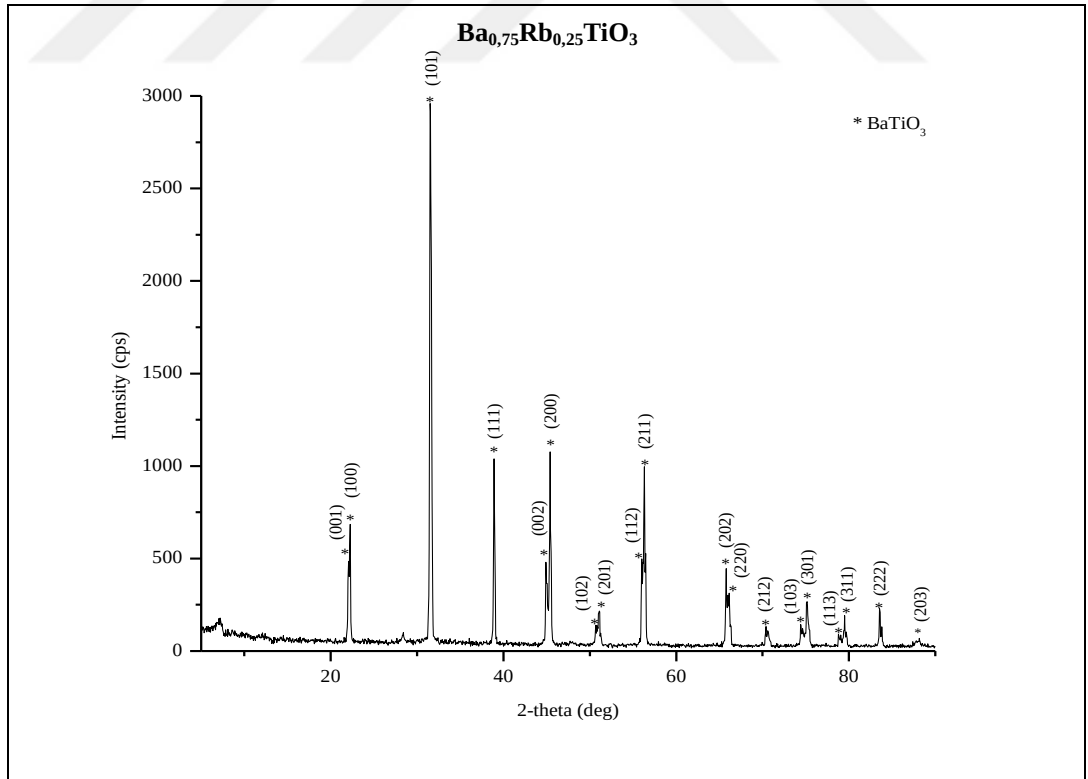
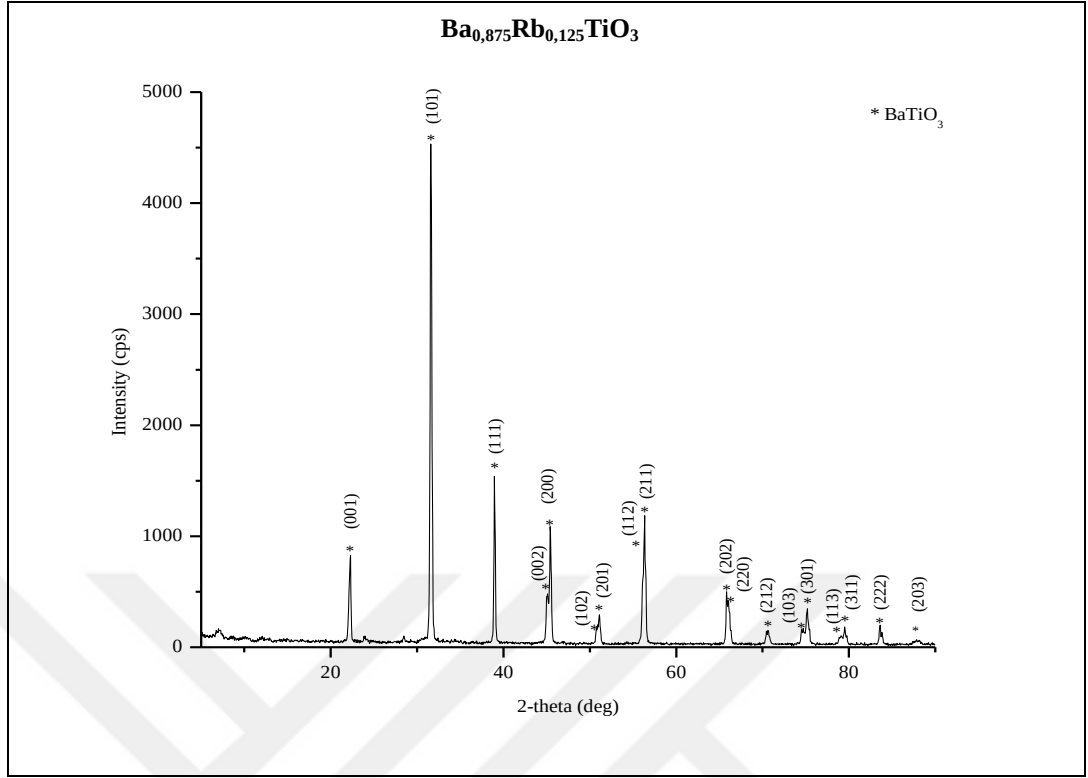
Şekil 4.65. (Devam) Ba_{1-x}Rb_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Rb₂CO₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



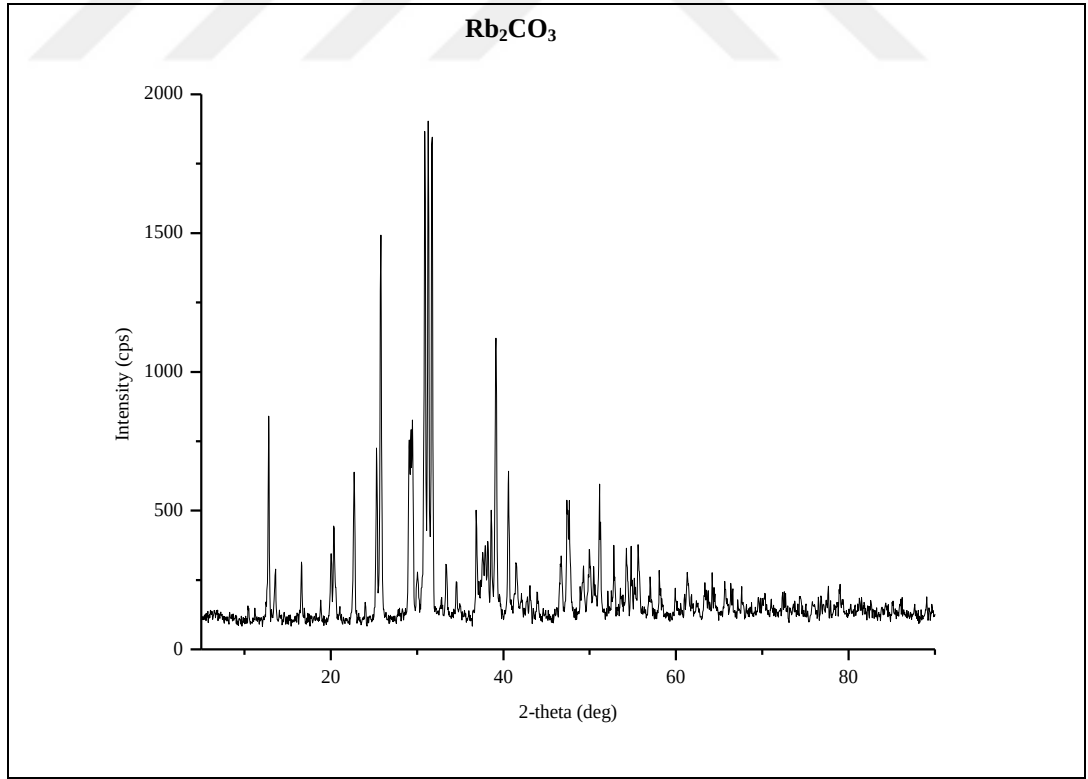
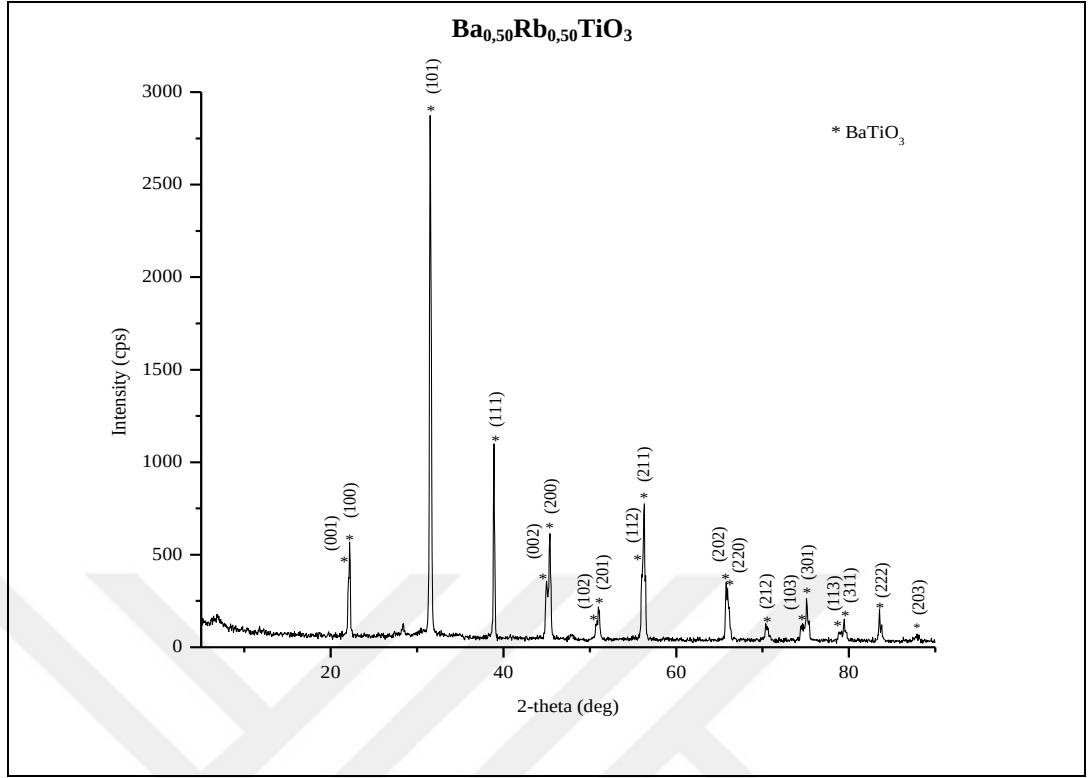
Şekil 4.65. (Devam) Ba_{1-x}Rb_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Rb₂CO₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



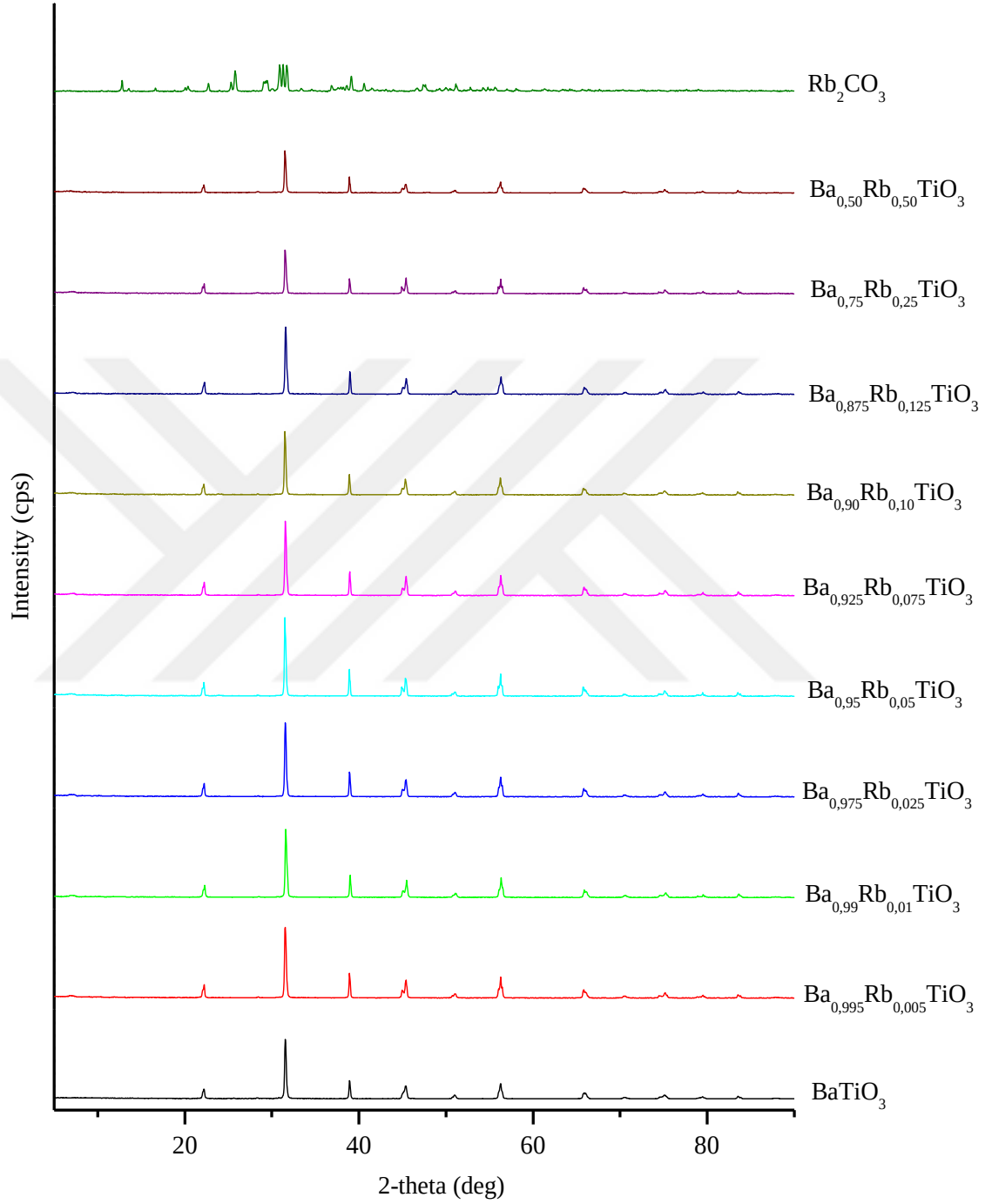
Şekil 4.65. (Devam) Ba_{1-x}Rb_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Rb₂CO₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



Şekil 4.65. (Devam) Ba_{1-x}Rb_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Rb₂CO₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



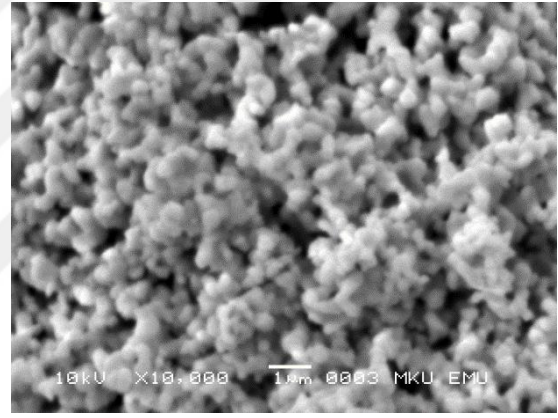
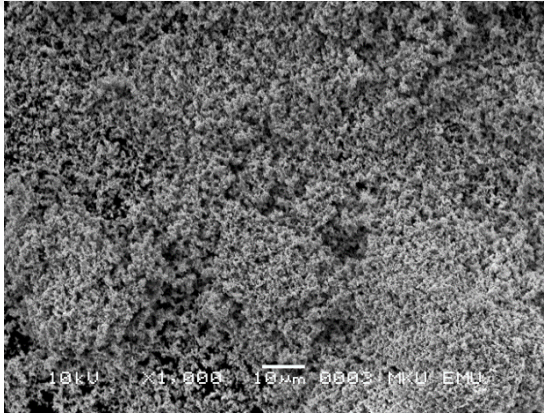
Şekil 4.65. (Devam) Ba_{1-x}Rb_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve Rb₂CO₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



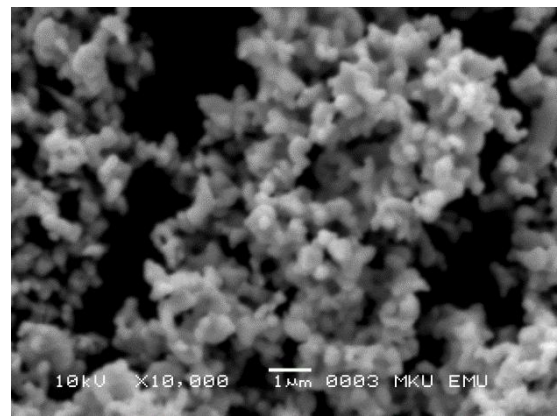
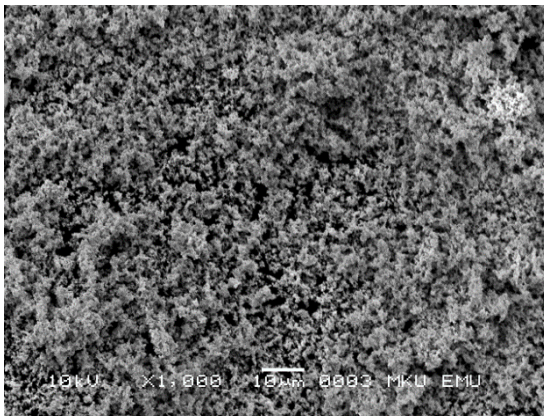
Şekil 4.66. $\text{Ba}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Rb_2CO_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı

Bu numunelerin XRD görüntüleri incelendiğinde; baryum titanata rubidyum katkısı sonucu yapıda rubidyuma ait ayrı karakteristik bir pik oluşmamasına rağmen baryum titanata ait olan karakteristik piklerde (22, 45, 50, 56, 66, 79..) ikiye yarılma ve şiddetlerinde azalma meydana gelmiştir.

Liu ve arkadaşlarının 2010 yılında yaptığı çalışmada baryum titanat nanopartiküllerine kobalt katkılanmış ve yeni elde edilen yapının yapısal ve manyetik özellikleri incelenmiştir. Kobalt katkılanmasıyla elde edilen yeni kristal yapıda kobalta ait ayrı bir karakteristik pik gözlenmemiş ve yeni bir kristal yapı fazının oluşmadığı ifade edilmiştir. Kobalt atomu tıpkı rubidyum atomu gibi baryum titanat matrisi içine dahil olmuş ve ikincil faz gözlenmemiştir (Liu ve ark., 2010).

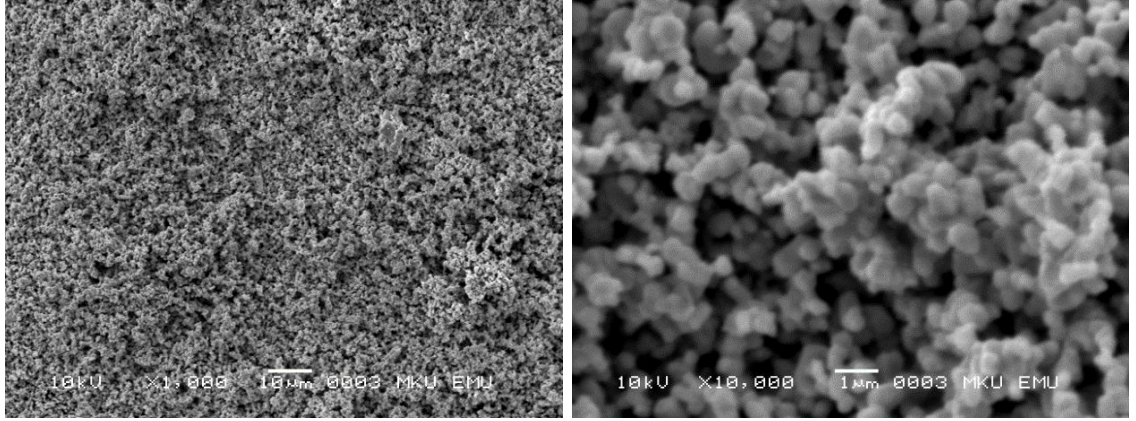


$Ba_{0.995}Rb_{0.005}TiO_3$

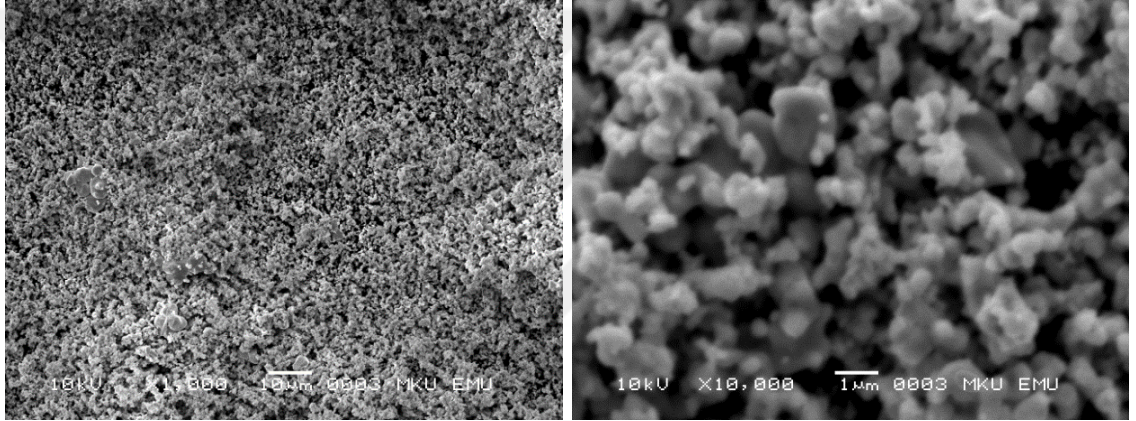


$Ba_{0.99}Rb_{0.01}TiO_3$

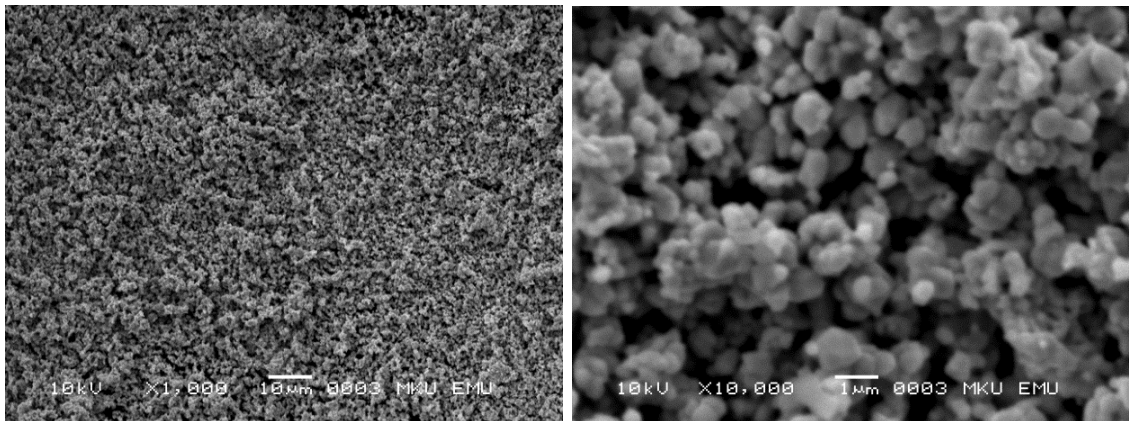
Şekil 4.67. $Ba_{1-x}Rb_xTiO_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



$\text{Ba}_{0,975}\text{Rb}_{0,025}\text{TiO}_3$

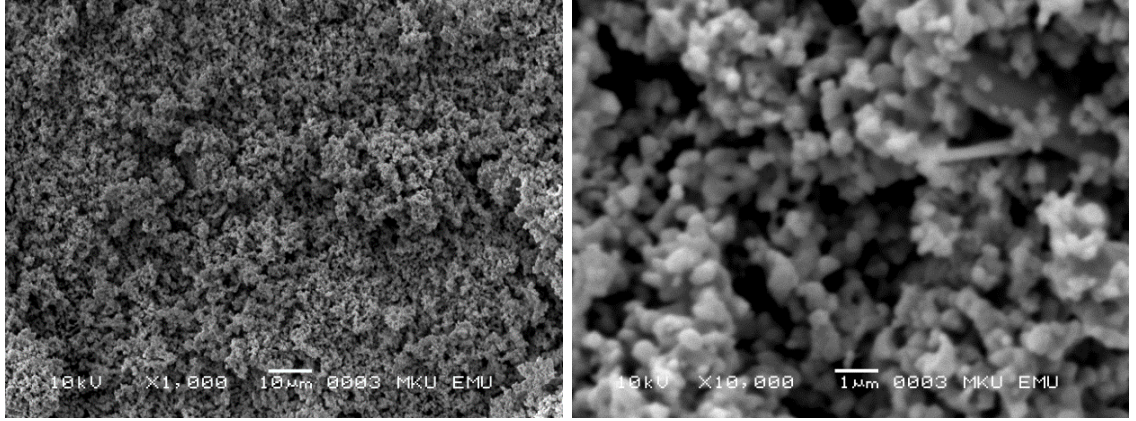


$\text{Ba}_{0,95}\text{Rb}_{0,05}\text{TiO}_3$

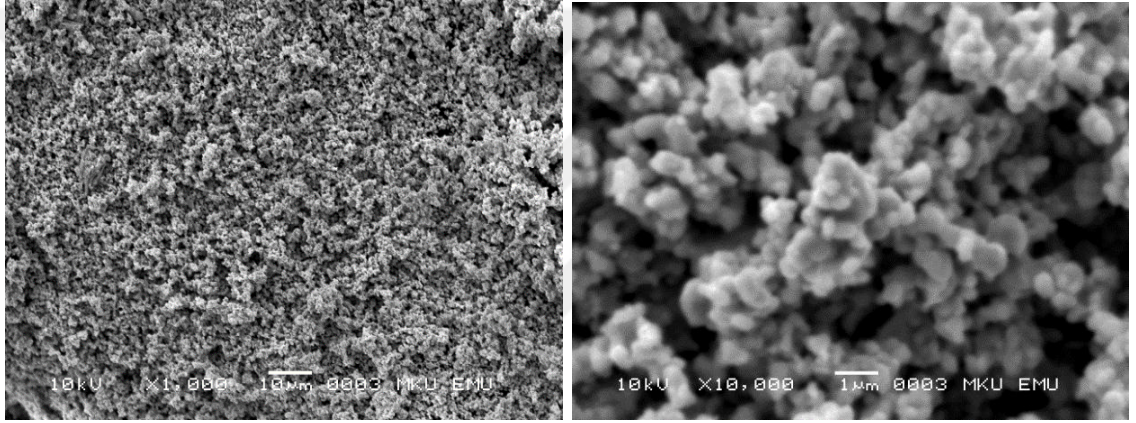


$\text{Ba}_{0,925}\text{Rb}_{0,075}\text{TiO}_3$

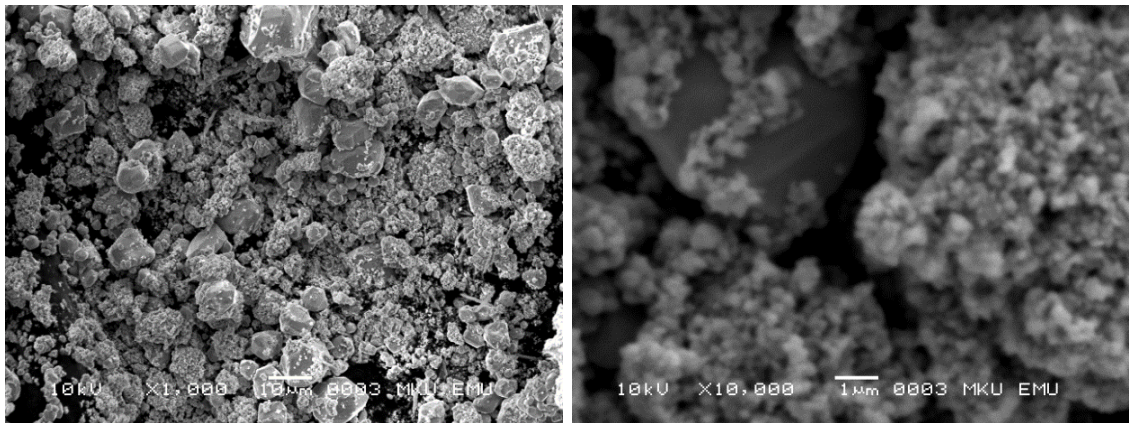
Şekil 4.67. (Devam) $\text{Ba}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ait SEM görüntüleri



$\text{Ba}_{0,90}\text{Rb}_{0,10}\text{TiO}_3$

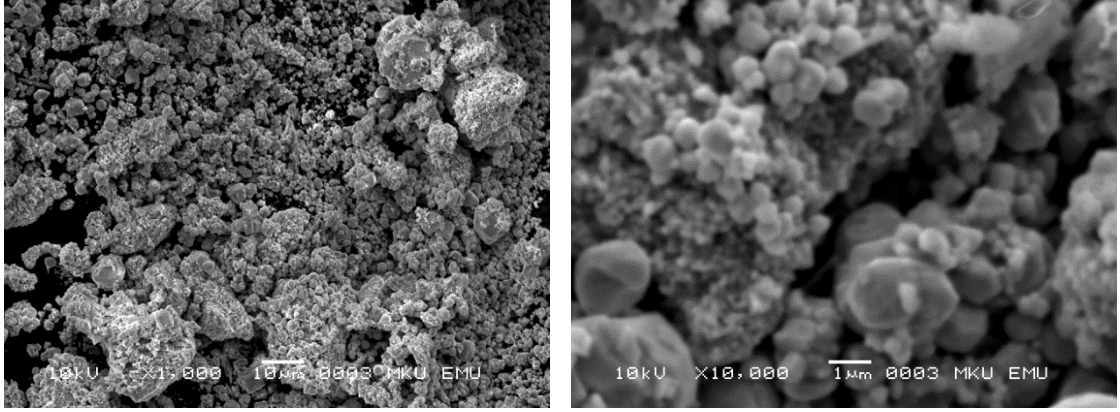


$\text{Ba}_{0,875}\text{Rb}_{0,125}\text{TiO}_3$

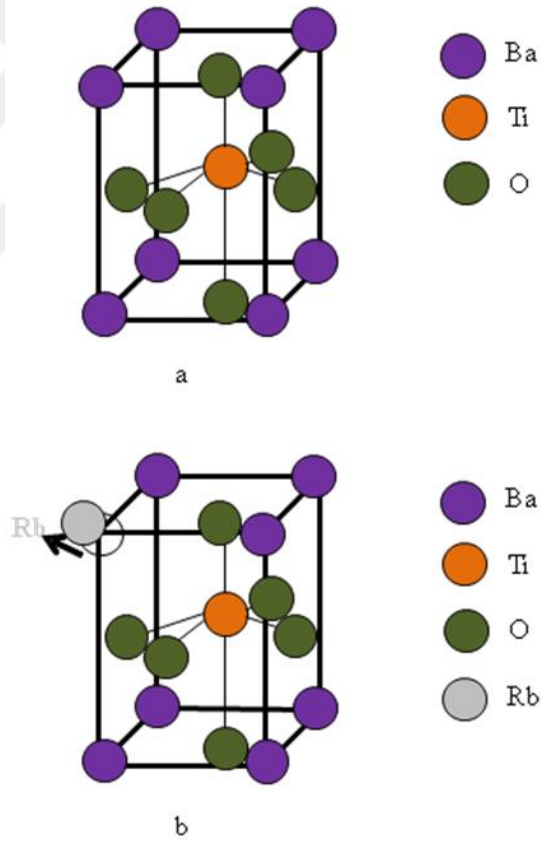


$\text{Ba}_{0,75}\text{Rb}_{0,25}\text{TiO}_3$

Şekil 4.67. (Devam) $\text{Ba}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ait SEM görüntüleri



Şekil 4.67. (Devam) $\text{Ba}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



Şekil 4.68. a) Tetragonal kristal yapı (BaTiO_3 seramiği kafes yapısı) b) Rb_2CO_3 katkılı BaTiO_3 seramiğinde Rb iyonu ile Ba iyonunun yer değişimi

Katı hal sentez yöntemiyle farklı mol oranlarında Rb_2CO_3 katkılanarak üretilen $\text{Ba}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ bileşiklerinde tetragonal yapı fazına rastlanılmıştır. Rubidyum katkısı ile elde edilen seramik tozlarının kristal yapısında rubidyumun kristal yapısına (monoklinik) doğru bir değişim olacağı düşünülürken; rubidyum katkısı baryum titanat yapısının deforme olması için yeterli olmamış, baryum titanatın kristal yapısı bozulmamıştır. Cai ve arkadaşları 2011 yılında baryum titanata vanadyum katkılamışlar ve katkı sonucunda elde ettikleri yapıların kristal yapı fazlarının katkısız baryum titanatın kristal yapısıyla (tetragonal) aynı olduğunu tespit etmişlerdir (Cai ve ark., 2011).

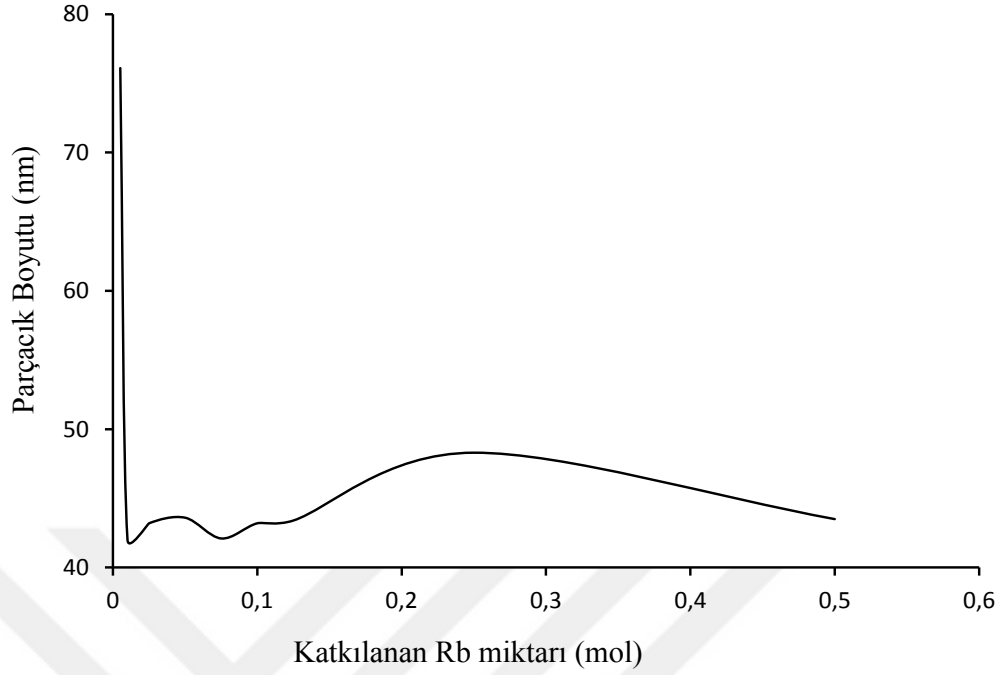
Farklı mol oranlarında rubidyum katkılanan BaTiO_3 seramiklerinin her bir katkılama sonucunda elde edilen yapılarının XRD kırınım desenlerinden yararlanılarak ortalama tanecik boyutları Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ve Çizelge 4.10'da verilmiştir.

$$D = \frac{0,9 \lambda}{\beta \cos \theta} \quad \lambda = 1,5400 \text{Å} \quad (4.11)$$

Çizelge 4.10. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları

Örnek	Ortalama Tanecik Boyutu (nm)
$\text{Ba}_{0,995}\text{Rb}_{0,005}\text{TiO}_3$	76,1
$\text{Ba}_{0,99}\text{Rb}_{0,01}\text{TiO}_3$	42,0
$\text{Ba}_{0,975}\text{Rb}_{0,025}\text{TiO}_3$	43,2
$\text{Ba}_{0,95}\text{Rb}_{0,05}\text{TiO}_3$	43,6
$\text{Ba}_{0,925}\text{Rb}_{0,075}\text{TiO}_3$	42,1
$\text{Ba}_{0,90}\text{Rb}_{0,10}\text{TiO}_3$	43,2
$\text{Ba}_{0,875}\text{Rb}_{0,125}\text{TiO}_3$	43,4
$\text{Ba}_{0,75}\text{Rb}_{0,25}\text{TiO}_3$	48,3
$\text{Ba}_{0,50}\text{Rb}_{0,50}\text{TiO}_3$	43,5

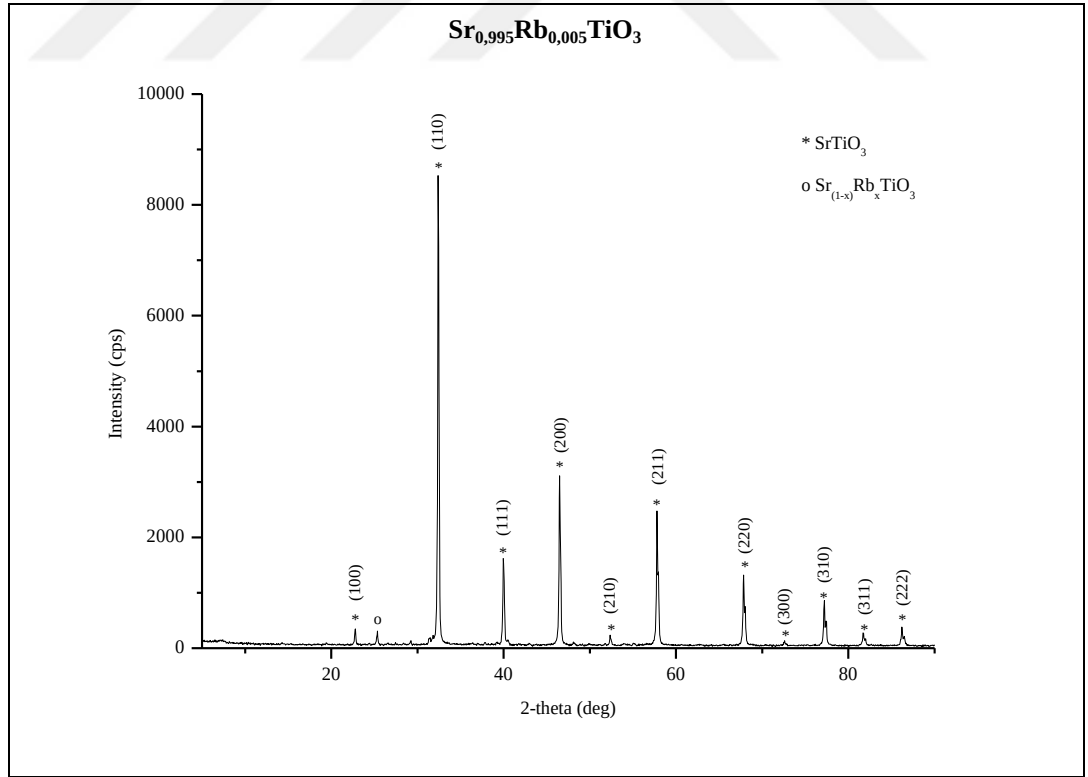
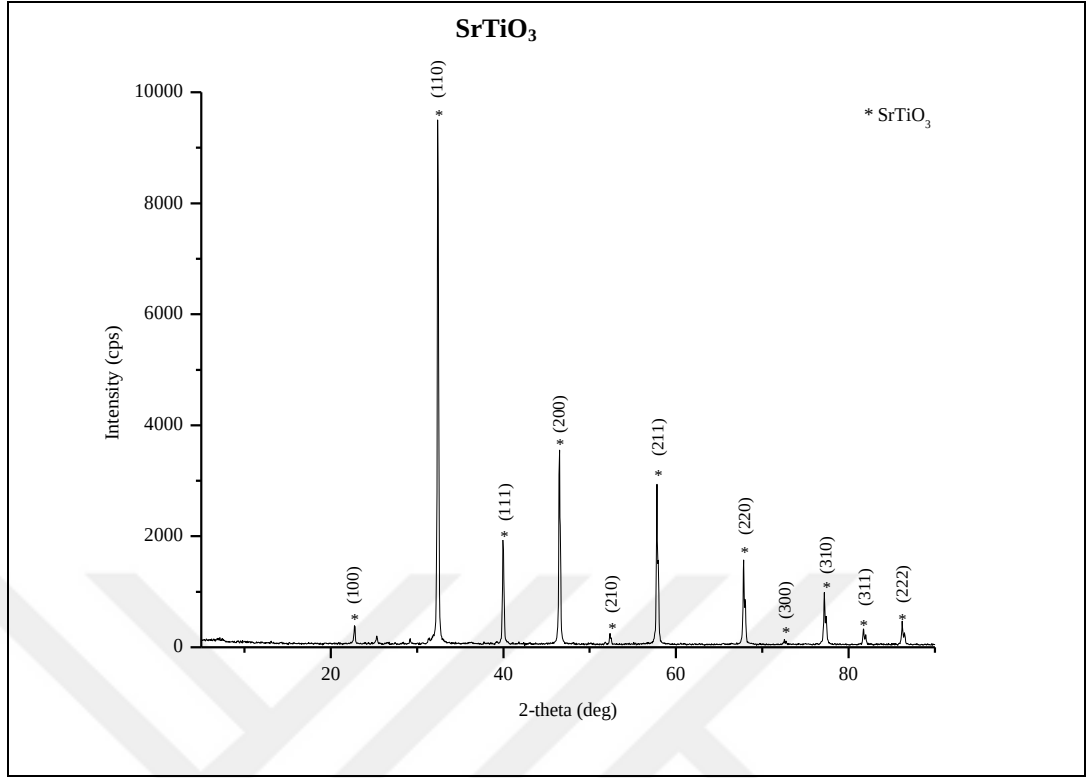
Tablodan görüldüğü gibi parçacık boyutları 42,0 –76,1 nm aralığında değişen değerler almaktadır. Katkılama miktarına bağlı olarak ortalama tanecik boyutundaki değişim Şekil 4.69'daki grafikte gösterilmiştir.



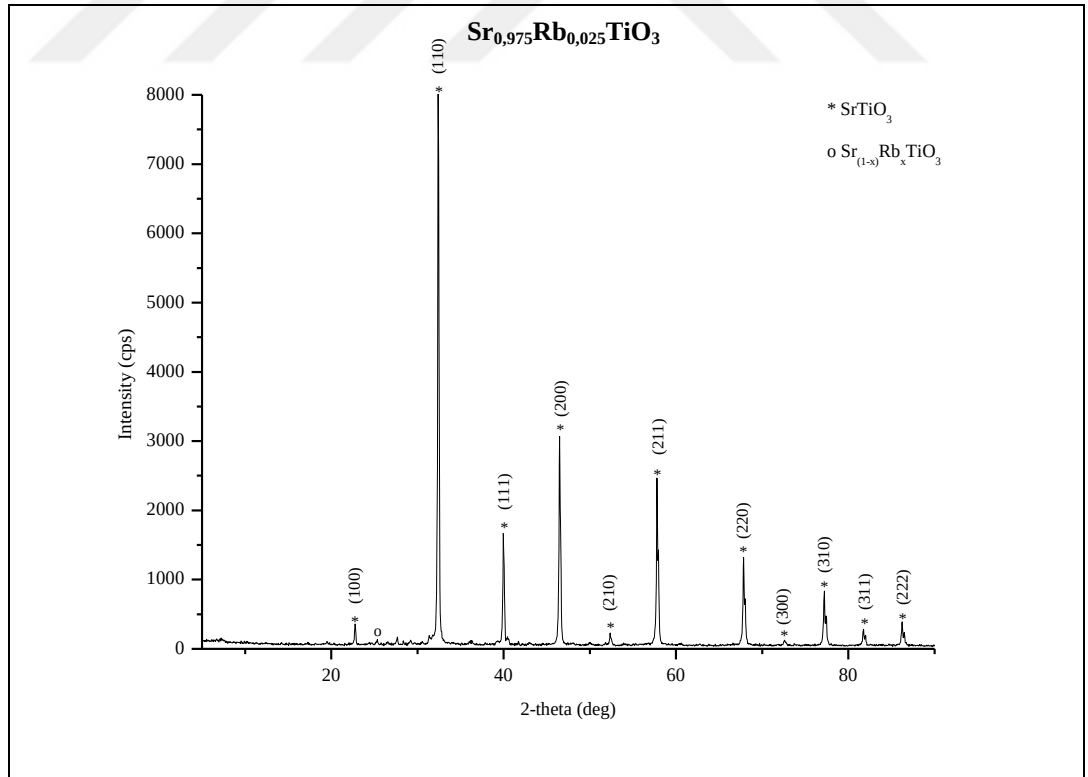
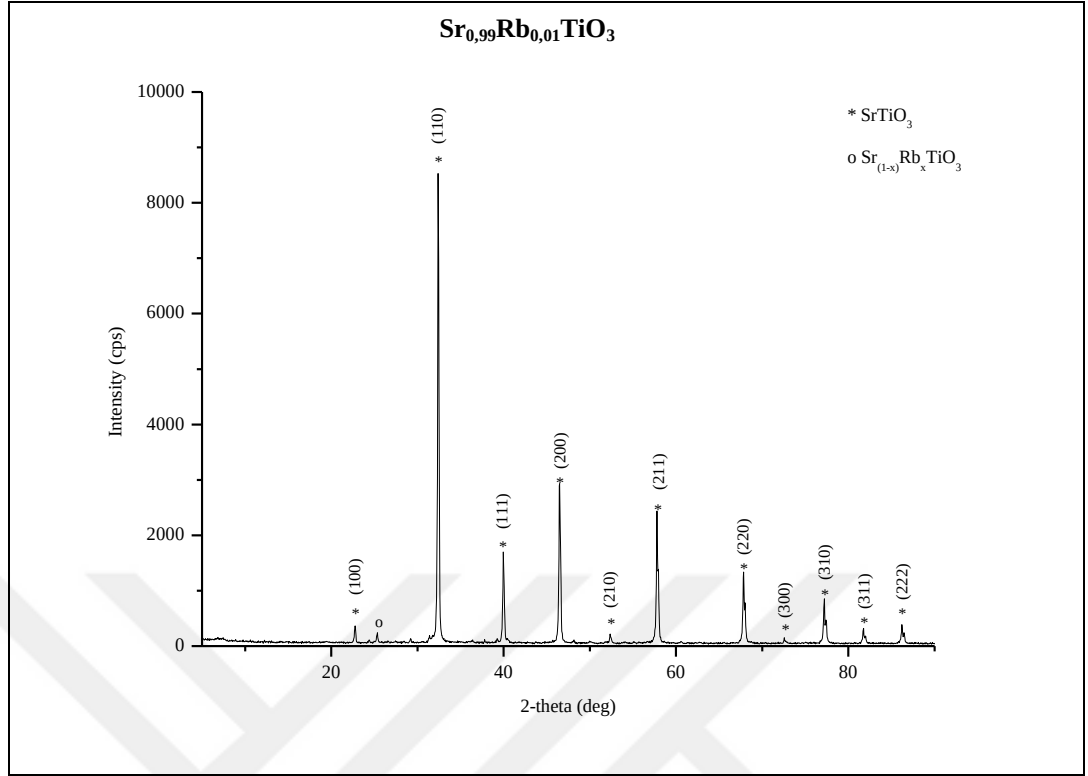
Şekil 4.69. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi

Baryum titanat seramiğine katı hal sentez yöntemiyle farklı mol oranlarında Rb_2CO_3 bileşiğinin katkılanmasıyla elde edilen yapıların XRD kırınım desenleri ve SEM görüntüleri incelendiğinde yeni oluşan kristal yapıya ait karakteristik pikler görülmemiş, fakat katkısız baryum titanata ait karakteristik piklerin şiddetinde azalma ve piklerde ikiye yarıma olduğu tespit edilmiştir. Elde edilen seramik yapıların tetragonal kristal yapıya sahip olduğu, yapıyı oluşturan taneciklerin ortalama büyüklüğünün 42,0 – 76,1 nm aralığında olduğu belirlenmiştir (Liu ve ark., 2010; Cai ve ark., 2011).

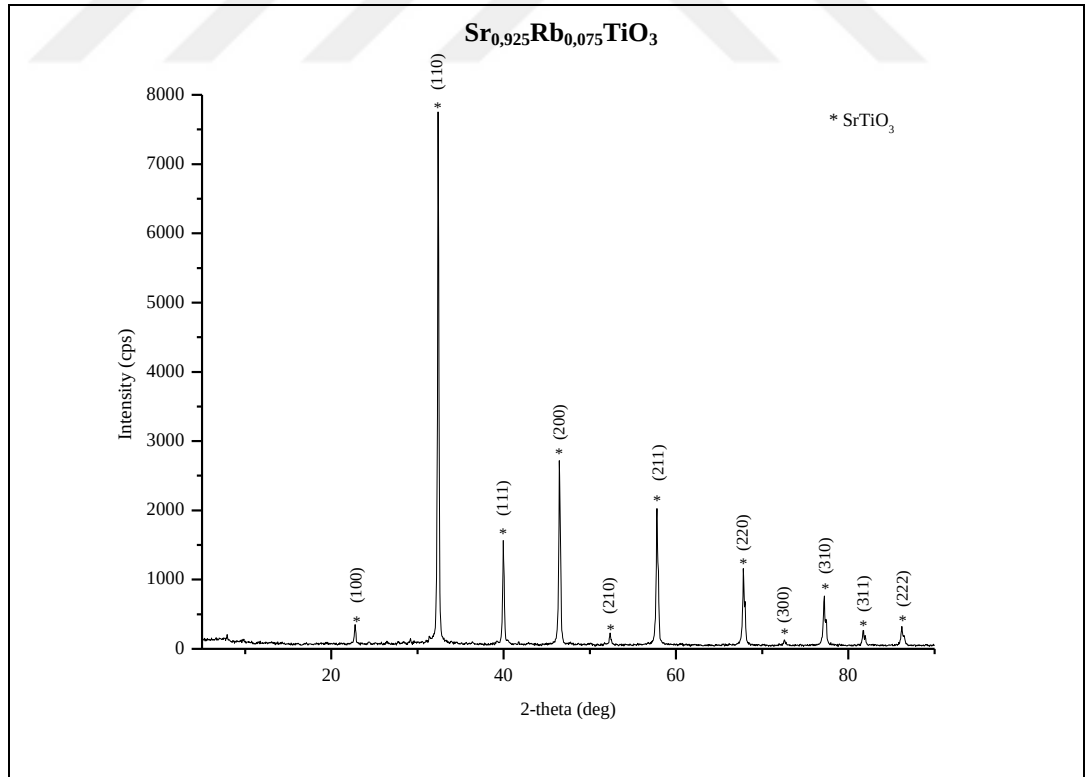
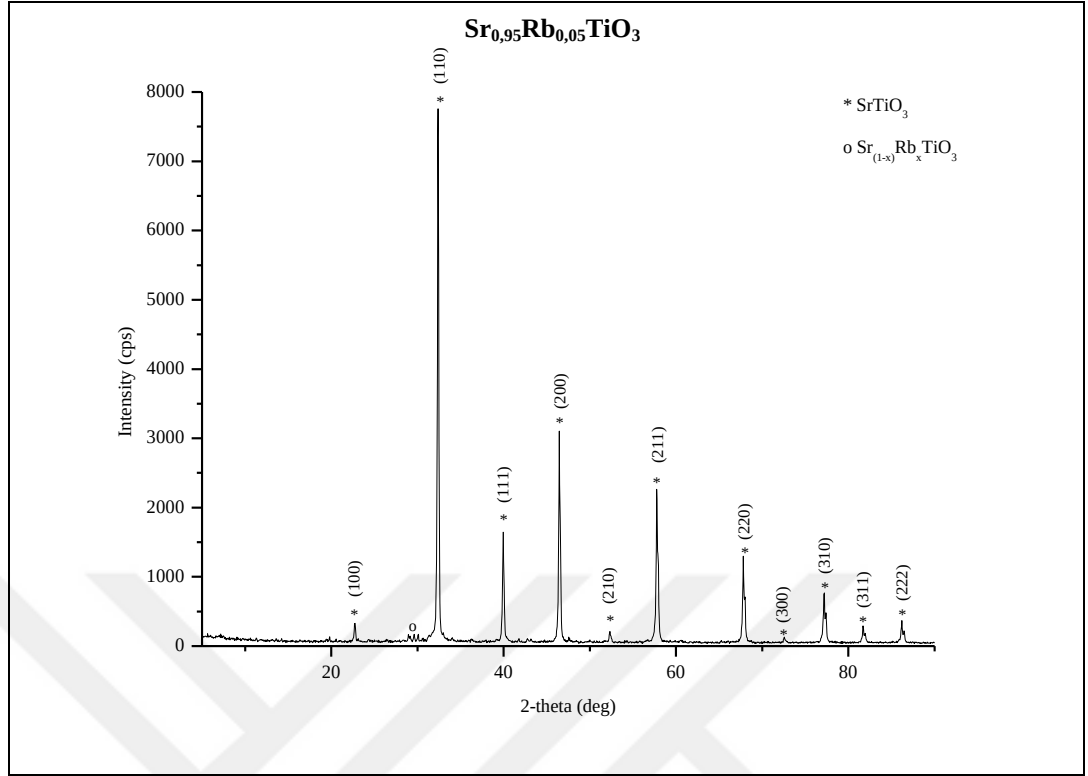
- Rubidyum katkılı stronsiyum titanatın katı hal sentez yöntemiyle elde edilişi: Katı hal sentez yöntemi kullanılarak farklı mol oranlarında $\text{Sr}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) katkılı seramik tozları bölüm 3.2.3.4’de anlatıldığı gibi sentezlenmiş ve kalsine edilmiştir. Katkılı örneklerin ve katkılanan Rb_2CO_3 katkı maddesinin $5^\circ \leq 2\theta \leq 90^\circ$ aralığında ki X-ışını kırınım desenleri Şekil 4.70 ve Şekil 4.71’de; SEM görüntüleri ise Şekil 4.72’de görülmektedir.



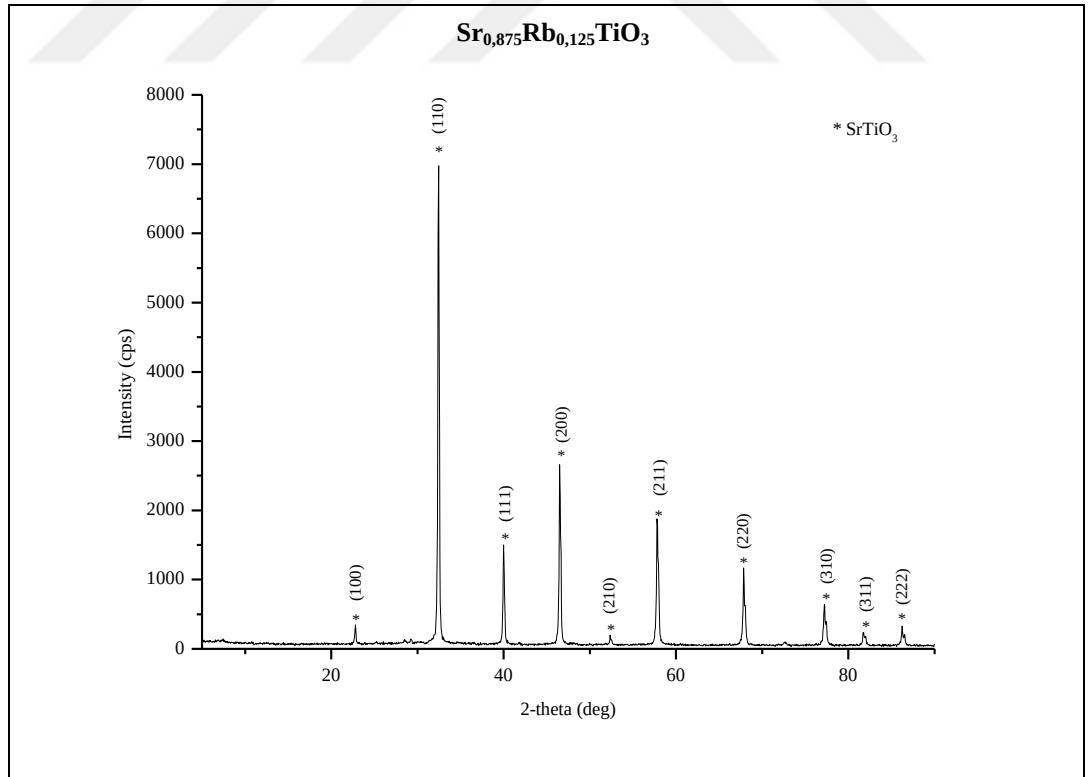
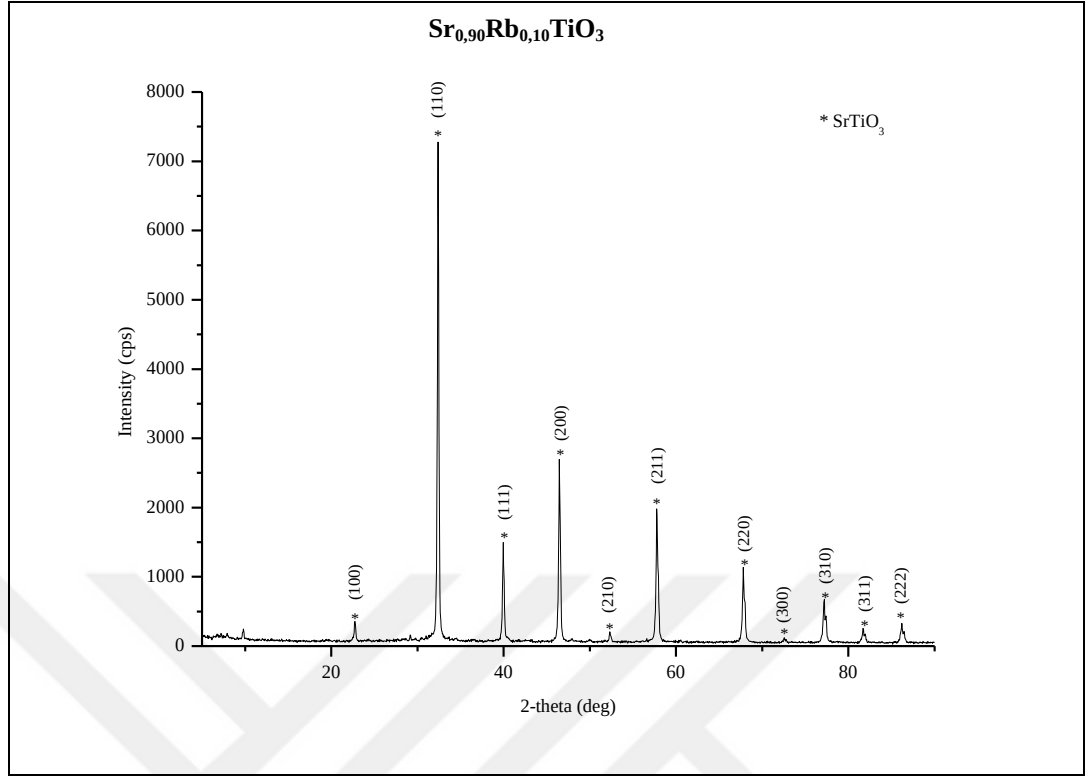
Şekil 4.70. Sr_{1-x}Rb_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Rb₂CO₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



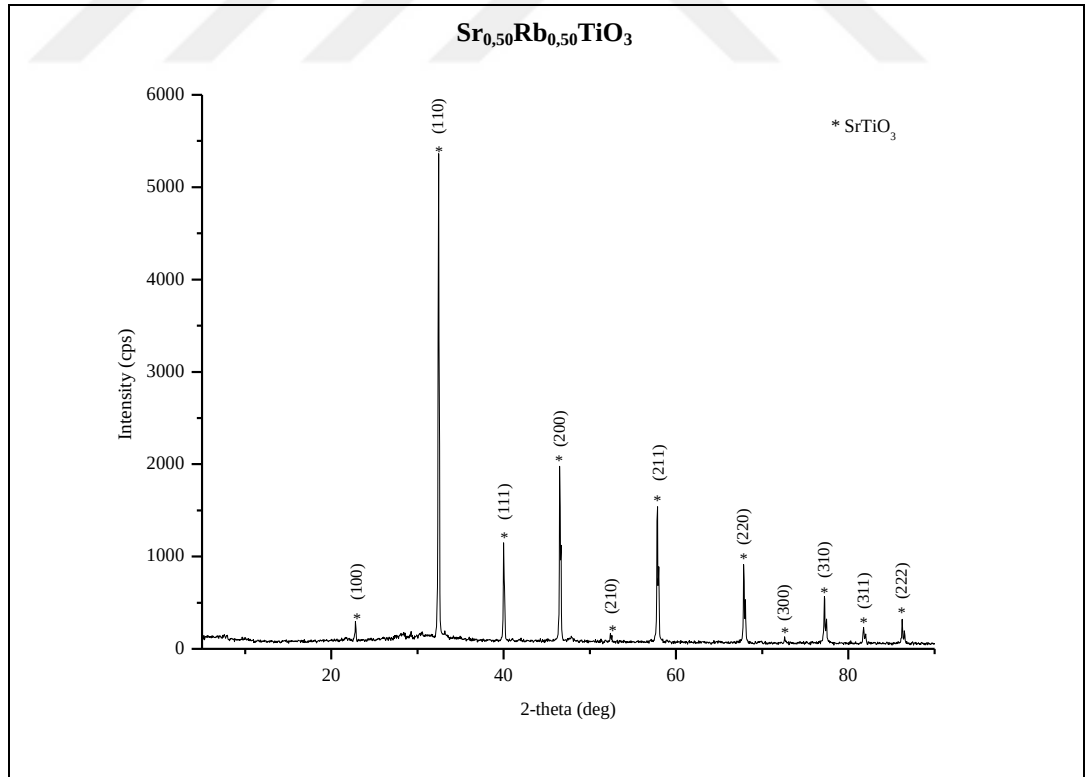
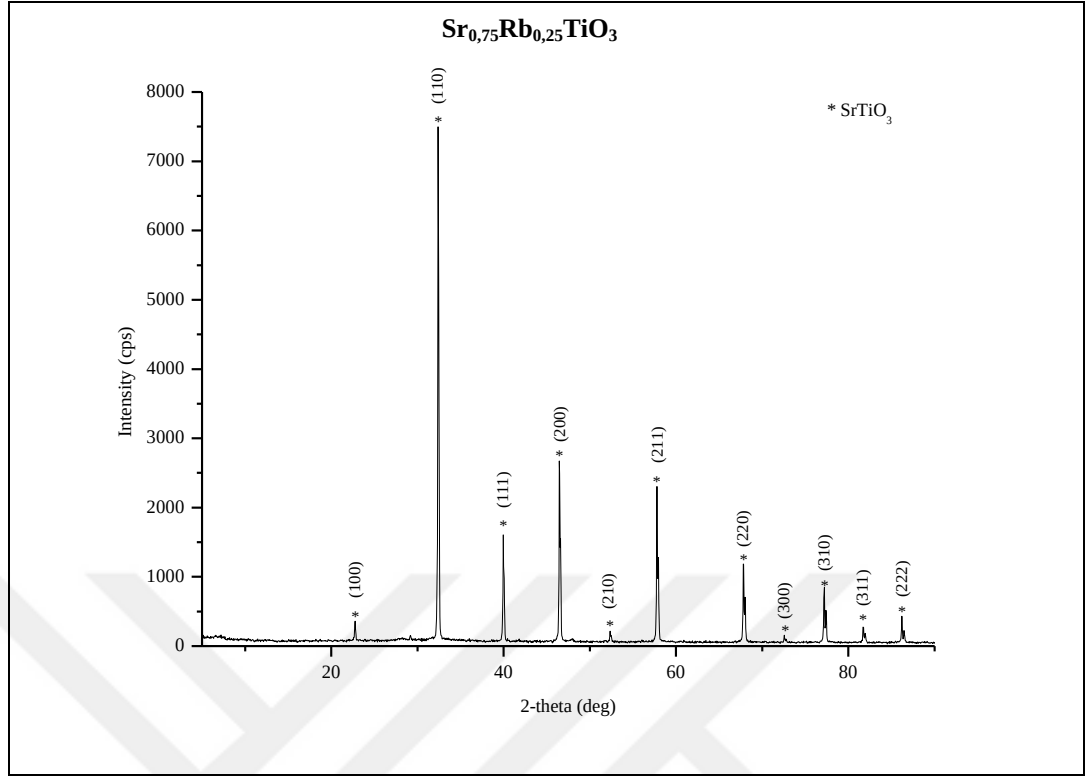
Şekil 4.70. (Devam) Sr_{1-x}Rb_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve Rb₂CO₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



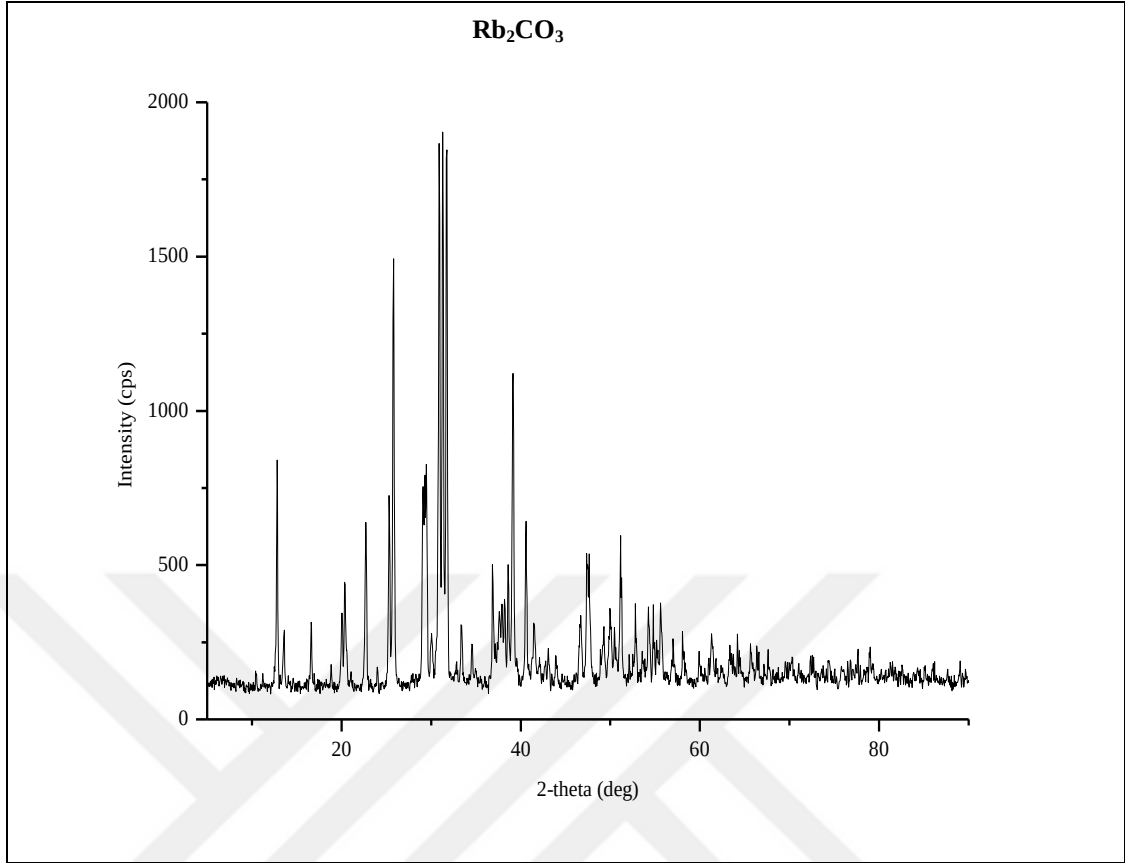
Şekil 4.70. (Devam) $\text{Sr}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Rb_2CO_3 bileşiğine ait XRD diyagramları



Şekil 4.70. (Devam) $\text{Sr}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Rb_2CO_3 bileşiğine ait XRD diyagramları

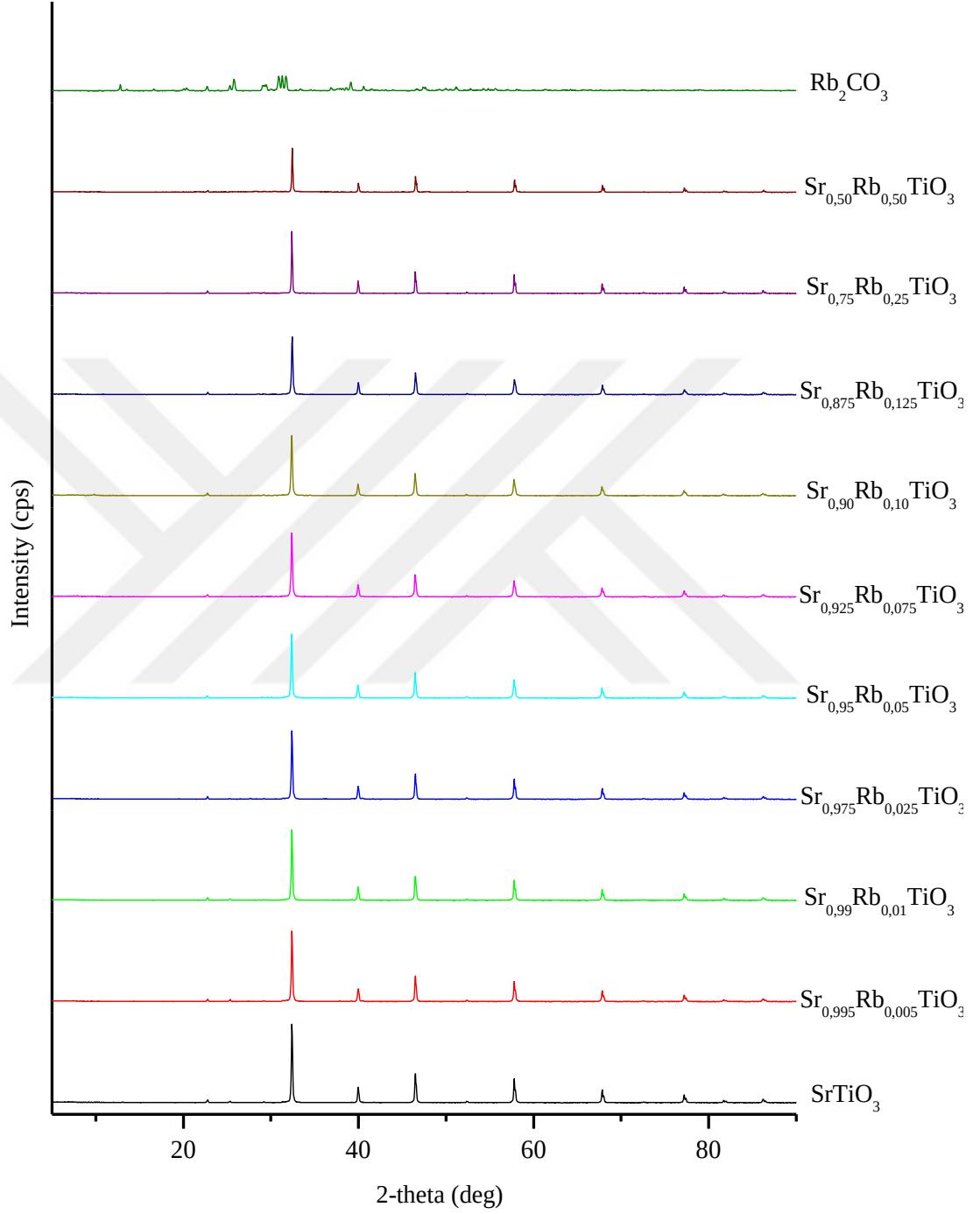


Şekil 4.70. (Devam) $\text{Sr}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve Rb_2CO_3 bileşiğine ait XRD diyagramları

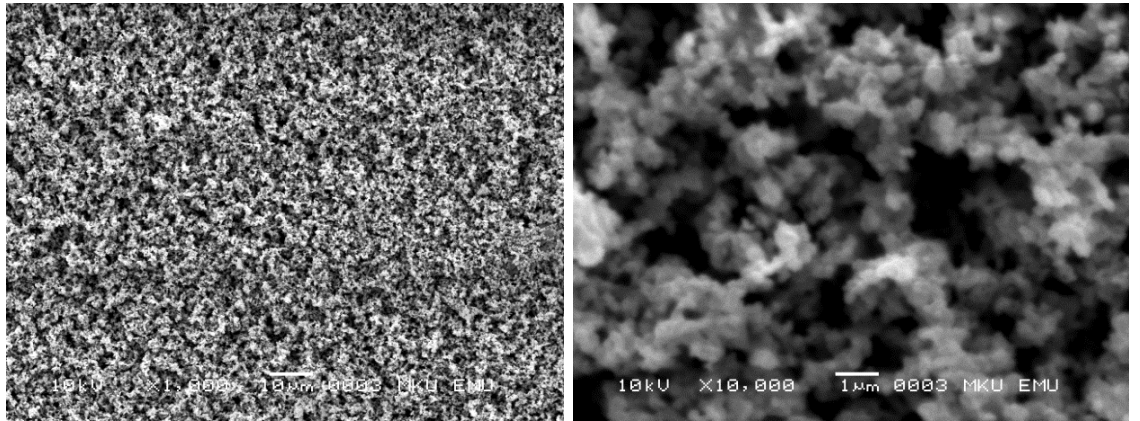
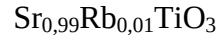
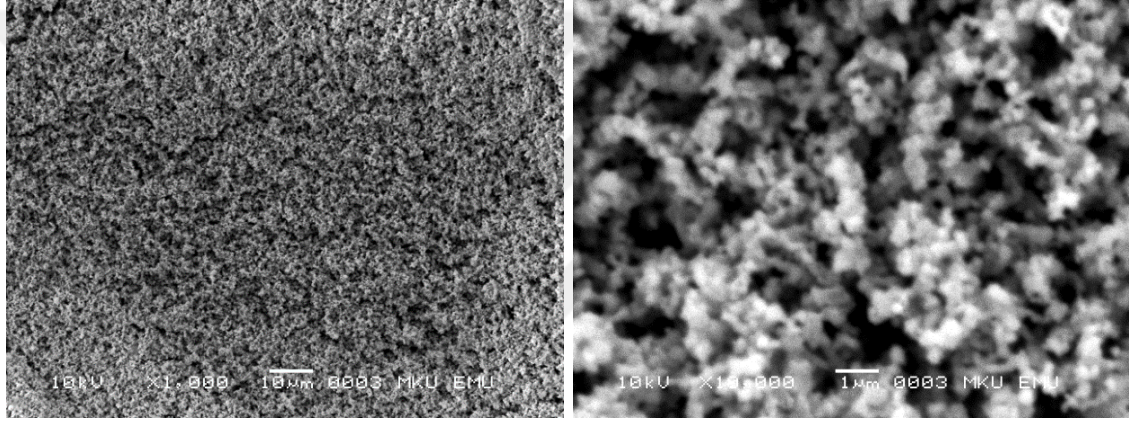
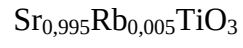
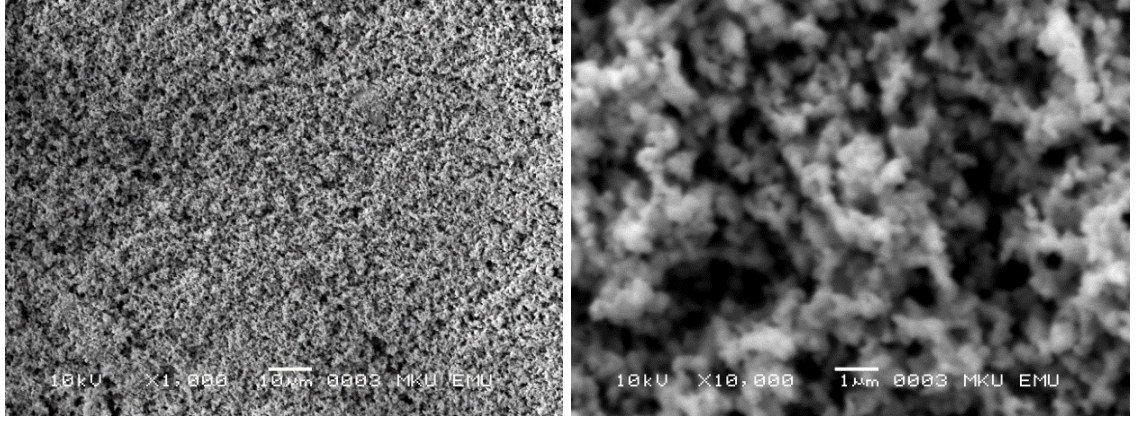


Şekil 4.70. (Devam) $\text{Sr}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve Rb_2CO_3 bileşiğine ait XRD diyagramları

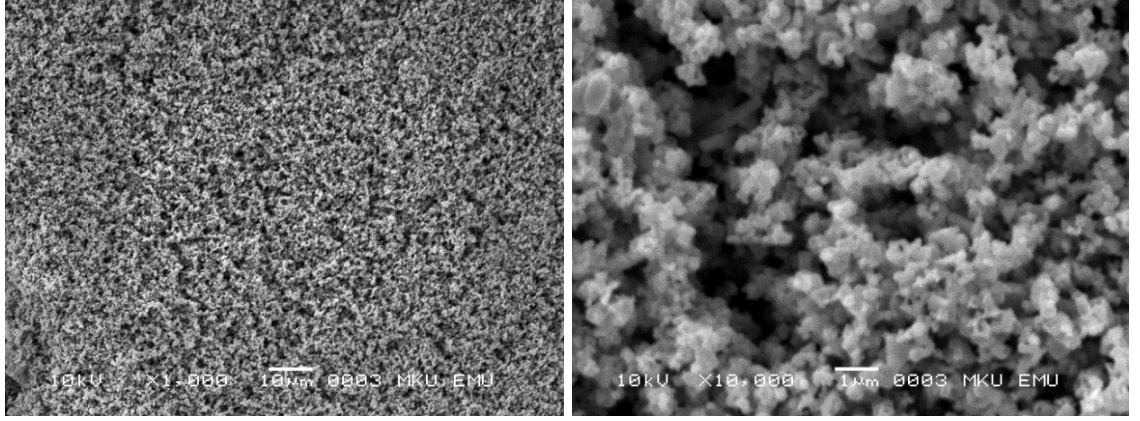
Stronsiyum titanata 0,005 mol rubidyum katkılандığında yapıda 25° açı değeriinde rubidyuma ait karakteristik pik oluşmuş; katkı miktarı 0,05 mole kadar arttırıldığında pikin şiddetinde azalma meydana gelmiş; daha yüksek katkı miktarlarında ise rubidyuma ait karakteristik bir pike rastlanılmamıştır. Stronsiyum titanata ait 32° açı değeriindeki pikin şiddeti rubidyum katkı miktarının artışıyla azalmış; rubidyum katkı miktarı 0,125 mol ve 0,25 mol olduğunda ise pikin şiddetinde artış görülmüştür. Rubidyum katkısının SrTiO_3 yapısını deforme edemediği ve yeni bir kristal yapı fazının oluşmadığı görülmüştür. Tkach ve arkadaşları stronsiyum titanata gadolinyum iyonunu klasik oksit karıştırma yöntemini kullanarak katkılamışlardır. Elde ettikleri seramik yapılarda gadolinyum katkısıyla herhangi bir değişim olmadığını, gadolinyuma ait piklerin gözlenmediği ve tüm yapıların stronsiyum titanatın kristal yapısıyla aynı yapı fazına (kübik kristal faz) sahip olduğunu X-ışını kırınım desenlerini inceleyerek ifade etmişlerdir (Tkach ve ark., 2017).



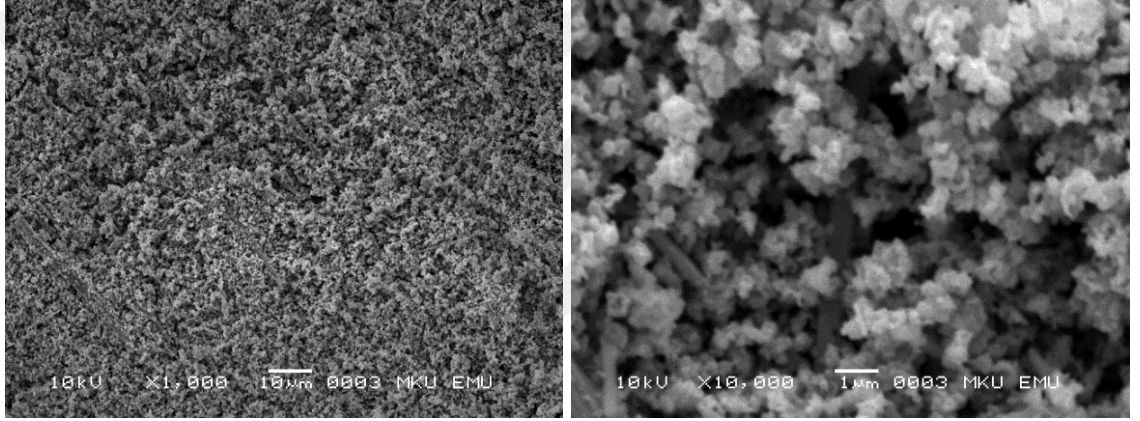
Şekil 4.71. $\text{Sr}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve Rb_2CO_3 bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı



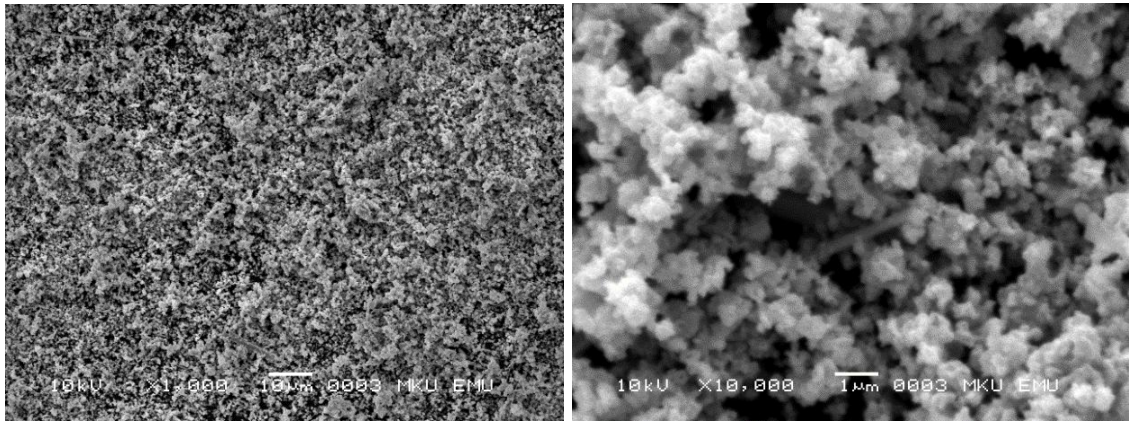
Şekil 4.72. $\text{Sr}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



$\text{Sr}_{0,95}\text{Rb}_{0,05}\text{TiO}_3$

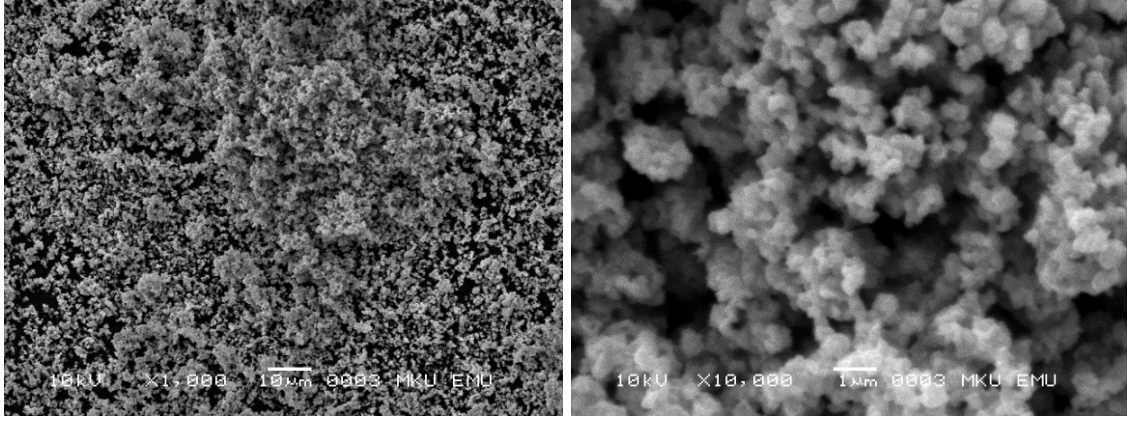


$\text{Sr}_{0,925}\text{Rb}_{0,075}\text{TiO}_3$

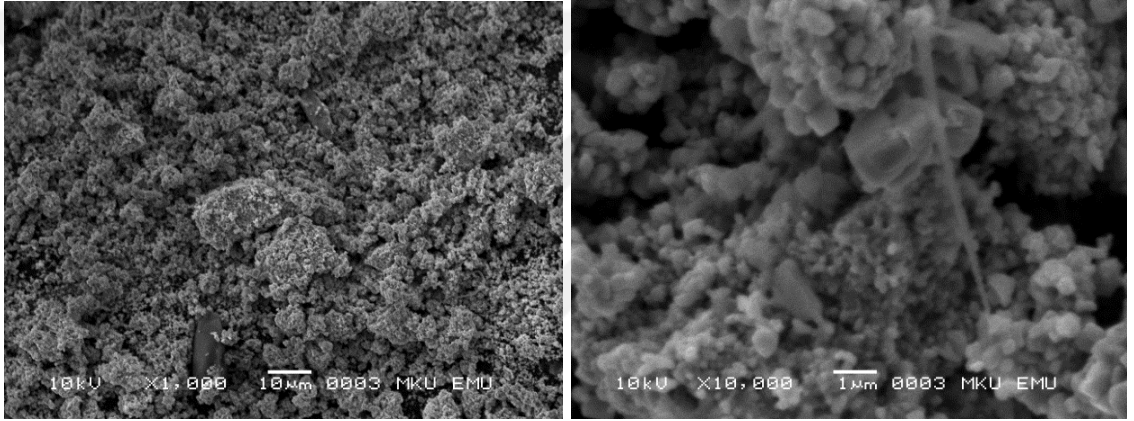


$\text{Sr}_{0,90}\text{Rb}_{0,10}\text{TiO}_3$

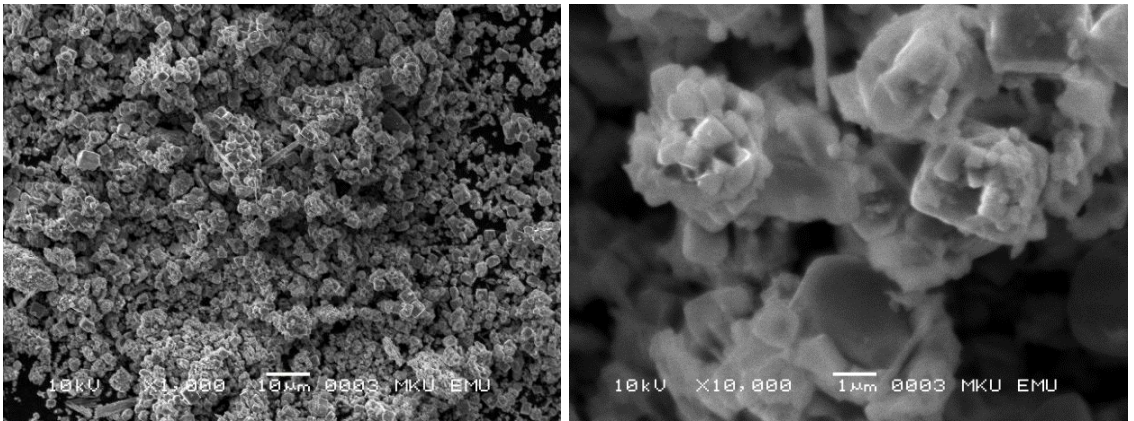
Şekil 4.72. (Devam) $\text{Sr}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



$\text{Sr}_{0,875}\text{Rb}_{0,125}\text{TiO}_3$

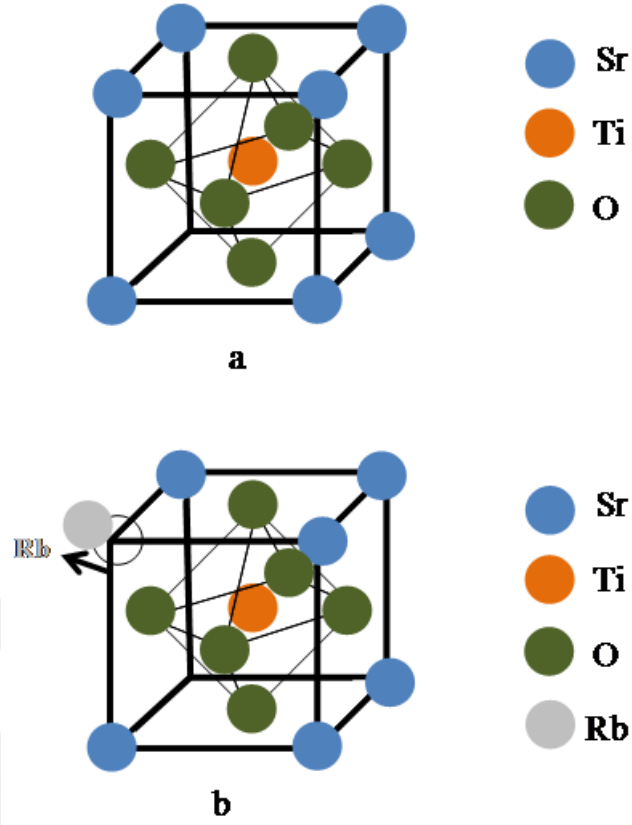


$\text{Sr}_{0,75}\text{Rb}_{0,25}\text{TiO}_3$



$\text{Sr}_{0,50}\text{Rb}_{0,50}\text{TiO}_3$

Şekil 4.72. (Devam) $\text{Sr}_{1-x}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



Şekil 4.73. a) Kübik kristal yapı (SrTiO_3 seramiği kafes yapısı) b) Rb_2CO_3 katkılı SrTiO_3 seramiğinde Rb iyonu ile Sr iyonunun yer değişimi

Farklı mol oranlarında rubidyumun stronsiyum titanata katkılanmasıyla elde edilen seramik yapılarda stronsiyum titanata ait olan karakteristik piklerin şiddetinde değişme olduğu X-ışını kırınım desenleri incelenerek belirlenmiştir. Elde edilen seramiklerin kristal yapılarının rubidyum katkısıyla birlikte rubidyumun kristal yapısı olan monoklinik yapıya dönüşmesi beklenirken katkısız stronsiyum titanatın kübik yapısının kararlılığını koruduğu, yapıya eklenen rubidyumun kristal yapıyı değiştirecek kadar etki göstermediği tespit edilmiştir.

Marina ve arkadaşları stronsiyum titanata farklı mol oranlarında (%10, 20,30, 35, 40 mol) lantan katkılarını ve elde ettikleri seramiklerin termal, elektriksel ve elektrokatalitik özelliklerini incelemiştir. Yapmış oldukları çalışmada XRD analizleri sonucunda lantan katkısıyla stronsiyum titanatın kristal örgü yapısının değişmediği elde edilen seramiklerin kübik kristal yapıya sahip olduğunu tespit etmişlerdir (Marina ve ark., 2002).

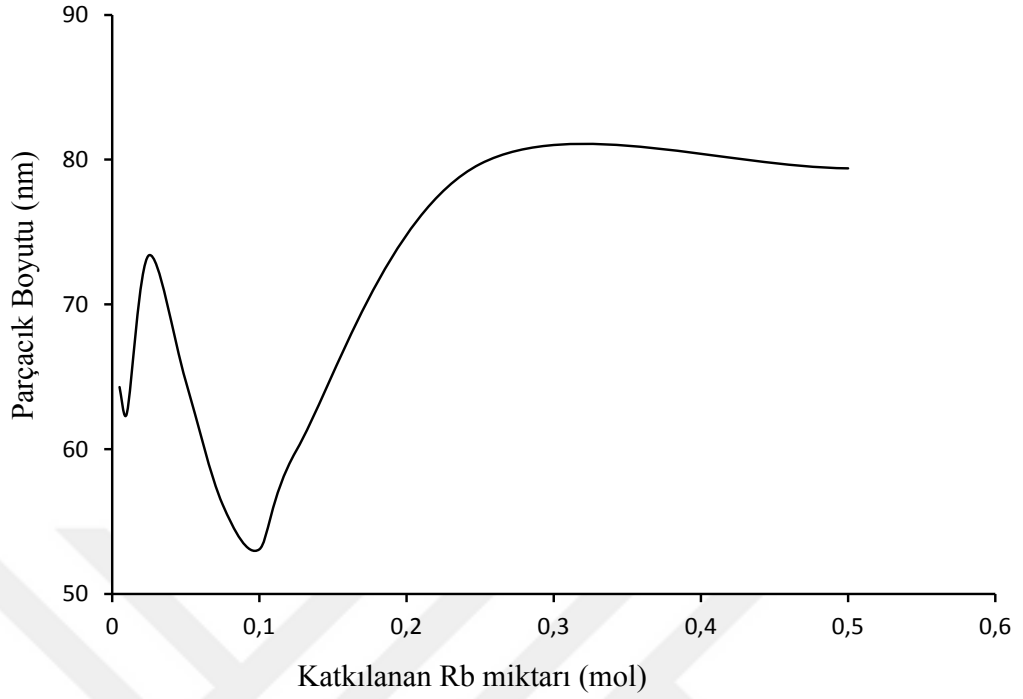
Farklı mol oranlarında rubidyum katkılanan SrTiO_3 seramiklerinin her bir katkılama sonucunda elde edilen yapılarının X-ışını kırınım desenlerinden yararlanılarak ortalama tanecik boyutları Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ve Çizelge 4.11’de verilmiştir.

$$D = \frac{0,9 \lambda}{\beta \cos \theta} \quad \lambda = 1,5400 \text{Å} \quad (4.12)$$

Çizelge 4.11. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları

Örnek	Ortalama Tanecik Boyutu (nm)
$\text{Sr}_{0,995}\text{Rb}_{0,005}\text{TiO}_3$	64,3
$\text{Sr}_{0,99}\text{Rb}_{0,01}\text{TiO}_3$	62,5
$\text{Sr}_{0,975}\text{Rb}_{0,025}\text{TiO}_3$	73,4
$\text{Sr}_{0,95}\text{Rb}_{0,05}\text{TiO}_3$	64,7
$\text{Sr}_{0,925}\text{Rb}_{0,075}\text{TiO}_3$	56,2
$\text{Sr}_{0,90}\text{Rb}_{0,10}\text{TiO}_3$	53,1
$\text{Sr}_{0,875}\text{Rb}_{0,125}\text{TiO}_3$	59,9
$\text{Sr}_{0,75}\text{Rb}_{0,25}\text{TiO}_3$	79,7
$\text{Sr}_{0,50}\text{Rb}_{0,50}\text{TiO}_3$	79,4

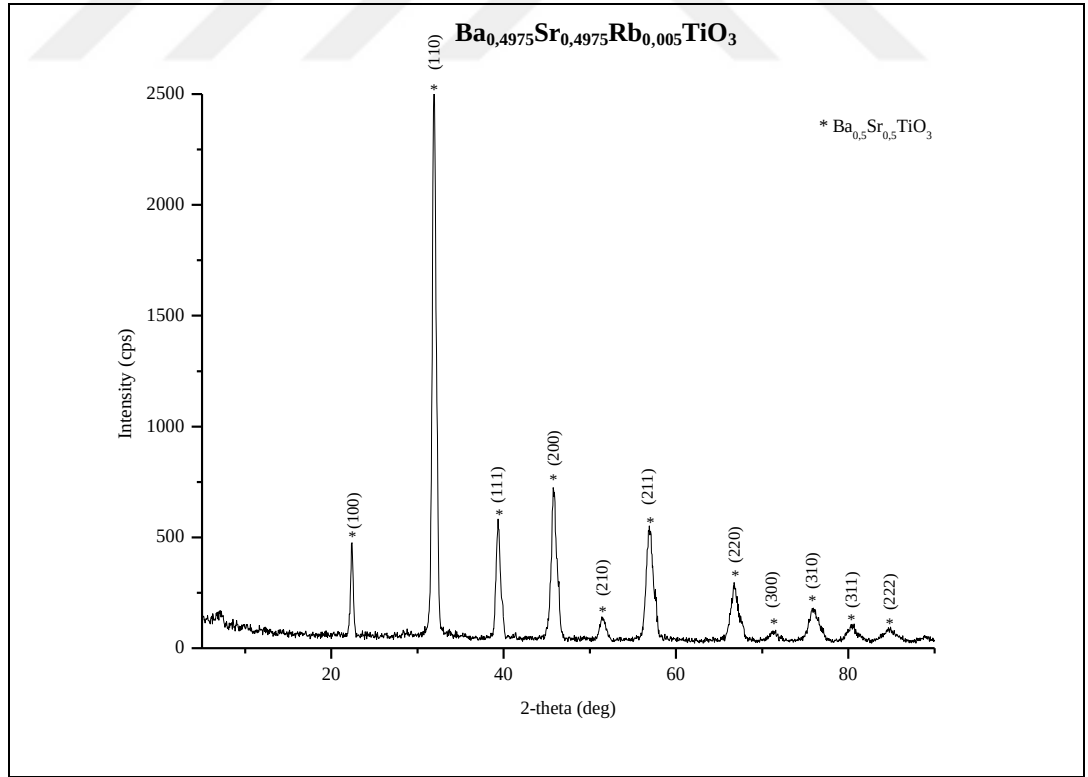
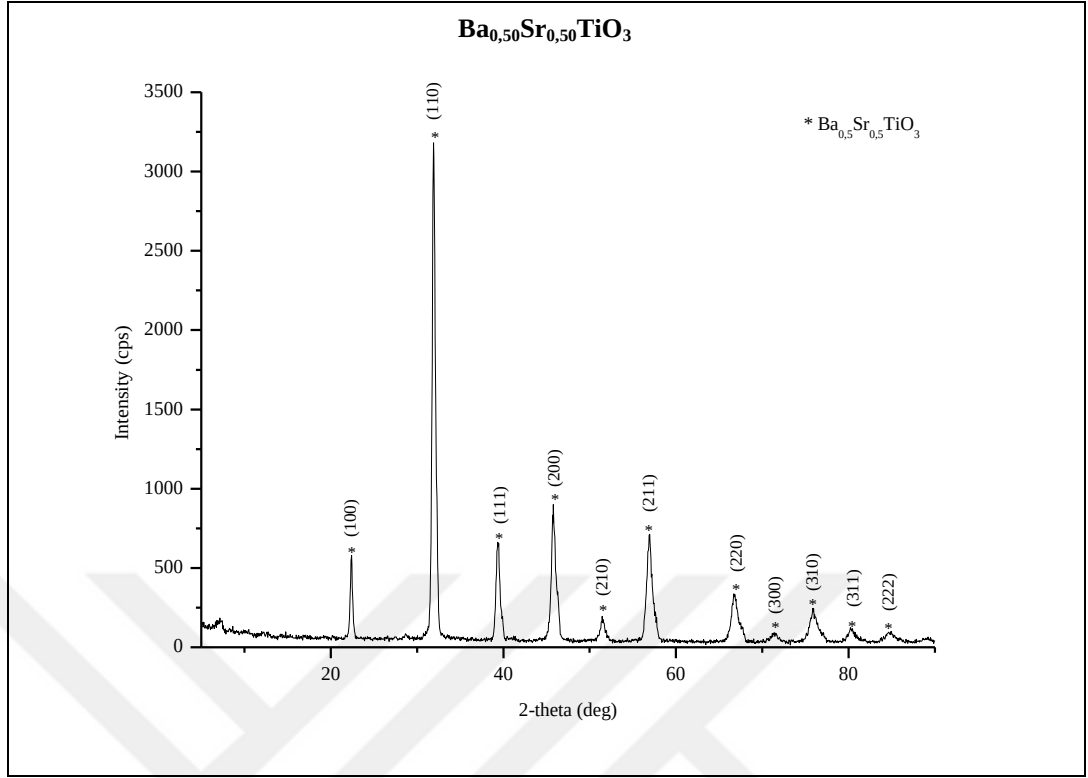
Tablodan görüldüğü gibi tanecik boyutları 53,1 - 79,7 nm aralığında değişen değerler almaktadır. Rubidyum katkı miktarı 0,025 molden 0,25 mole kadar arttırıldığında katkı miktarının artışıyla yapıyı oluşturan taneciklerin boyutunda azalma meydana gelmiştir. Katkılama miktarına bağlı olarak ortalama tanecik boyutundaki değişim Şekil 4.74’deki grafikte gösterilmiştir.



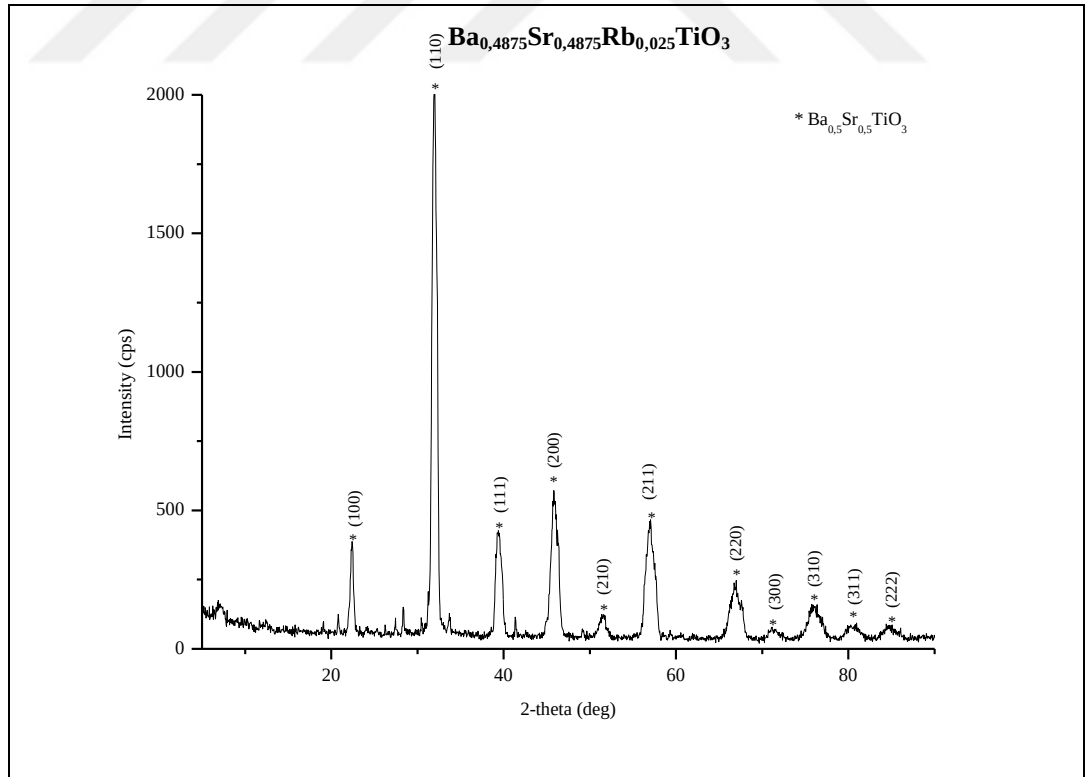
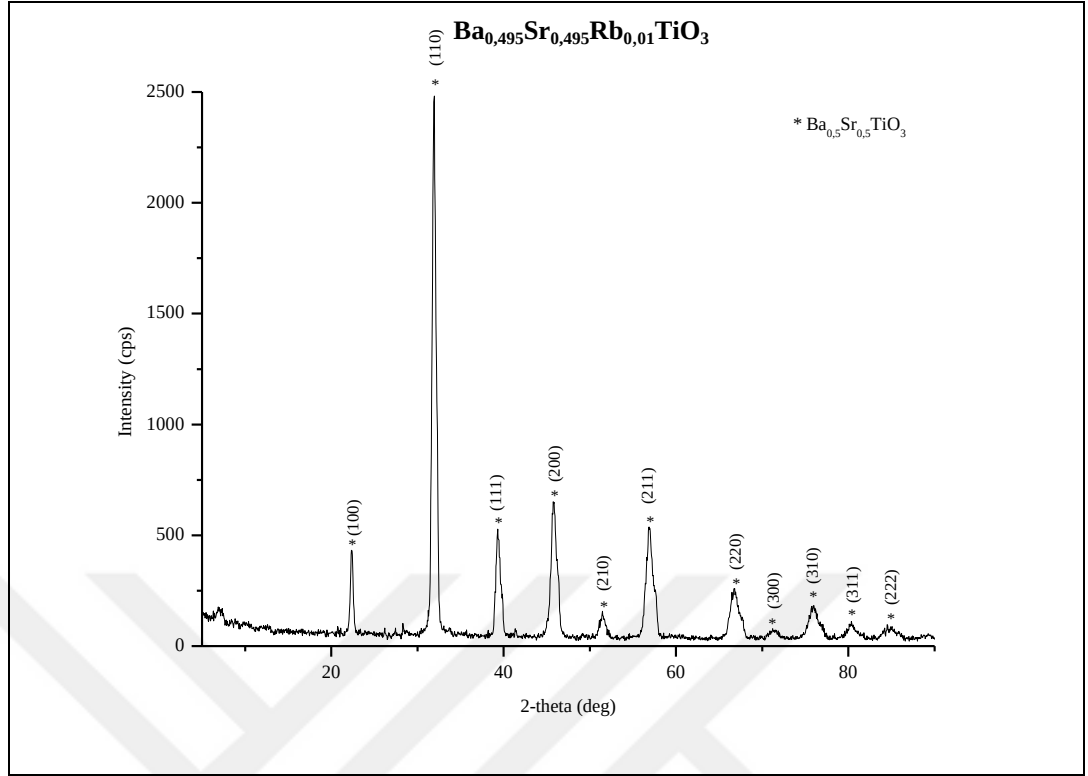
Şekil 4.74. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi

Stronsiyum titanata rubidyum katkılanarak elde edilen seramik yapılarda stronsiyum iyonu rubidyum iyonuyla yer değiştirerek stronsiyum titanata ait karakteristik piklerin şiddetinde azalma meydana gelmesine neden olmuştur. Yeni oluşan seramik yapılarda stronsiyum iyonları kararlı bir yapıya sahip olduğu için kristal yapı değişmemiş kübik yapı fazının hakim olduğu tespit edilmiştir. Katkı miktarına bağlı olarak kristali oluşturan taneciklerin ortalama büyüklüklerinde değişimler (53,1 - 79,7 nm aralığında) meydana gelmiştir (Marina ve ark., 2002; Tkachve ark., 2017).

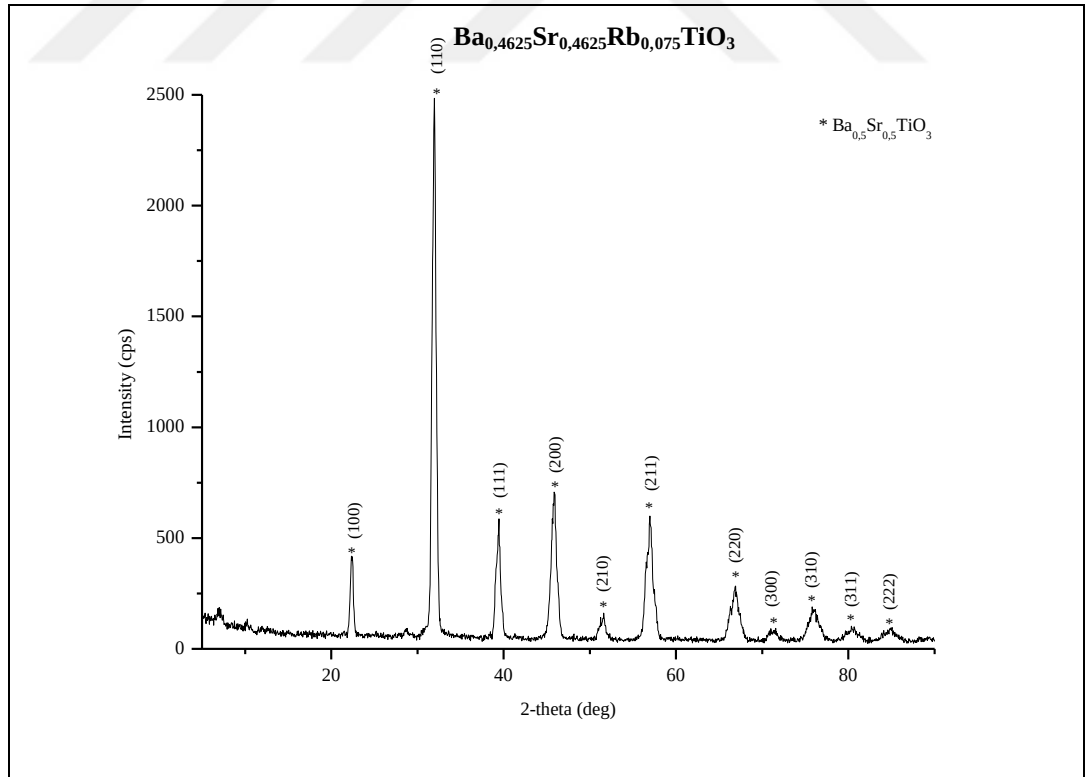
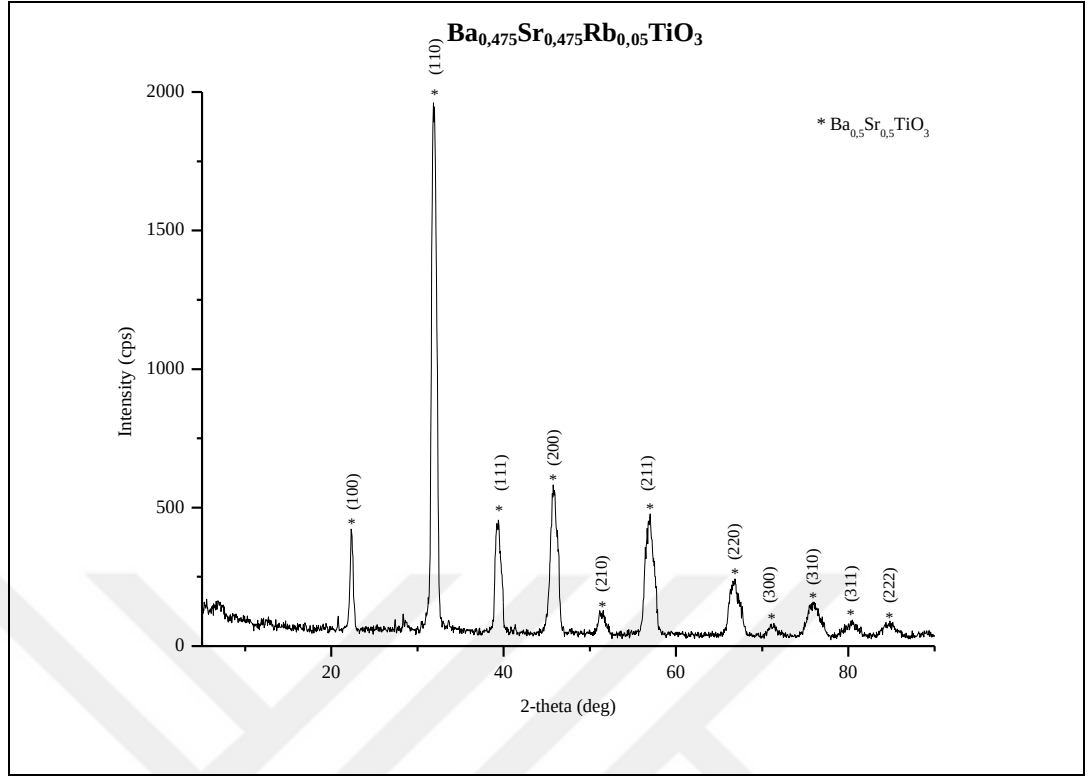
- Rubidyum katkılı baryum/stronsiyum titanatın katı hal sentez yöntemiyle elde edilişi: Katı hal sentez yöntemi ile farklı mol oranlarında $Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Rb_xTiO_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) katkılı seramik tozları bölüm 3.2.3.4’de anlatıldığı gibi sentezlenmiş ve kalsine edilmiştir. Elde edilen örneklerin ve katkılanan Rb_2CO_3 katkı maddesinin $5^\circ \leq 2\theta \leq 90^\circ$ aralığında ki X-ışını kırınım desenleri Şekil 4.75 ve Şekil 4.76’da; SEM görüntüleri ise Şekil 4.77’de verilmiştir.



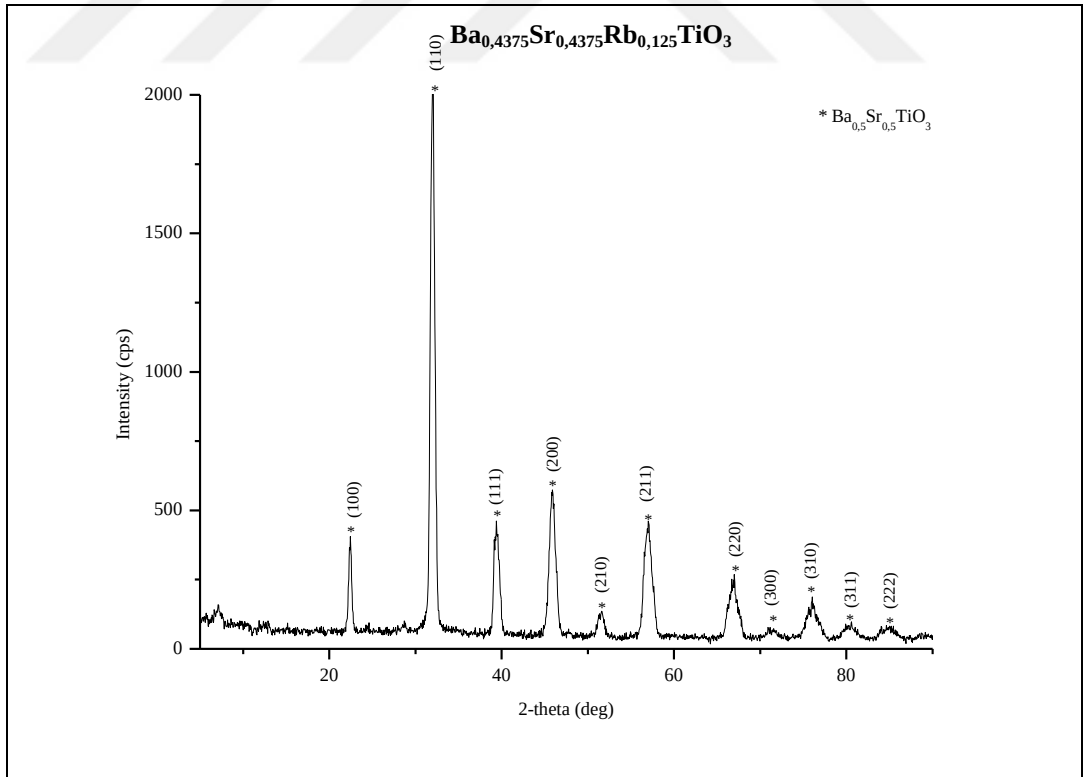
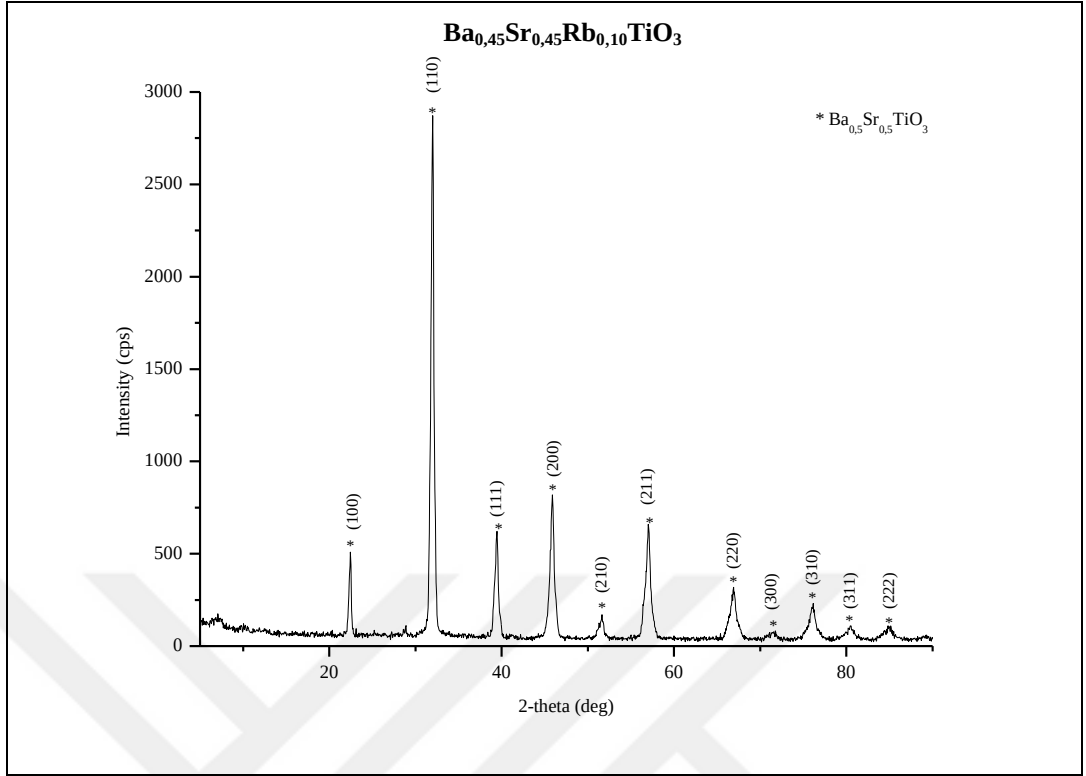
Şekil 4.75. Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Rb_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Rb₂CO₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



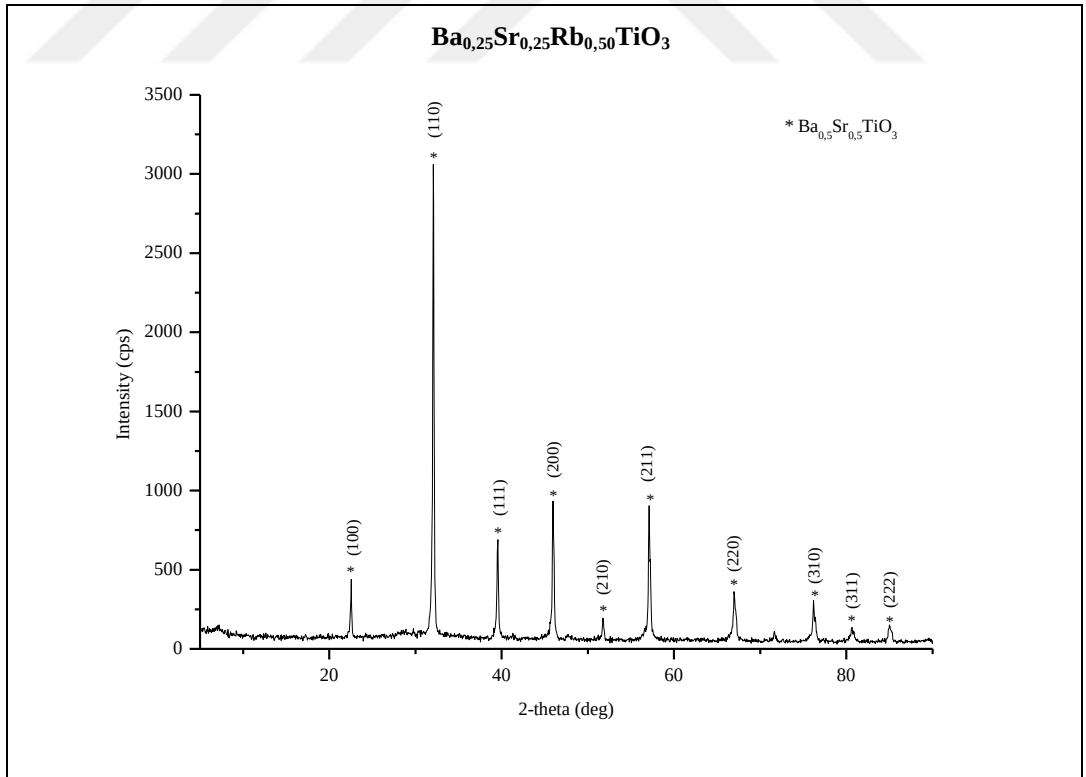
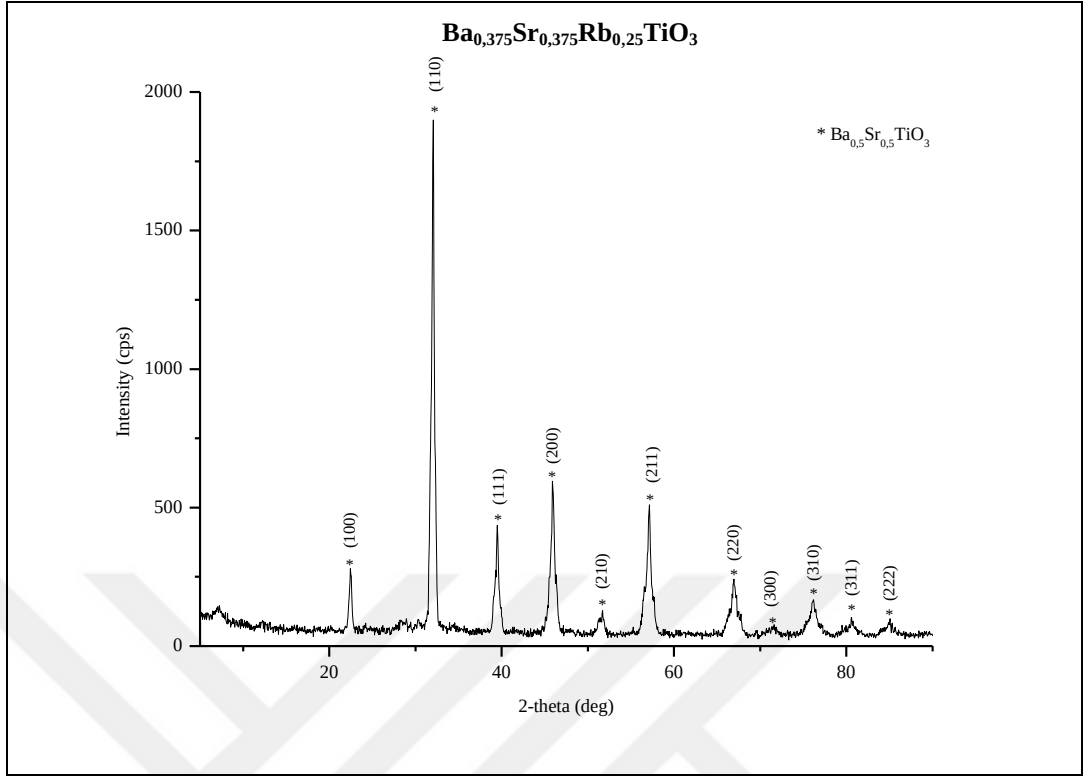
Şekil 4.75. (Devam) Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Rb_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve Rb₂CO₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



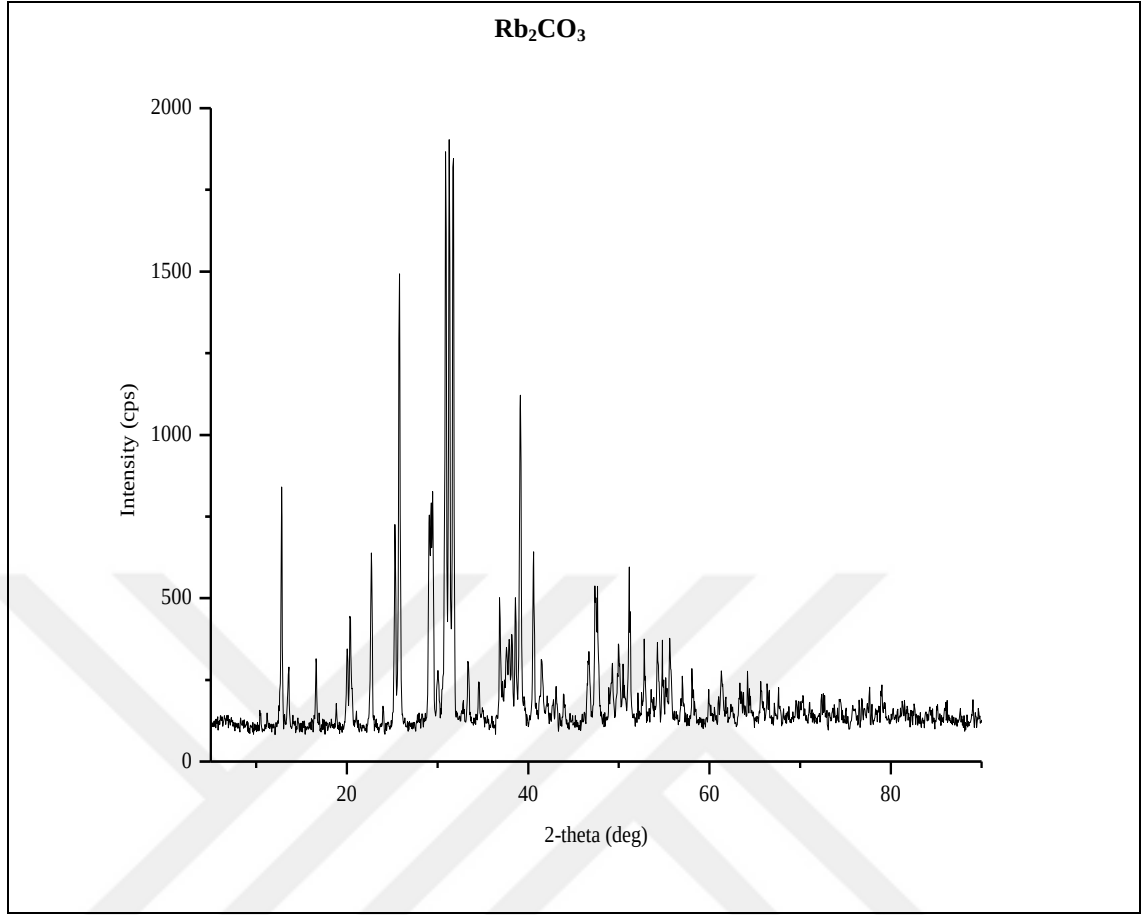
Şekil 4.75. (Devam) Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Rb_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Rb₂CO₃ bileşiğine ait XRD diyagramları



Şekil 4.75. (Devam) Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Rb_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Rb₂CO₃ bileşiğine ait XRD diyagramları

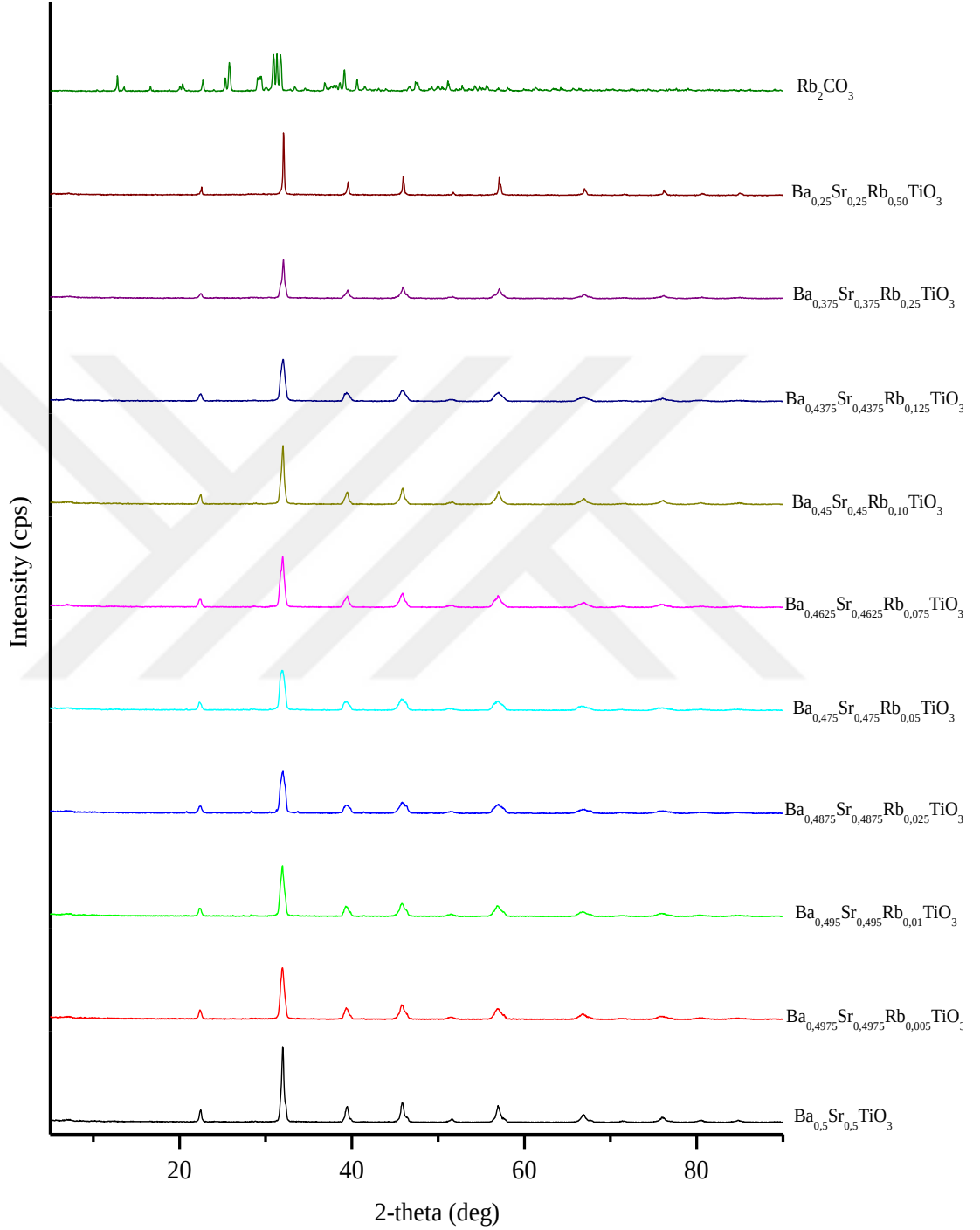


Şekil 4.75. (Devam) Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Rb_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve Rb₂CO₃ bileşiğine ait XRD diyagramları

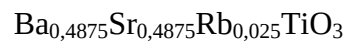
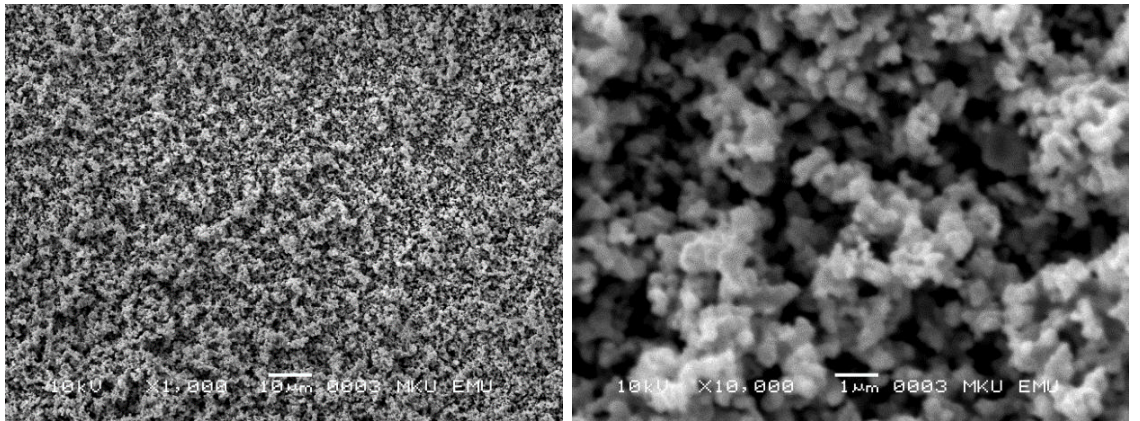
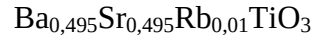
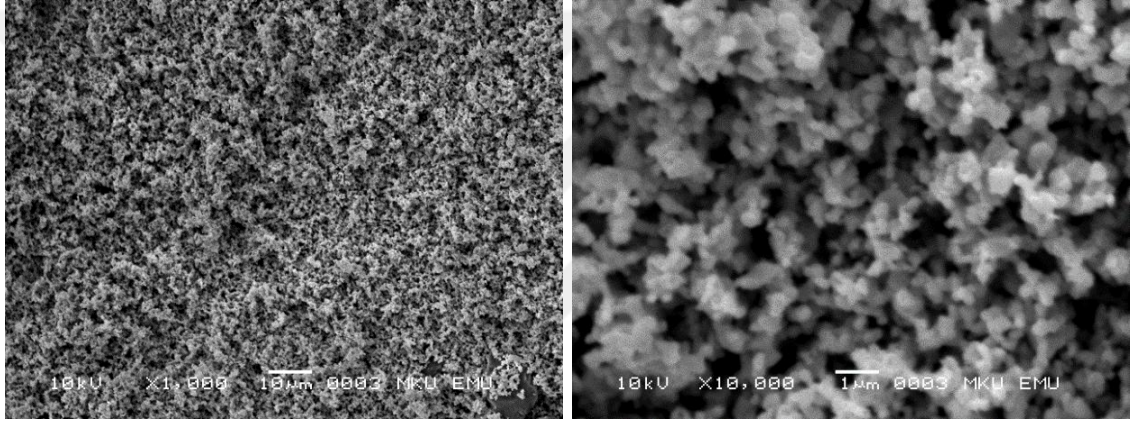
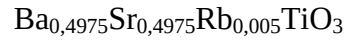
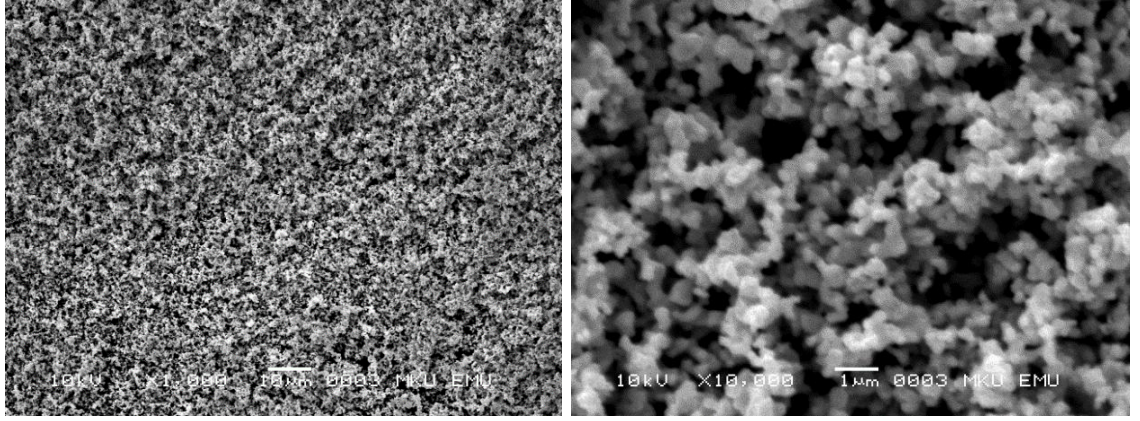


Şekil 4.75. (Devam) $\text{Ba}_{0,5-x/2}\text{Sr}_{0,5-x/2}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve Rb_2CO_3 bileşiğine ait XRD diyagramları

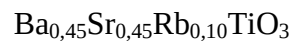
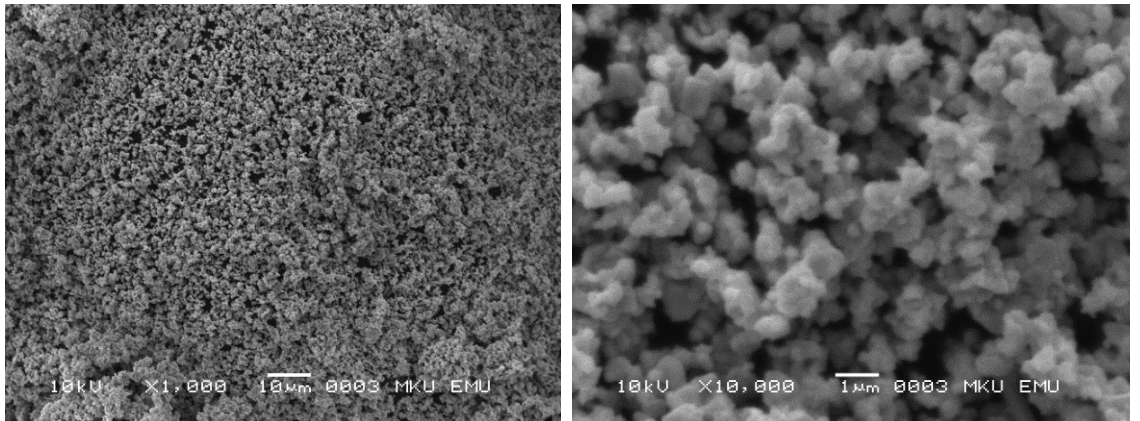
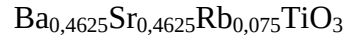
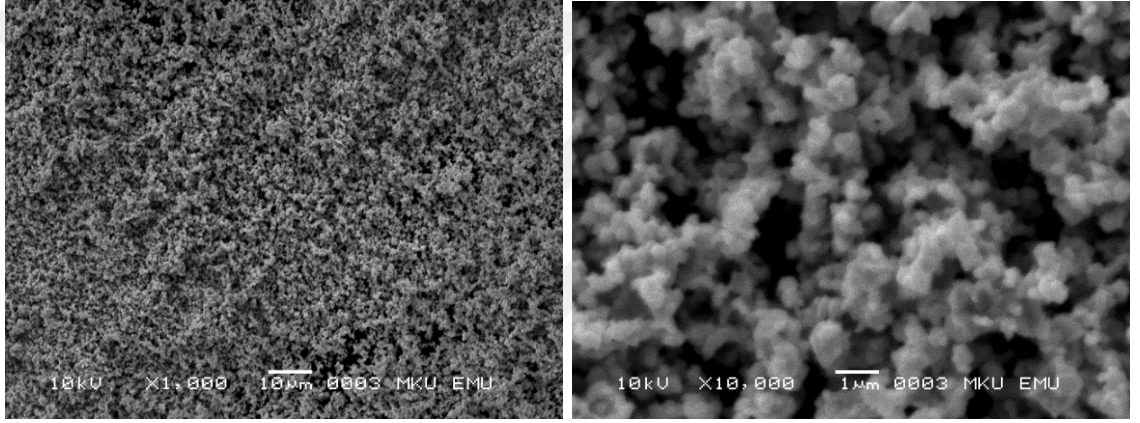
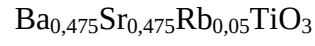
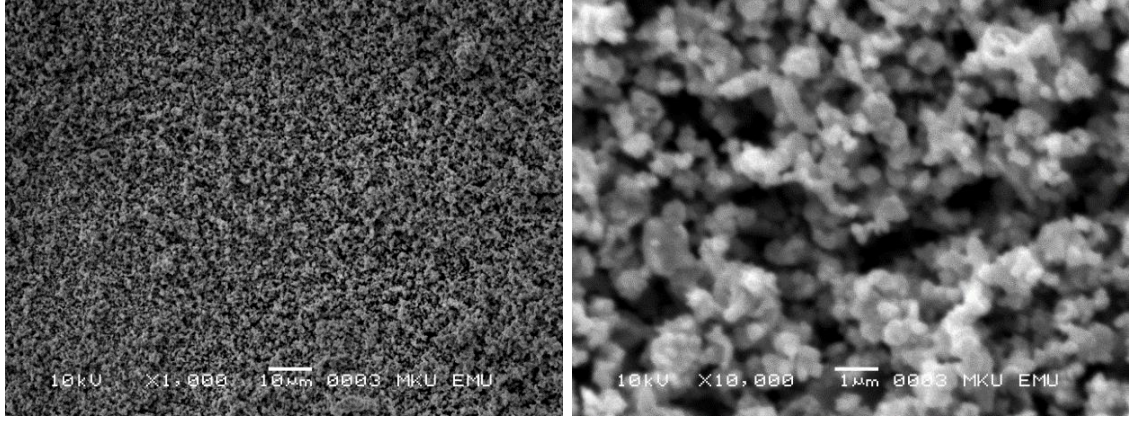
Baryum stronsiyum titanata 0,005 mol ile 0,50 mol aralığında rubidyum katkılıandığında yapıda rubidyuma ait karakteristik piklere rastlanılmamıştır. Katkı miktarının artışıyla 32° açı değerindeki baryum stronsiyum titanata ait karakteristik pikin şiddetinde azalma olurken; rubidyum katkı miktarı 0,10 mol ve 0,50 mol iken bu pikin şiddetinde artış gözlenmiştir. Baryum stronsiyum titanata La_2O_3 ve Sb_2O_3 katkılayan Chen ve arkadaşları elde ettikleri tozların XRD analizlerine göre 32° açı değerindeki baryum stronsiyum titanata ait karakteristik pikin şiddetinde katkı miktarının artışıyla azalma olduğunu belirtmişlerdir. Aynı zamanda bu açı değerindeki pikte yüksek açı değerine doğru kayma olduğunu tespit etmişlerdir (Chen ve ark., 2012).



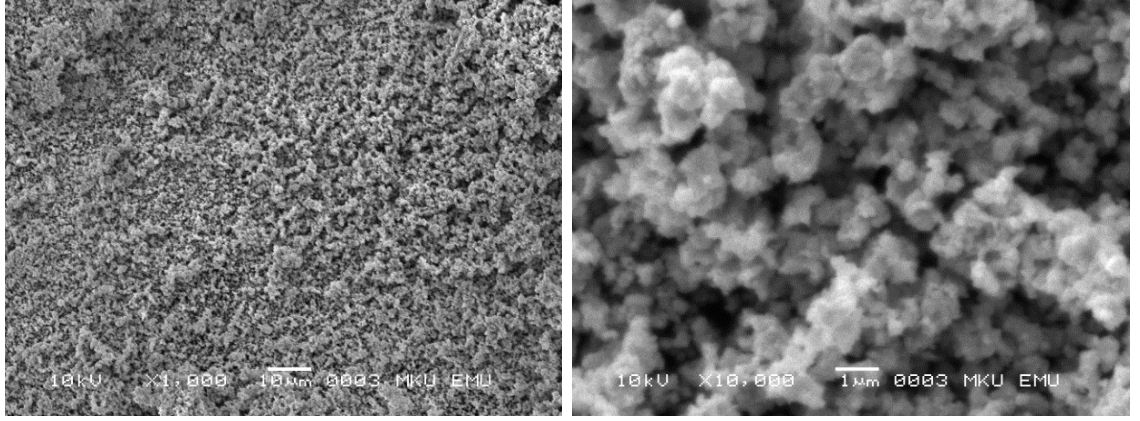
Şekil 4.76. $\text{Ba}_{0,5-x/2}\text{Sr}_{0,5-x/2}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve Rb_2CO_3 ait çoklu XRD diyagramı



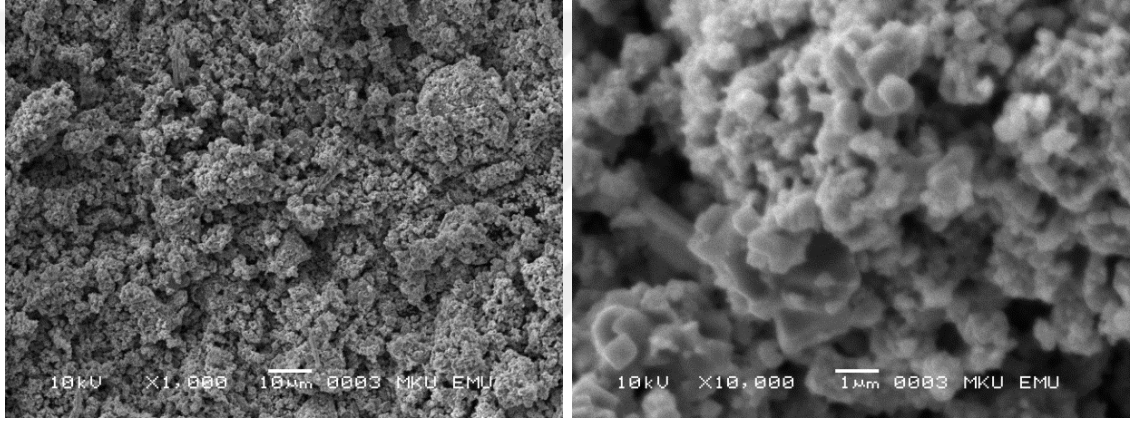
Şekil 4.77. $\text{Ba}_{0,5-x/2}\text{Sr}_{0,5-x/2}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x : 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ait SEM görüntüleri



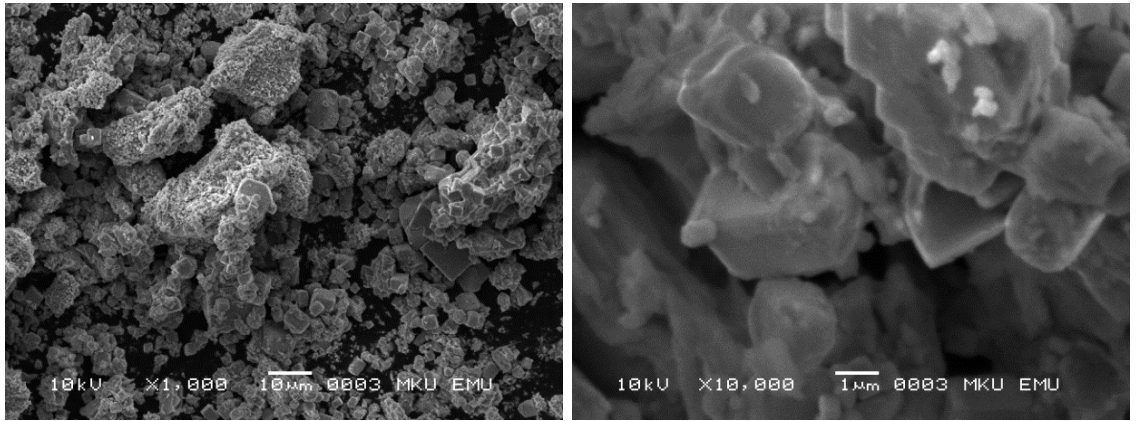
Şekil 4.77. (Devam) $\text{Ba}_{0,5-x/2}\text{Sr}_{0,5-x/2}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ait SEM görüntüleri



$\text{Ba}_{0,4375}\text{Sr}_{0,4375}\text{Rb}_{0,125}\text{TiO}_3$



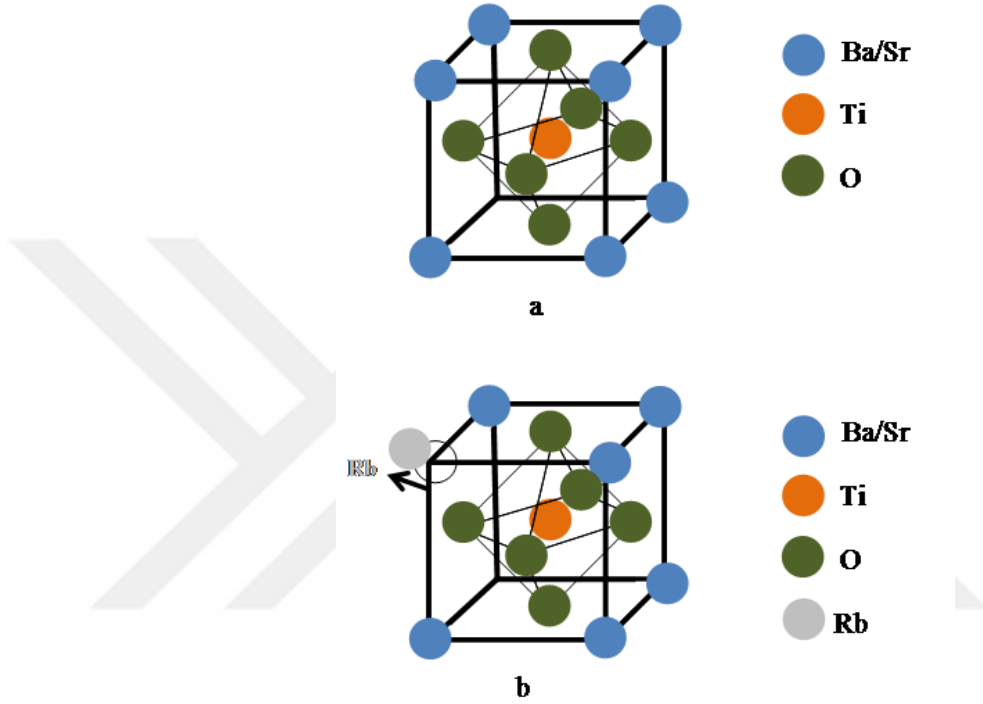
$\text{Ba}_{0,375}\text{Sr}_{0,375}\text{Rb}_{0,25}\text{TiO}_3$



$\text{Ba}_{0,25}\text{Sr}_{0,25}\text{Rb}_{0,50}\text{TiO}_3$

Şekil 4.77. (Devam) $\text{Ba}_{0,5-x/2}\text{Sr}_{0,5-x/2}\text{Rb}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri

SEM görüntüleri incelendiğinde yapıyı oluşturan tanecikler homojen bir şekilde dağılım göstermiştir. Rubidyum katkı miktarının yüksek olduğu (0,50 mol) seramik yapısını oluşturan taneciklerin büyüklüğü ile diğer katkı miktarlarında elde edilen seramikleri oluşturan taneciklerin büyüklükleri arasında ciddi bir fark olduğu görülmüştür.



Şekil 4.78. a) Kübik kristal yapı (Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO₃ seramiği kafes yapısı) b) Rb₂CO₃ katkılı Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO₃ seramiğinde Rb iyonu ile Ba ve Sr iyonlarının yer değişimi

Baryum stronsiyum titanata rubidyum katkısıyla elde edilen seramik yapılarda kübik kristal yapı fazının hakim olduğu görülmüştür. Rubidyum iyonları yapıdaki baryum ve stronsiyum iyonlarıyla yer değiştirmiş, kristali oluşturan taneciklerin yönelimlerinde değişmelere sebep olmuş fakat seramiğin kristal yapısı değişmemiştir.

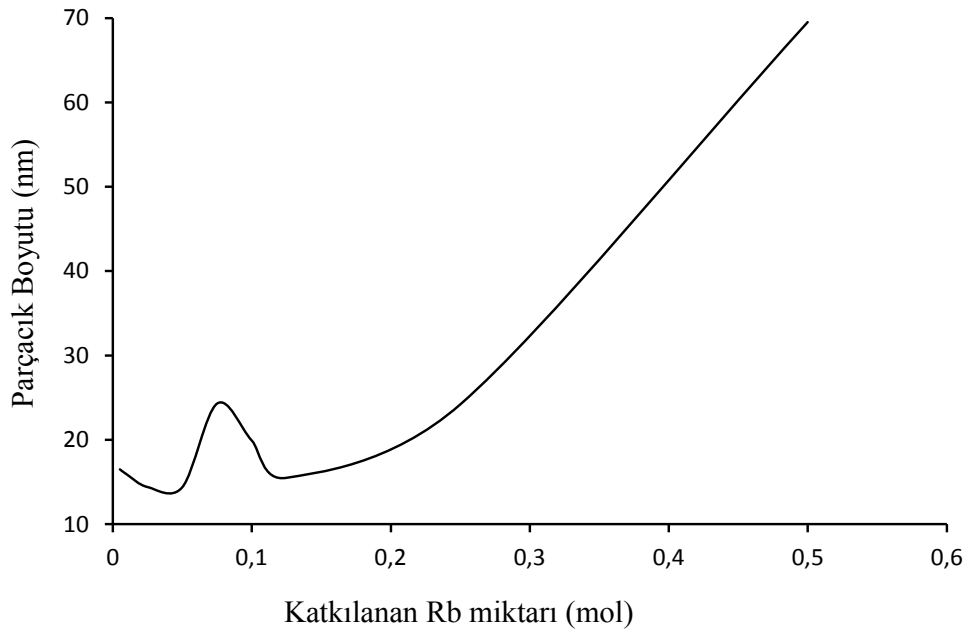
Farklı mol oranlarında Rb katkılanan Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO₃ seramiklerinin her bir katkılama sonucunda elde edilen yapılarının XRD kırınım desenlerinden yararlanılarak ortalama tanecik boyutları Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ve Çizelge 4.12’de verilmiştir.

$$D = \frac{0,9 \lambda}{\beta \cos \theta} \quad \lambda = 1,5400 \text{Å} \quad (4.13)$$

Çizelge 4.12. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları

Örnek	Ortalama Tanecik Boyutu (nm)
$Ba_{0,4975}Sr_{0,4975}Rb_{0,005}TiO_3$	16,5
$Ba_{0,495}Sr_{0,495}Rb_{0,01}TiO_3$	15,9
$Ba_{0,4875}Sr_{0,4875}Rb_{0,025}TiO_3$	14,4
$Ba_{0,475}Sr_{0,475}Rb_{0,05}TiO_3$	14,4
$Ba_{0,4625}Sr_{0,4625}Rb_{0,075}TiO_3$	24,3
$Ba_{0,45}Sr_{0,45}Rb_{0,10}TiO_3$	19,9
$Ba_{0,4375}Sr_{0,4375}Rb_{0,125}TiO_3$	15,5
$Ba_{0,375}Sr_{0,375}Rb_{0,25}TiO_3$	24,2
$Ba_{0,25}Sr_{0,25}Rb_{0,50}TiO_3$	69,5

$Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Rb_xTiO_3$ katkılı örneklerin tanecik boyutları 14,40 – 69,50 nm aralığında değişen değerler almaktadır. Katkılama miktarına bağlı olarak ortalama tanecik boyutundaki değişim Şekil 4.79'daki grafikte gösterilmiştir.



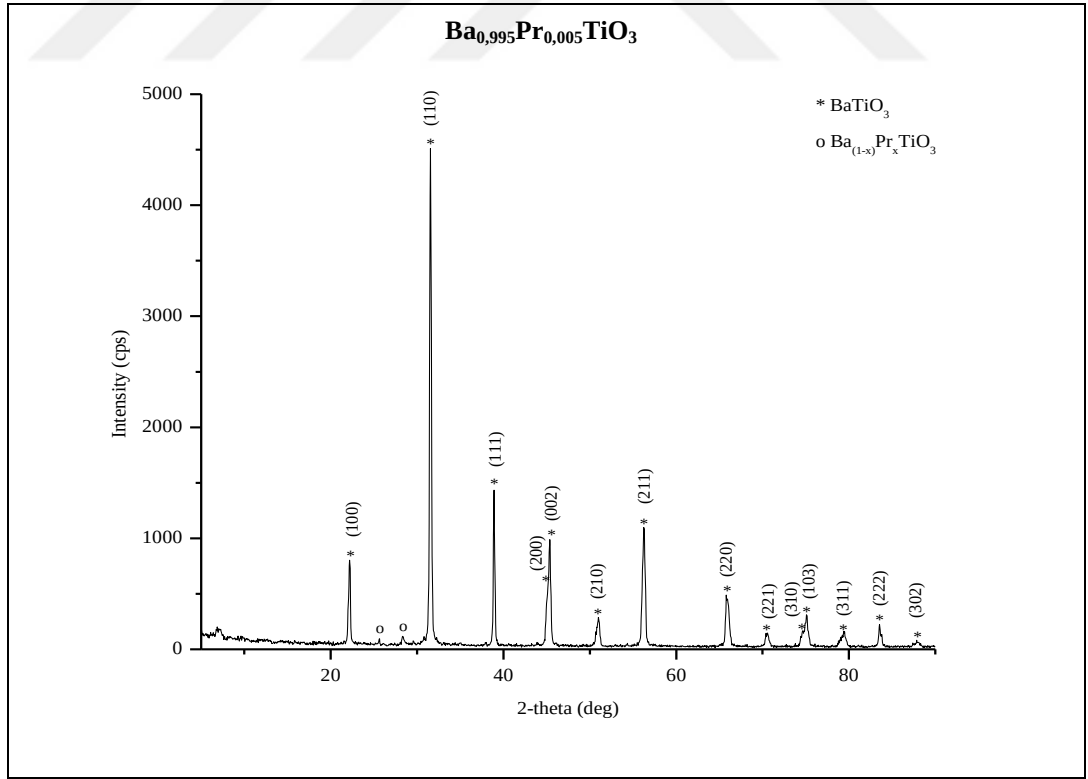
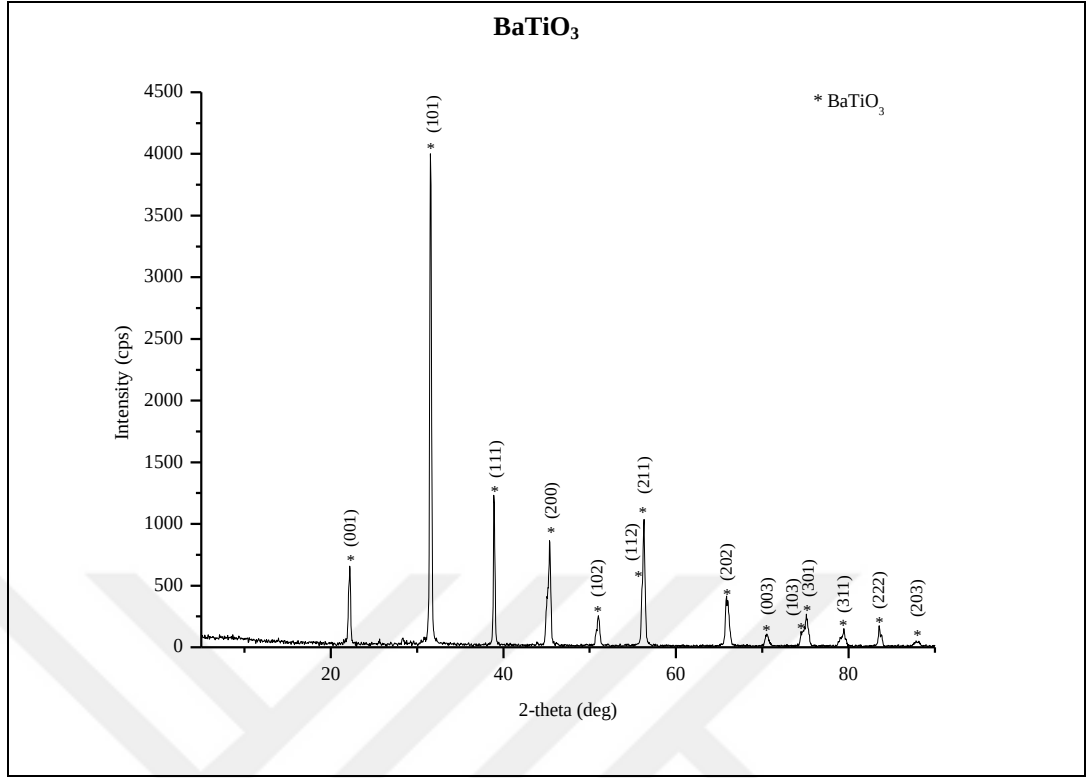
Şekil 4.79. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi

Katı hal sentez yöntemiyle sentezlenen baryum stronsiyum titanata rubidyum katkısıyla elde edilen seramik yapıların XRD kırınım desenleri incelendiğinde katkı miktarının artışıyla birlikte stronsiyum titanata ait karakteristik piklerin şiddetinde değişimler olduğu görülmüştür. SEM görüntüleri ve XRD kırınım desenlerine bakıldığında kristal yapının kübik olduğu ve yapıyı oluşturan taneciklerin boyutlarının katkı miktarına bağlı olarak farklılaştığı tespit edilmiştir. Sentezlenen seramik yapıların tanecik boyutları Debye Scherrer eşitliğinden yararlanılarak hesaplanmıştır (Chen ve ark., 2012).

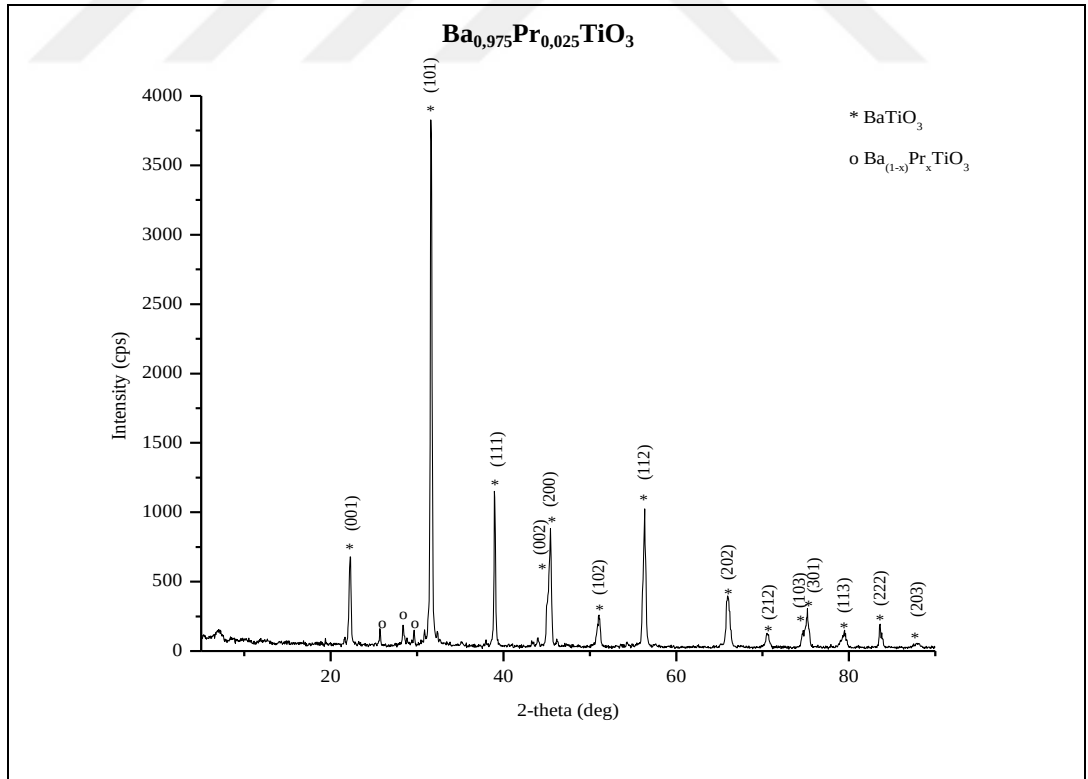
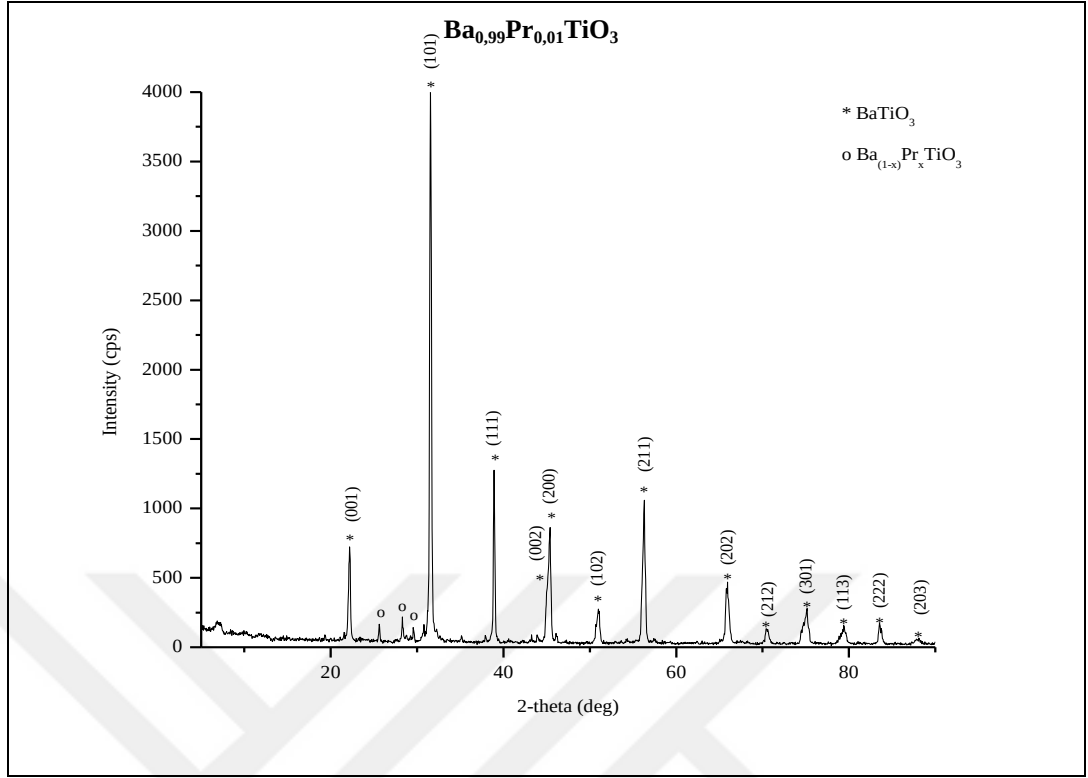
4.2.5. Praseodimiyum Katkılı Baryum Titanat, Stronsiyum Titanat ve Baryum/Stronsiyum Titanatın Katı Hal Sentez Yöntemiyle Üretilmesi ve Karakterizasyonu

Materyal ve yöntem kısmının 3.2.3.5 kısmında anlatıldığı gibi katı hal sentez yöntemi kullanılarak farklı mol oranlarında praseodimiyum katkılı baryum titanat ($Ba_{1-x}Pr_xTiO_3$), stronsiyum titanat ($Sr_{1-x}Pr_xTiO_3$) ve baryum stronsiyum titanat ($Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Pr_xTiO_3$) üretilmiştir. Elde edilen yapılarda katkı miktarındaki artışa bağlı olarak yapıyı oluşturan piklerde kaymalar, şiddet değerlerinde değişimler ve örgü parametrelerinde farklılıklar olduğu tespit edilmiştir. Pr^{+} ($r = 151$ pm) iyonunun yarıçapı $BaTiO_3$, $SrTiO_3$, $Ba/SrTiO_3$ seramiklerindeki Ba^{2+} ($r = 149$ pm) ve Sr^{2+} ($r = 132$ pm) iyonlarının yarıçapına yakın olduğundan dolayı Pr^{+} iyonunun kristal yapıda baryum ve stronsiyum iyonları ile yer değiştirmesi beklenmektedir. Piklerde meydana gelen bu değişimler Pr atomunun katkılama sonucunda Ba ya da Sr atomunun yerine geçerek $BaTiO_3$; $SrTiO_3$; $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ yapılarına yerleşebildiğini göstermektedir.

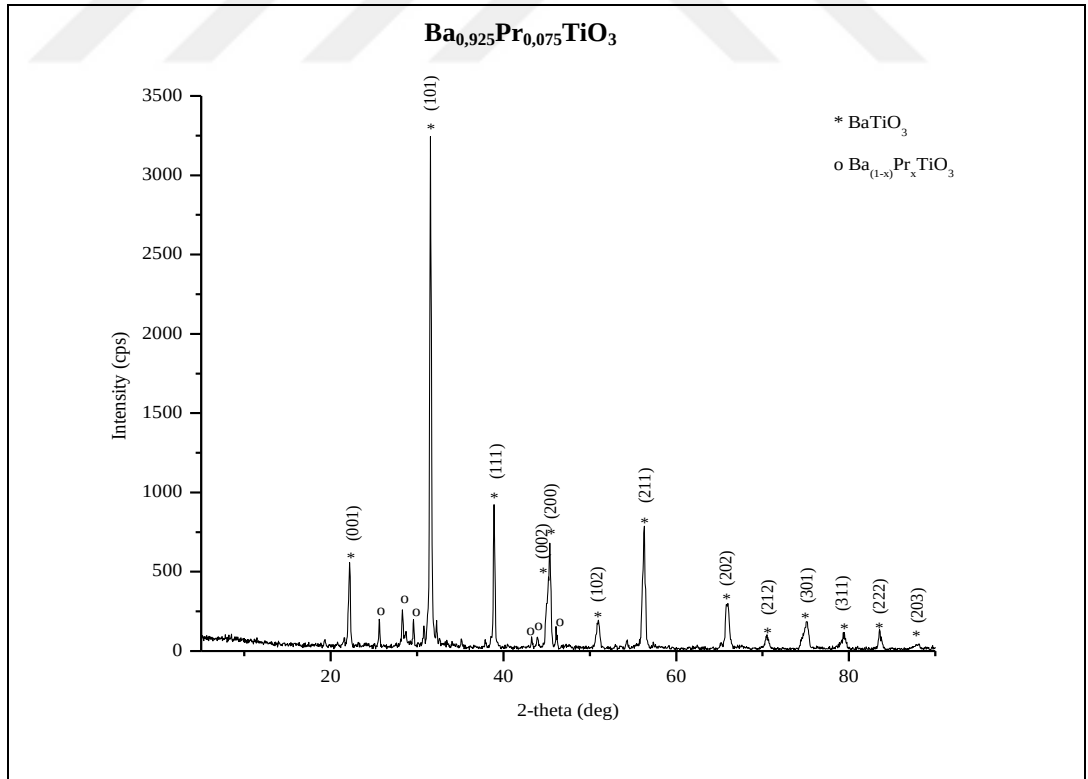
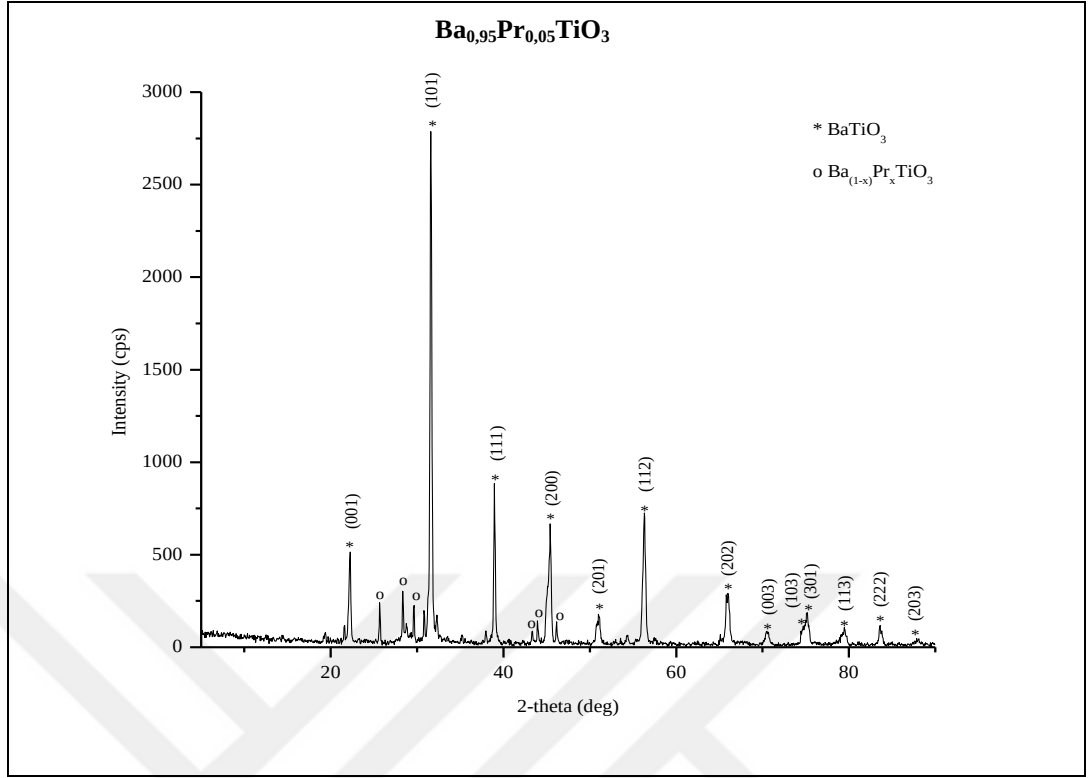
- Praseodimiyum katkılı baryum titanatın katı hal sentez yöntemiyle elde edilişi: Katı hal sentez yöntemi ile farklı mol oranlarında $Ba_{1-x}Pr_xTiO_3$ (x : 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) katkılı seramik tozları bölüm 3.2.3.5’de anlatıldığı gibi sentezlenmiş ve kalsine edilmiştir. Elde edilen seramik tozların ve katkılanan Pr_6O_{11} katkı maddesinin $5^{\circ} \leq 2\theta \leq 90^{\circ}$ aralığında ki X-ışını kırınım desenleri Şekil 4.80 ve Şekil 4.81’de; SEM görüntüleri ise Şekil 4.82’de verilmiştir.



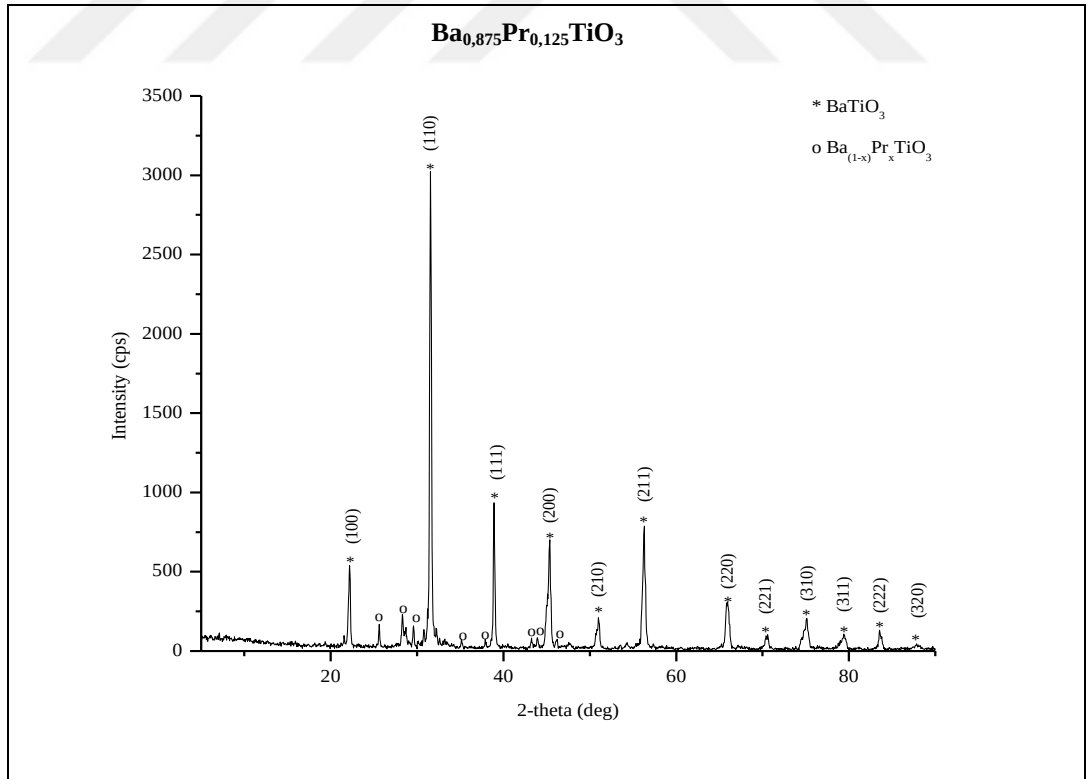
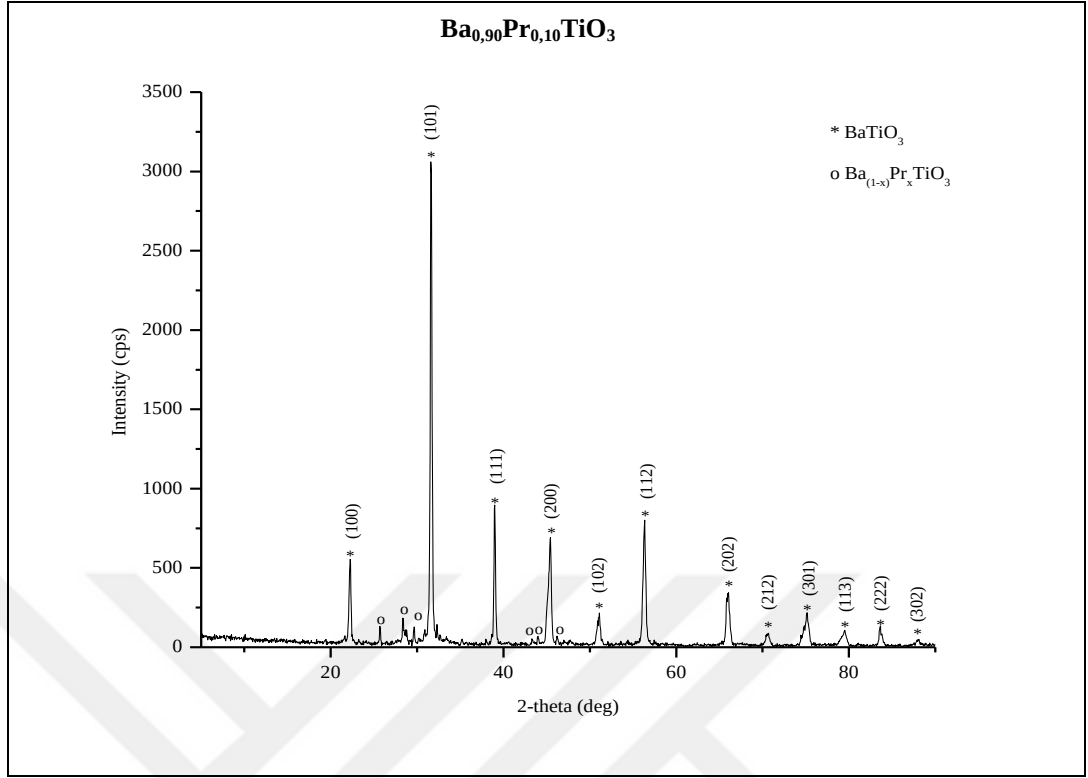
Şekil 4.80. Ba_{1-x}Pr_xTiO₃(x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Pr₆O₁₁ bileşiğine ait XRD diyagramları



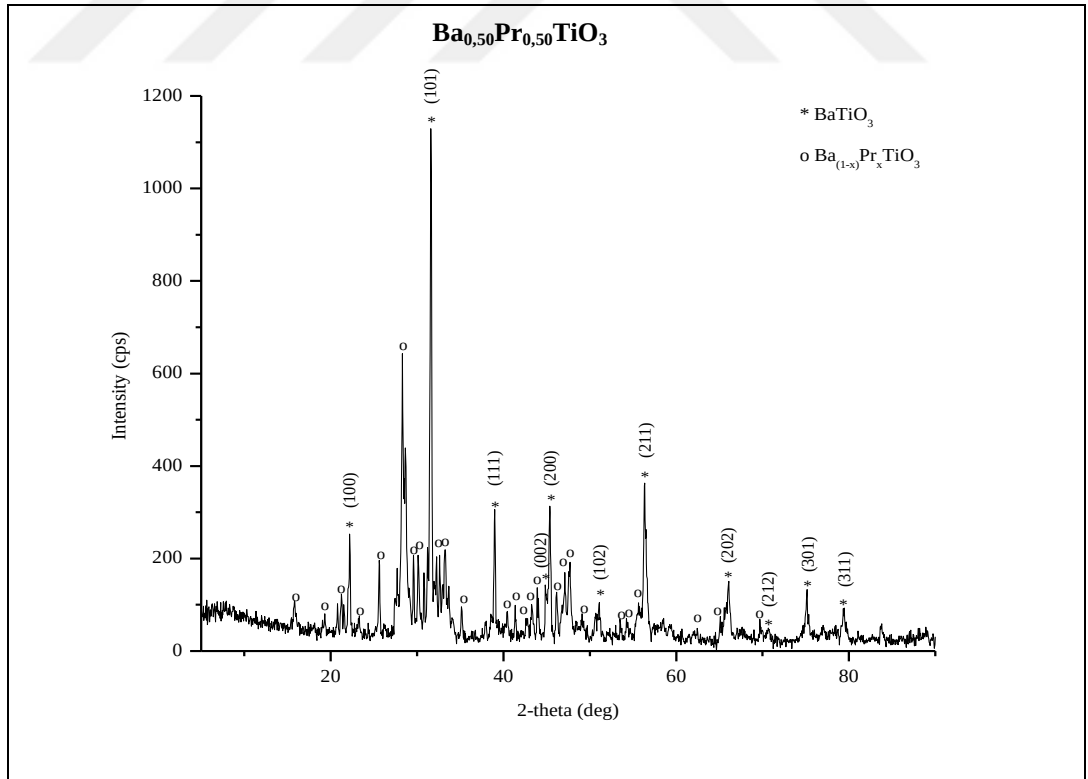
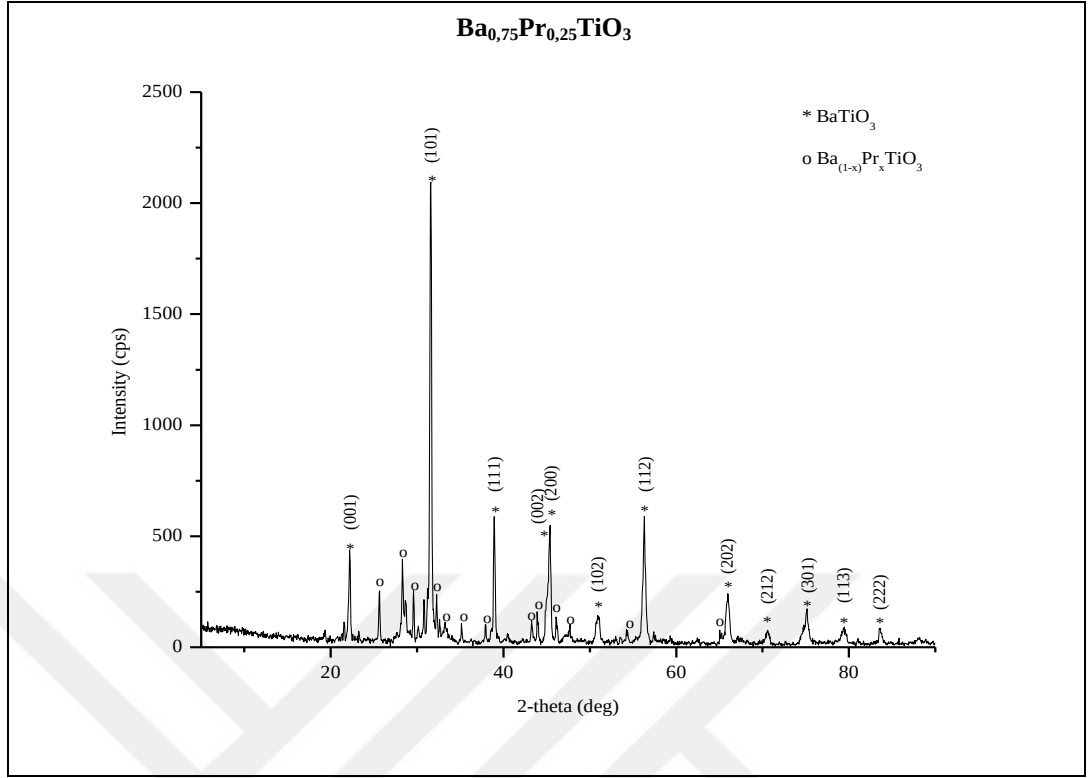
Şekil 4.80. (Devam). Ba_{1-x}Pr_xTiO₃(x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Pr₆O₁₁ bileşiğine ait XRD diyagramları



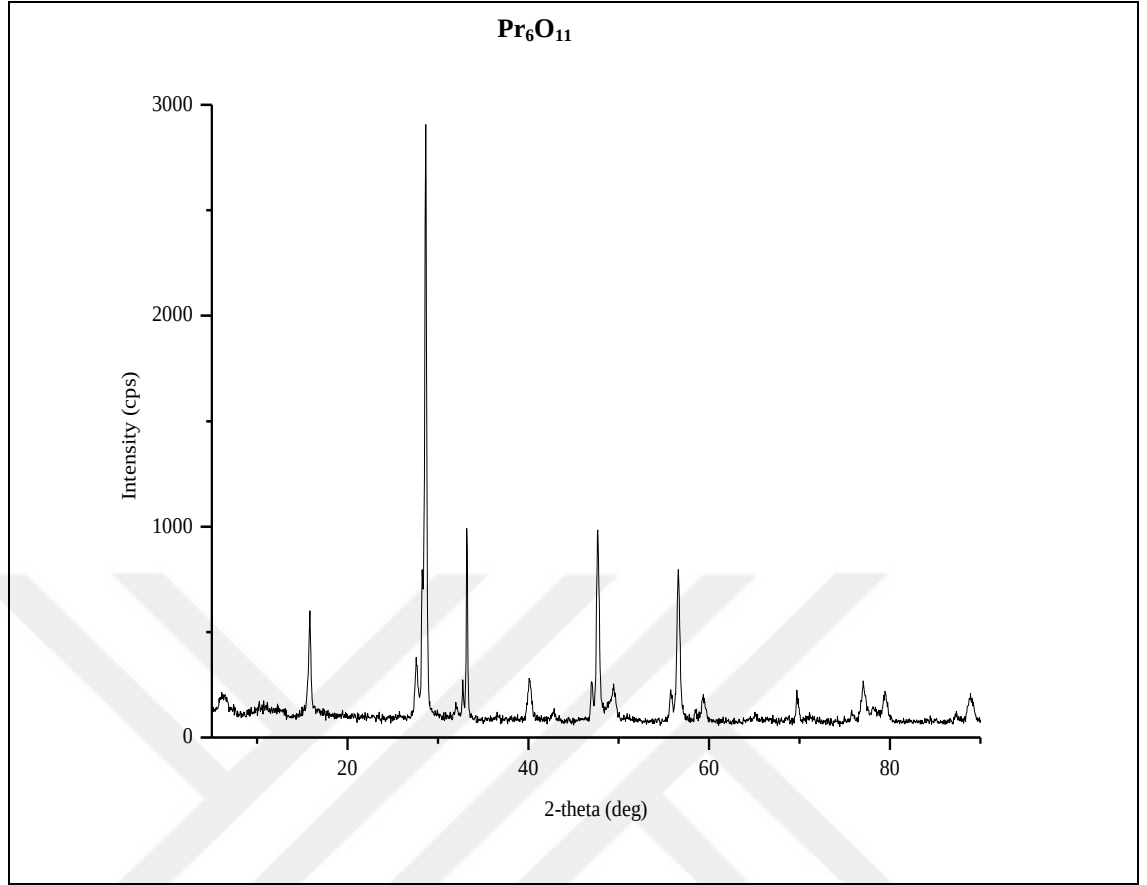
Şekil 4.80. (Devam). Ba_{1-x}Pr_xTiO₃(x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Pr₆O₁₁ bileşiğine ait XRD diyagramları



Şekil 4.80. (Devam). Ba_{1-x}Pr_xTiO₃(x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Pr₆O₁₁ bileşiğine ait XRD diyagramları

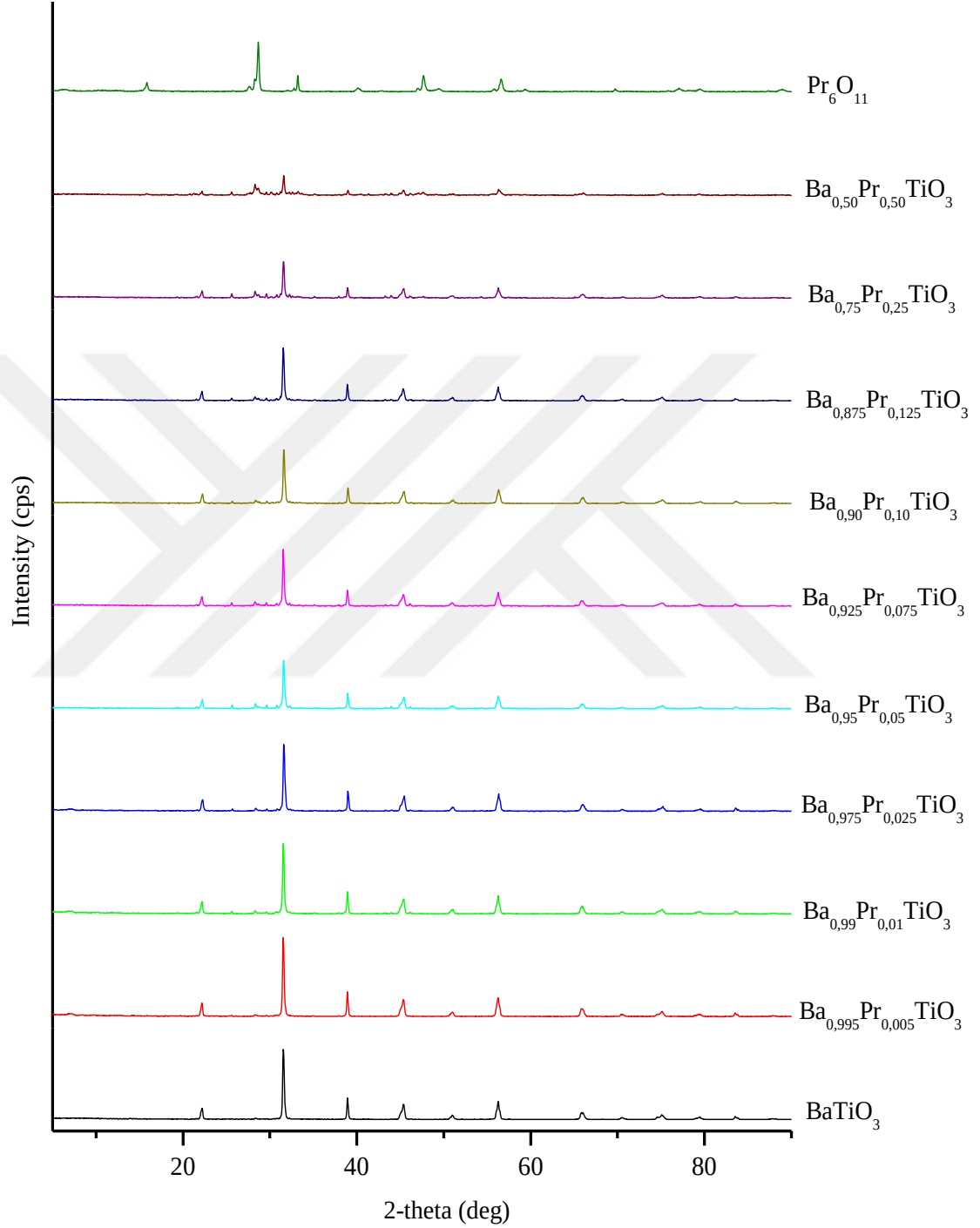


Şekil 4.80. (Devam). Ba_{1-x}Pr_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve Pr₆O₁₁ bileşiğine ait XRD diyagramları

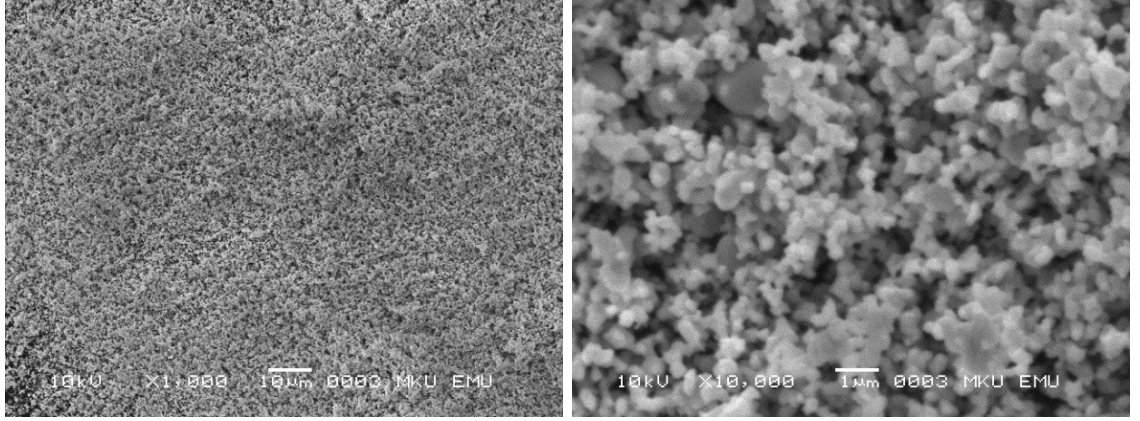


Şekil 4.80. (Devam) $\text{Ba}_{1-x}\text{Pr}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve Pr_6O_{11} bileşiğine ait XRD diyagramları

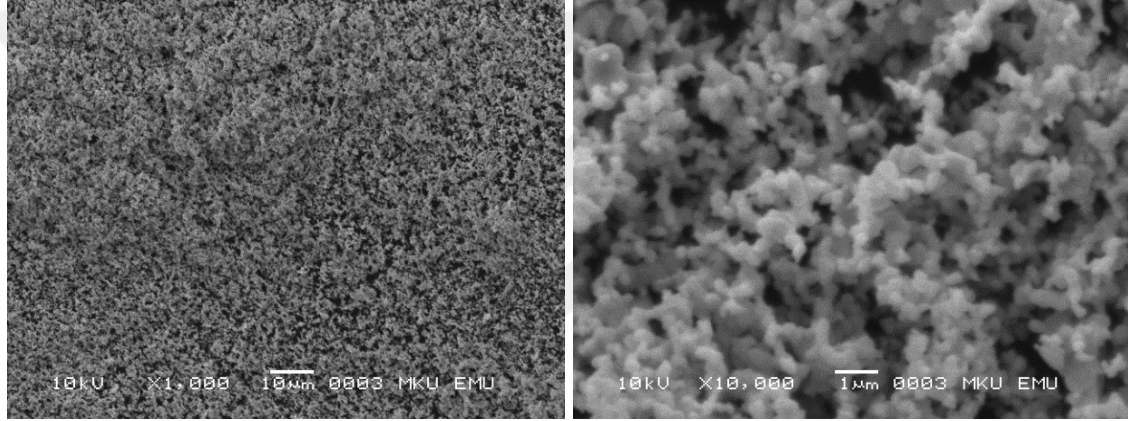
Baryum titanata 0,005 mol praseodimiyum (Pr_6O_{11}) katkılındığında 25° ve 28° açı değerlerinde yeni oluşan kristal yapıya ait karakteristik piklere rastlanılmıştır. Katkı miktarının artışıyla bu açı değerindeki piklerin şiddeti artmış, aynı zamanda bunların dışında yeni karakteristik pikler (29° , 30° , 31° , 37° , 43° , 46° , 54° ..) meydana gelmiştir. Baryum titanata ait 32° açı değerindeki karakteristik pikin şiddeti praseodimiyum katkı miktarının artışıyla azalmasına rağmen; katkı miktarı 0,075 mol ile 0,10 mol olduğunda pikin şiddetinde artış olduğu gözlenmiştir. Baryum titanat yapısına praseodimiyum katkılanmasıyla pik sayısı ve şiddetlerinde meydana gelen değişimler BaTiO_3 yapısının praseodimiyum tarafından deforme edildiğini ve yeni bir kristal yapı fazının oluşmaya başladığını göstermektedir.



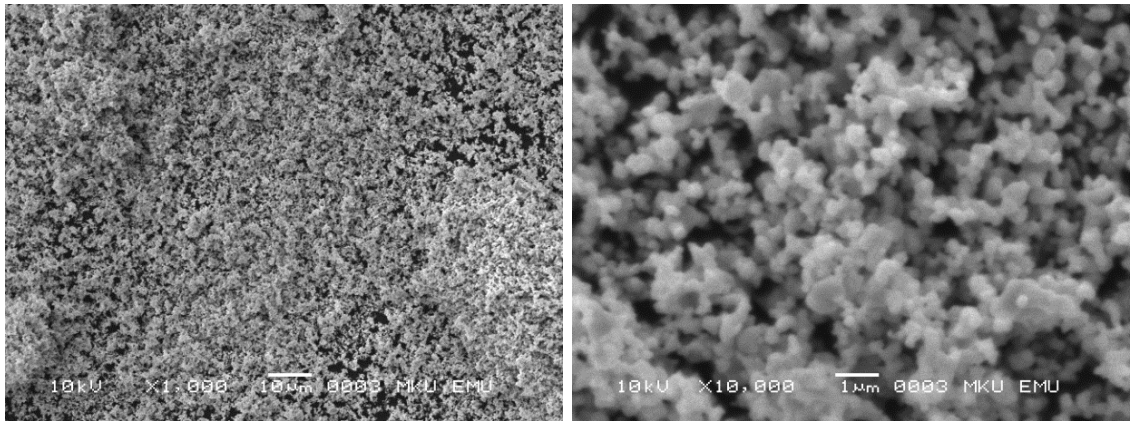
Şekil 4.81. $\text{Ba}_{1-x}\text{Pr}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve Pr_6O_{11} bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı



$\text{Ba}_{0.995}\text{Pr}_{0.005}\text{TiO}_3$

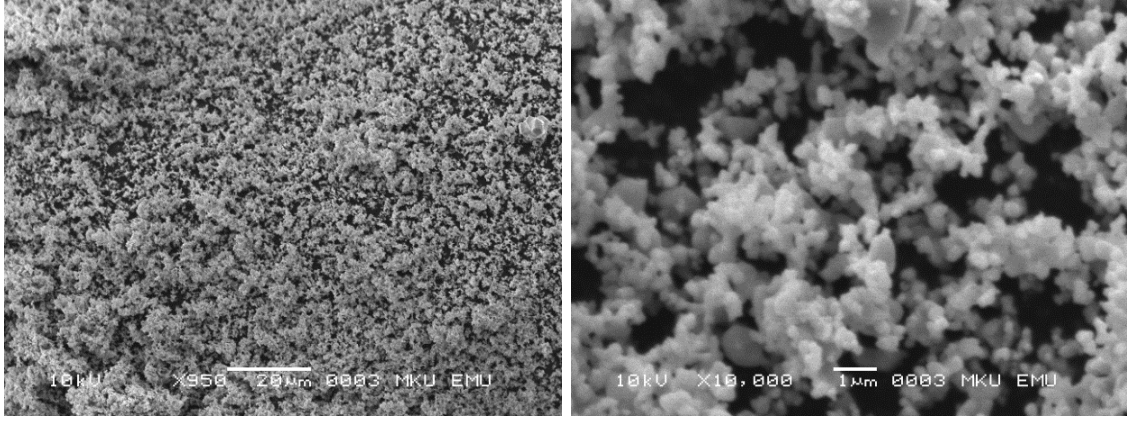


$\text{Ba}_{0.99}\text{Pr}_{0.01}\text{TiO}_3$

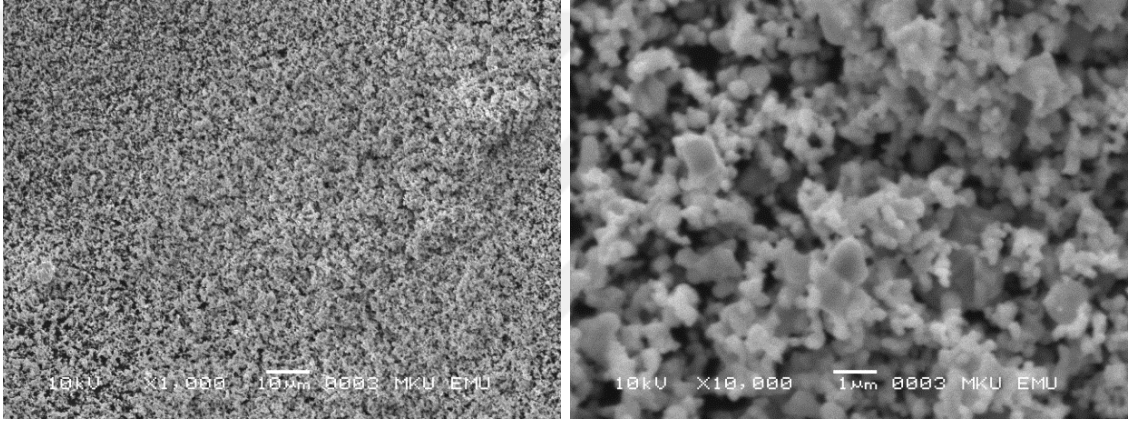


$\text{Ba}_{0.975}\text{Pr}_{0.025}\text{TiO}_3$

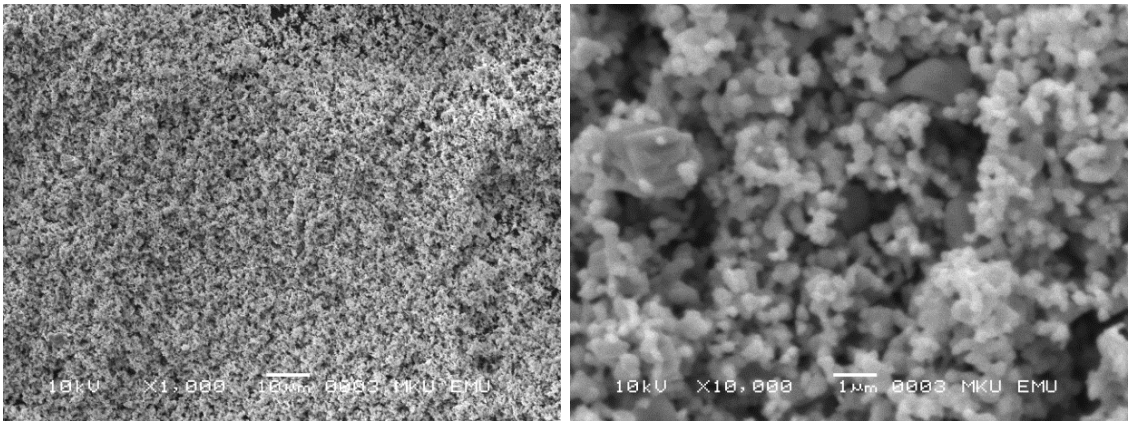
Şekil 4.82. $\text{Ba}_{1-x}\text{Pr}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ait SEM görüntüleri



$\text{Ba}_{0,95}\text{Pr}_{0,05}\text{TiO}_3$

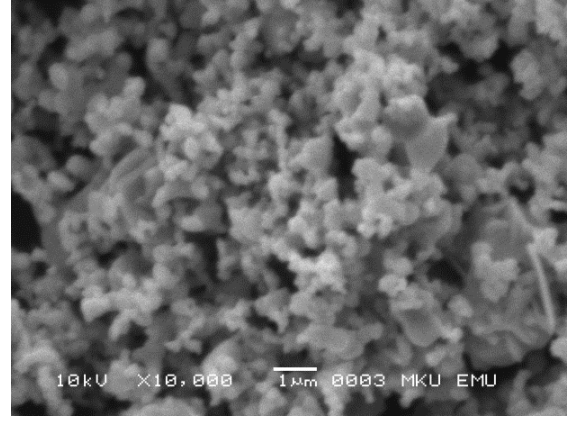
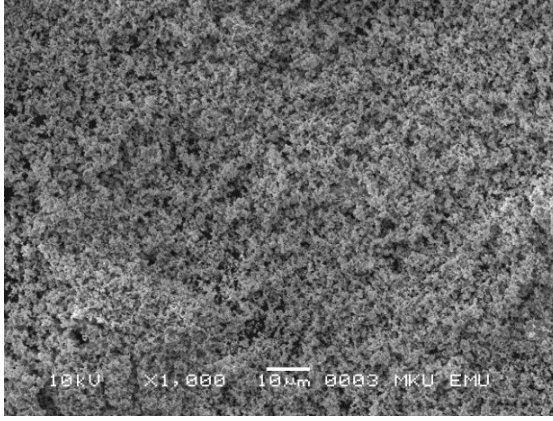


$\text{Ba}_{0,925}\text{Pr}_{0,075}\text{TiO}_3$

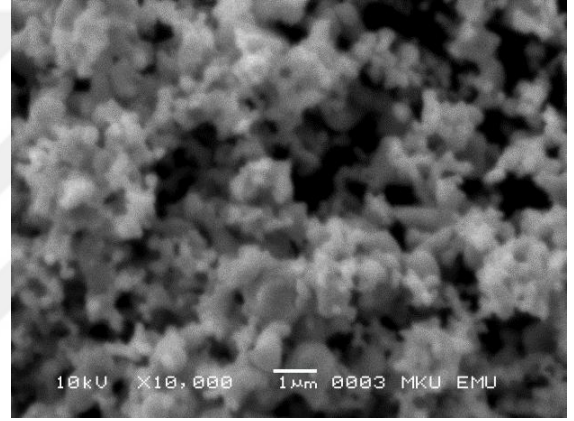
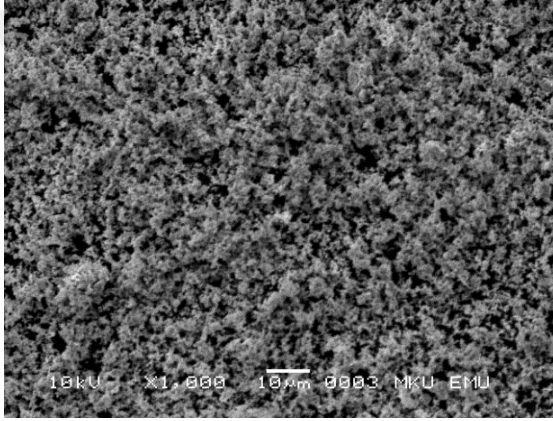


$\text{Ba}_{0,90}\text{Pr}_{0,10}\text{TiO}_3$

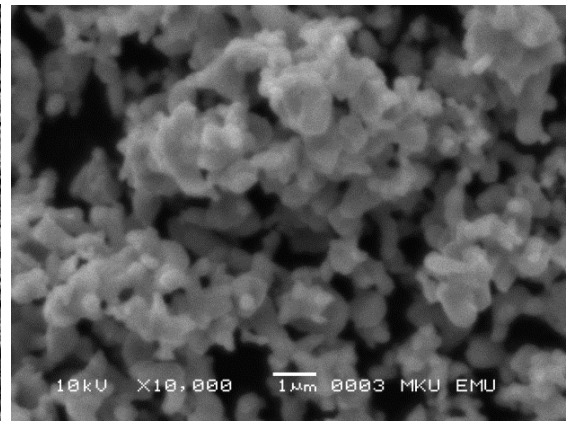
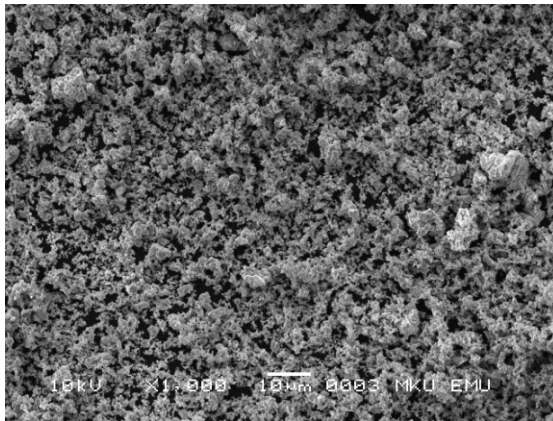
Şekil 4.82. (Devam) $\text{Ba}_{1-x}\text{Pr}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



$\text{Ba}_{0,875}\text{Pr}_{0,125}\text{TiO}_3$

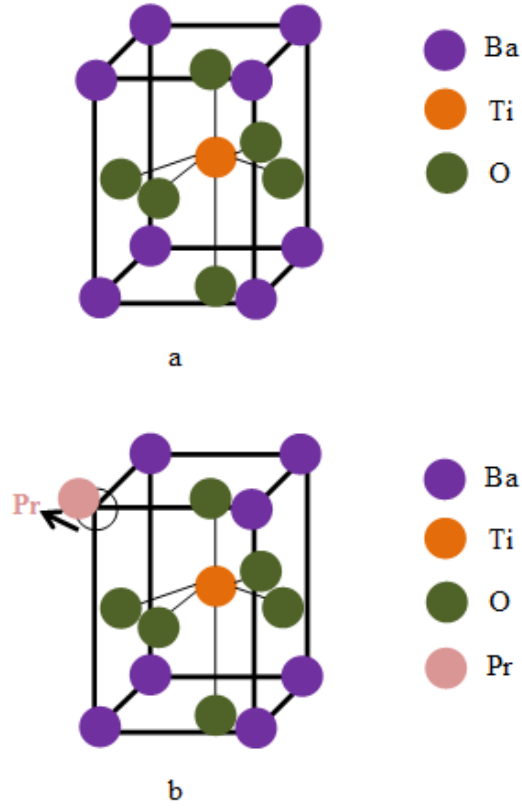


$\text{Ba}_{0,75}\text{Pr}_{0,25}\text{TiO}_3$



$\text{Ba}_{0,50}\text{Pr}_{0,50}\text{TiO}_3$

Şekil 4.82. (Devam) $\text{Ba}_{1-x}\text{Pr}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ait SEM görüntüleri



Şekil 4.83. a) Tetragonal kristal yapı (BaTiO_3 seramiği kafes yapısı) b) Pr_6O_{11} katkılı BaTiO_3 seramiğinde Pr iyonu ile Ba iyonunun yer değişimi

Baryum titanata praseodimiyumun katı hal sentez yöntemiyle katkılanması sonucu elde edilen seramik yapılarda tetragonal yapı fazı ile kübik yapı fazının hakim olduğu görülmektedir. Düşük Pr katkısıyla (0,005 – 0,025 mol) oluşan seramik yapılarda baryum titanatın kristal yapı fazının bozulmadığı yapı da tetragonal fazın hakim olduğu; yapıya katkılanan Pr miktarının artışıyla kristal yapının praseodimiyumun kristal yapısına (kübik yapı fazı) dönüştüğü tespit edilmiştir. Zhou ve arkadaşlarının literatürde yer alan bir çalışmada baryum titanat seramiğine farklı mol oranlarında kobalt ve niyobyum iyonları katkılanmıştır. Elde edilen sonuçlar incelendiğinde baryum titanata Pr katkısında olduğu gibi katkılanan iyonun mol miktarına bağlı olarak kristal yapının değiştiği (ortorombik-tetragonal faz) görülmektedir (Zhou ve ark., 2014).

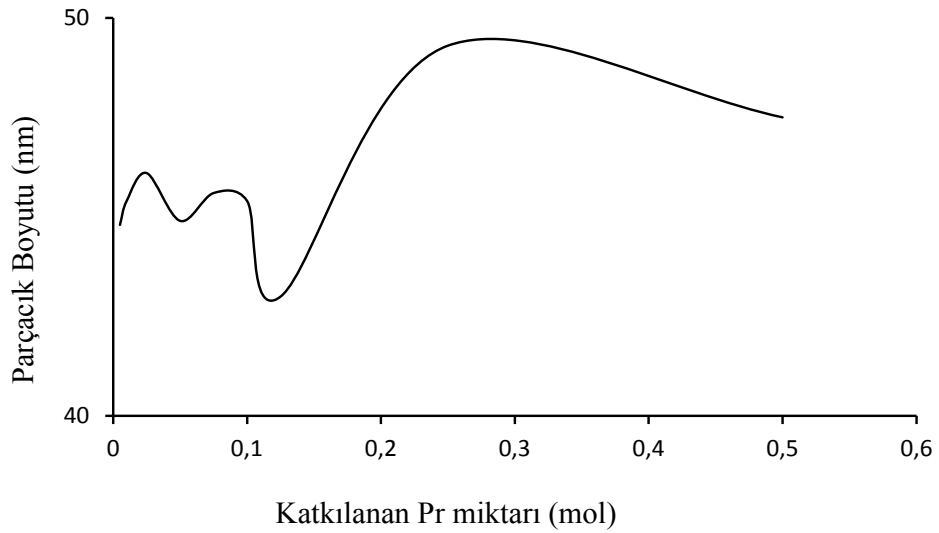
Farklı mol oranlarında Pr katkılanan BaTiO_3 seramiklerinin her bir katkılama sonucunda elde edilen yapılarının XRD kırınım desenlerinden yararlanılarak ortalama tanecik boyutları Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ve Çizelge 4.13’de verilmiştir.

$$D = \frac{0,9 \lambda}{\beta \cos \theta} \quad \lambda = 1,5400 \text{Å} \quad (4.14)$$

Çizelge 4.13. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları

Örnek	Ortalama Tanecik Boyutu (nm)
Ba _{0,995} Pr _{0,005} TiO ₃	44,8
Ba _{0,99} Pr _{0,01} TiO ₃	45,4
Ba _{0,975} Pr _{0,025} TiO ₃	46,1
Ba _{0,95} Pr _{0,05} TiO ₃	44,9
Ba _{0,925} Pr _{0,075} TiO ₃	45,6
Ba _{0,90} Pr _{0,10} TiO ₃	45,4
Ba _{0,875} Pr _{0,125} TiO ₃	43,0
Ba _{0,75} Pr _{0,25} TiO ₃	49,3
Ba _{0,50} Pr _{0,50} TiO ₃	47,5

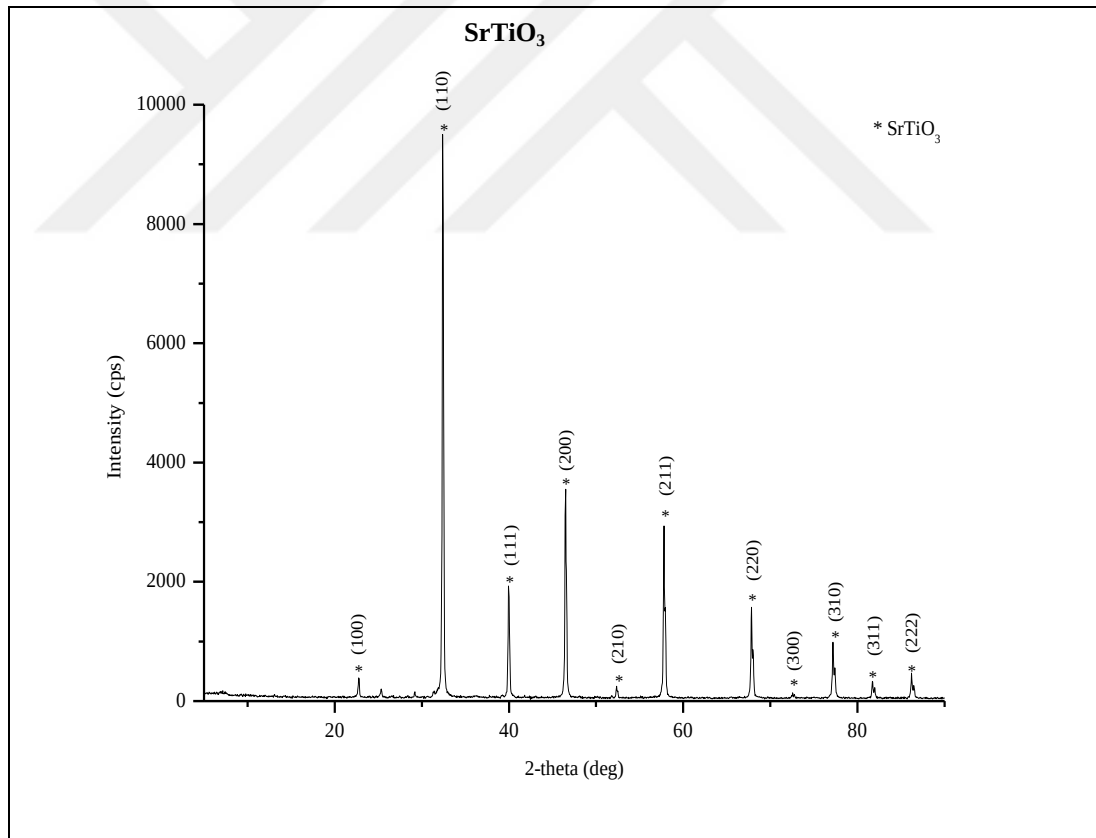
Tablodan görüldüğü gibi tanecik boyutları 43,0 – 49,3 nm aralığında değişen değerler almaktadır. Katkılama miktarına bağlı olarak ortalama tanecik boyutundaki değişim Şekil 4.84’deki grafikte gösterilmiştir.



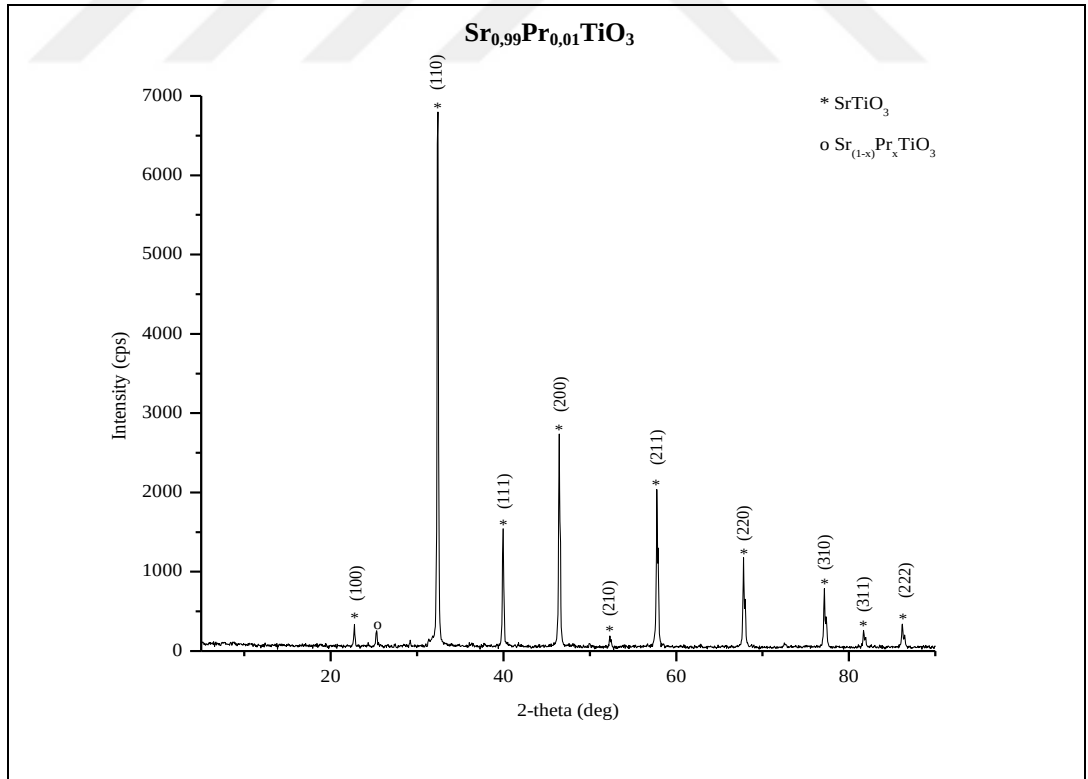
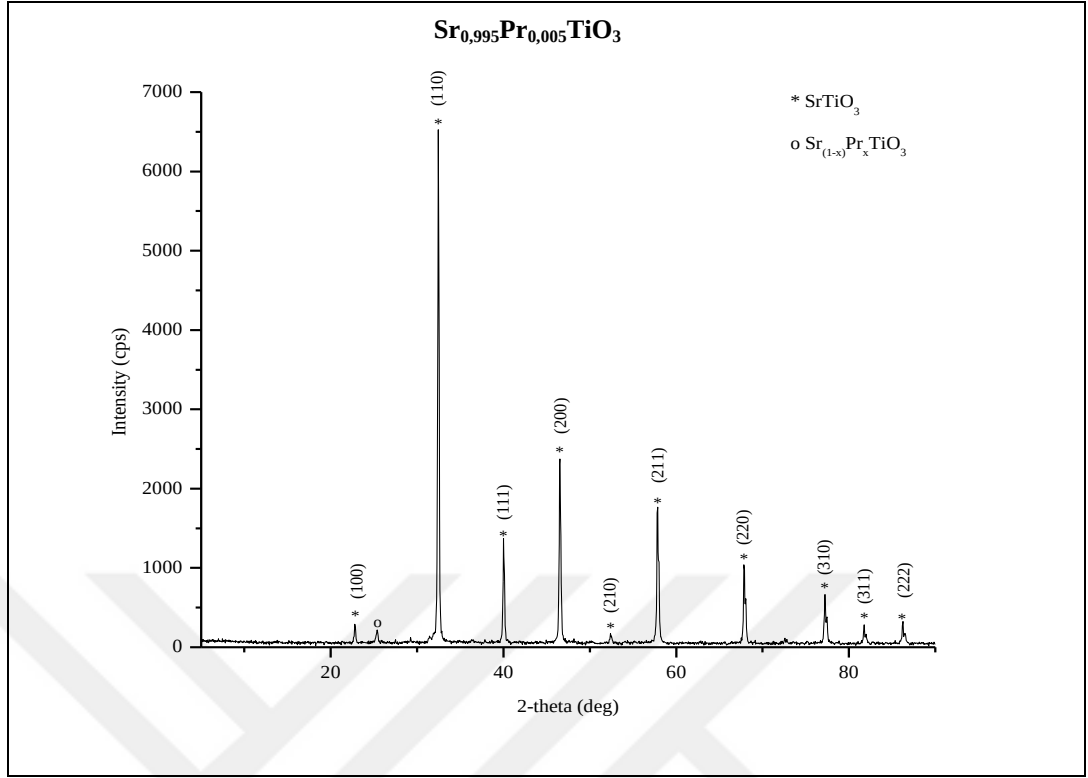
Şekil 4.84. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi

Baryum titanata praseodimiyum katkılancđında yeni oluřan seramik yapılarđa o yapıya ait karakteristik pikler g r lmekle birlikte baryum titanata ait karakteristik piklerin řiddetinde azalma meydana gelmiřtir. Katkı miktarı artık a yapının kristal fazı tetragonal yapı fazından k bik yapı fazına d n řm řt r. Yapıyı oluřturan taneciklerin ortalama b y kl ğ nde katkı miktarıyla birlikte  ok b y k deėiřiklik olmadıėı 43,0 – 49,3 nm aralıėında deėiřtiėi tespit edilmiřtir (Zhou ve ark., 2014).

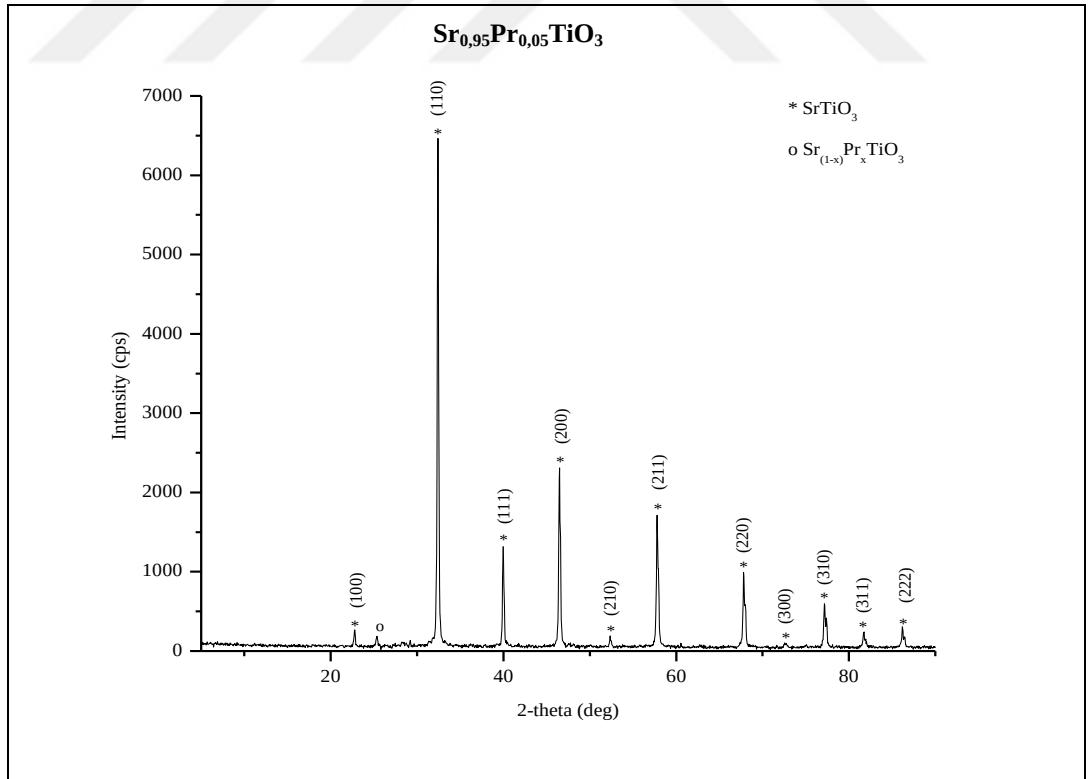
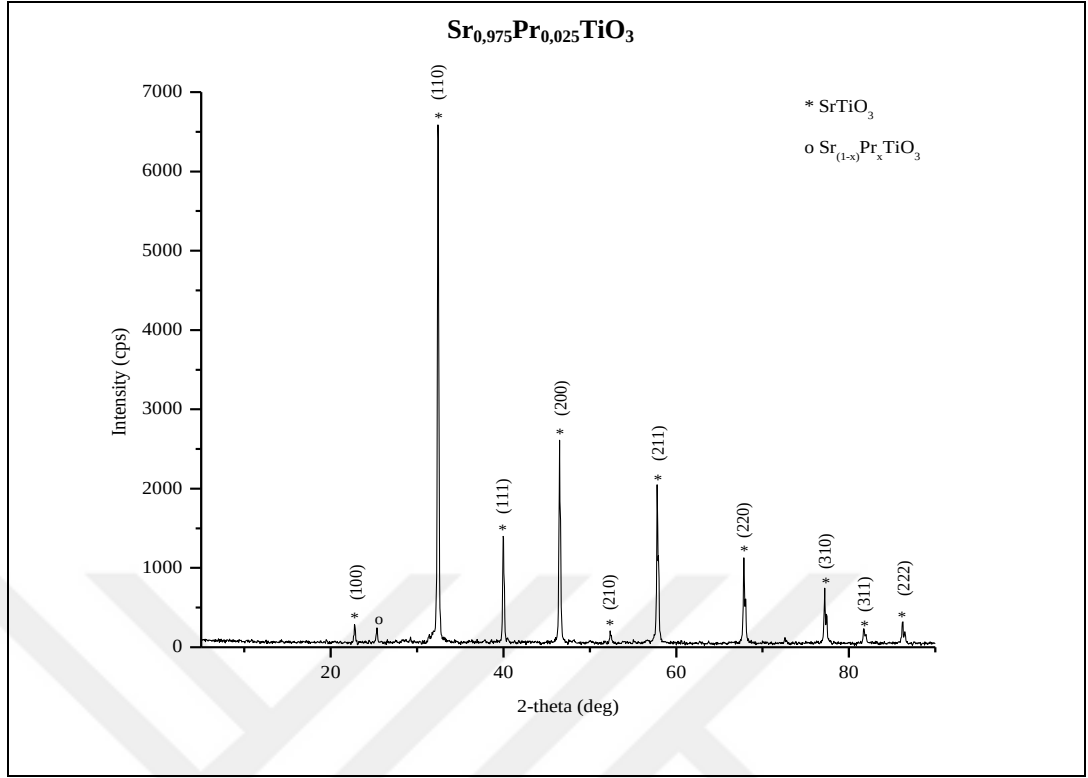
- Praseodimiyum katkılı stronsiyum titanatın katı hal sentez y ntemiyle elde ediliři: Katı hal sentez y ntemi ile farklı mol oranlarında $Sr_{1-x}Pr_xTiO_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) katkılı seramik tozları b l m 3.2.3.5’de anlatıldıėı gibi sentezlenmiř ve kalsine edilmiřtir. Elde edilen seramik tozların ve katkılanan Pr_6O_{11} katkı maddesinin $5^\circ \leq 2\theta \leq 90^\circ$ aralıėında ki X-ıřını kırınım desenleri řekil 4.85 ve řekil 4.86’da; SEM g r nt leri ise řekil 4.87’de verilmiřtir.



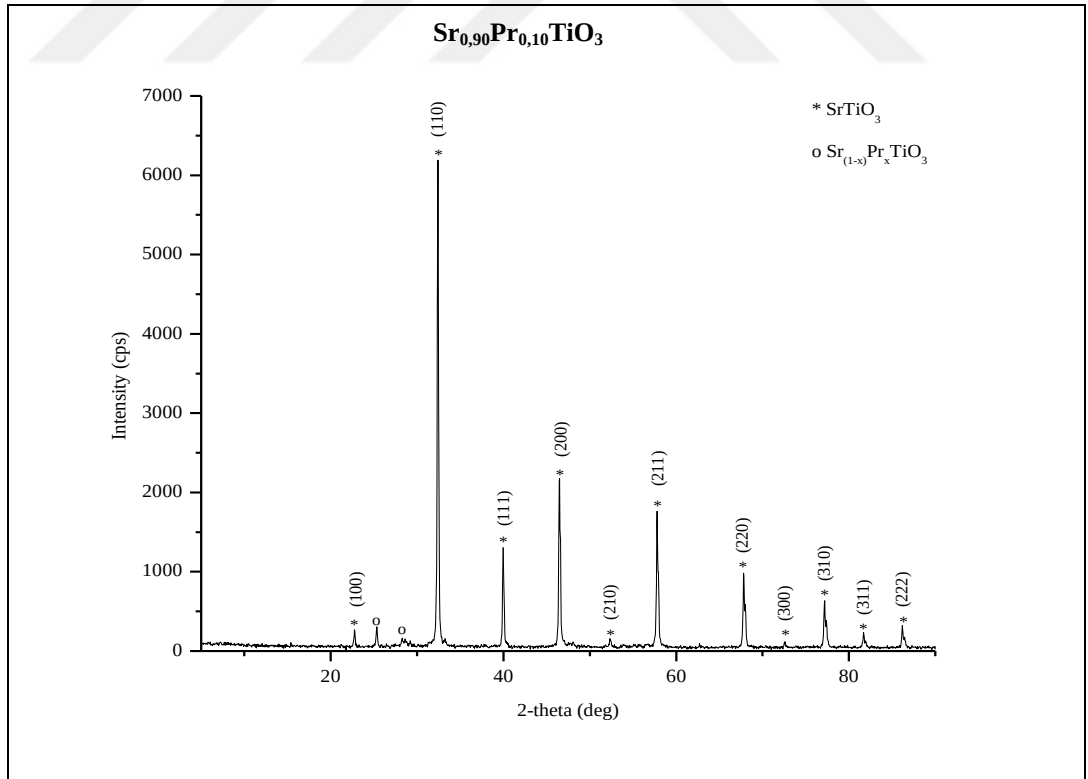
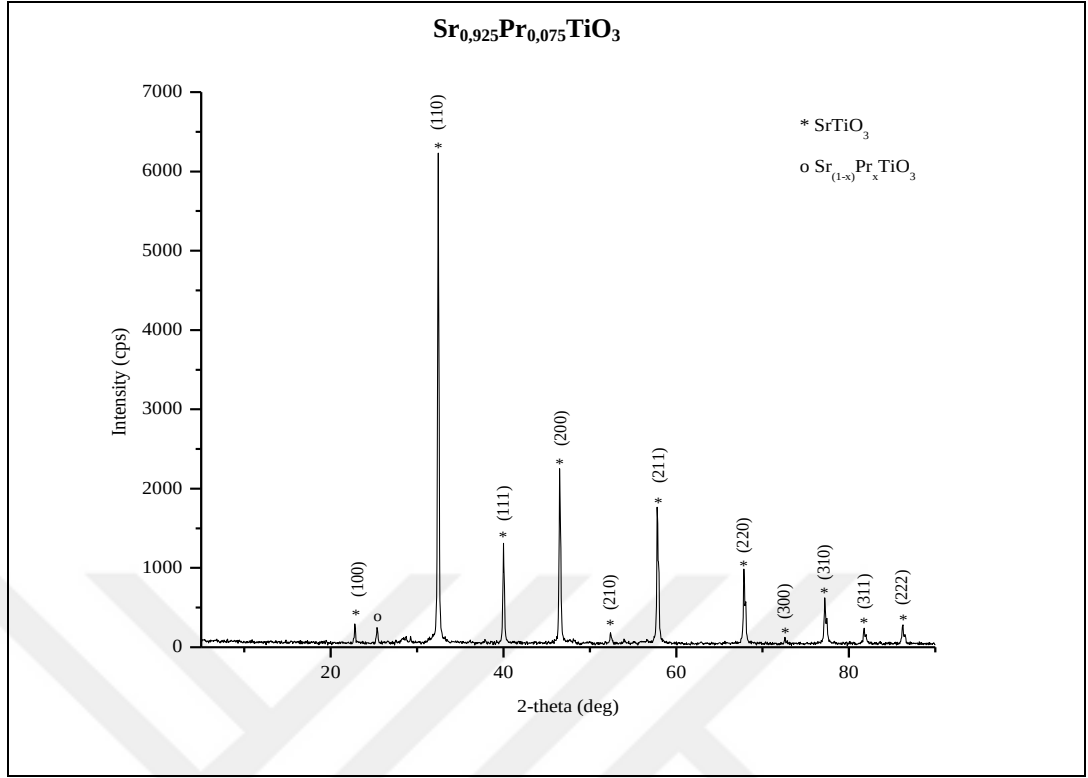
řekil 4.85. $Sr_{1-x}Pr_xTiO_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarđa ve Pr_6O_{11} bileřiėine ait XRD diyagramları



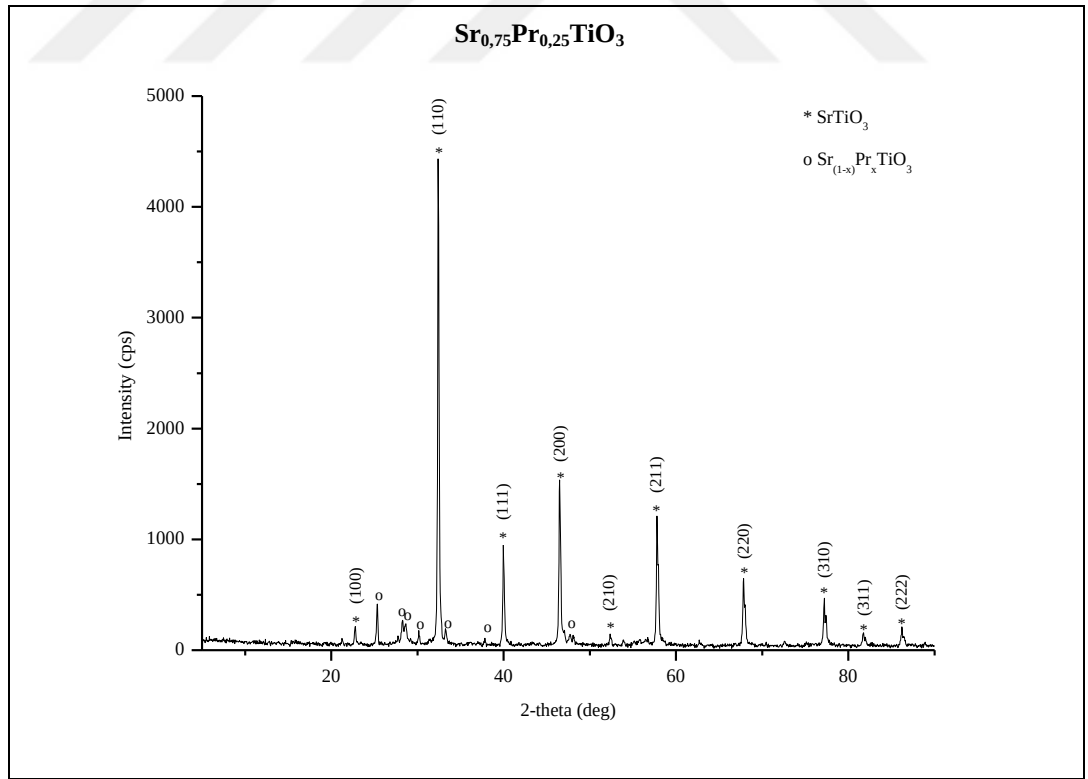
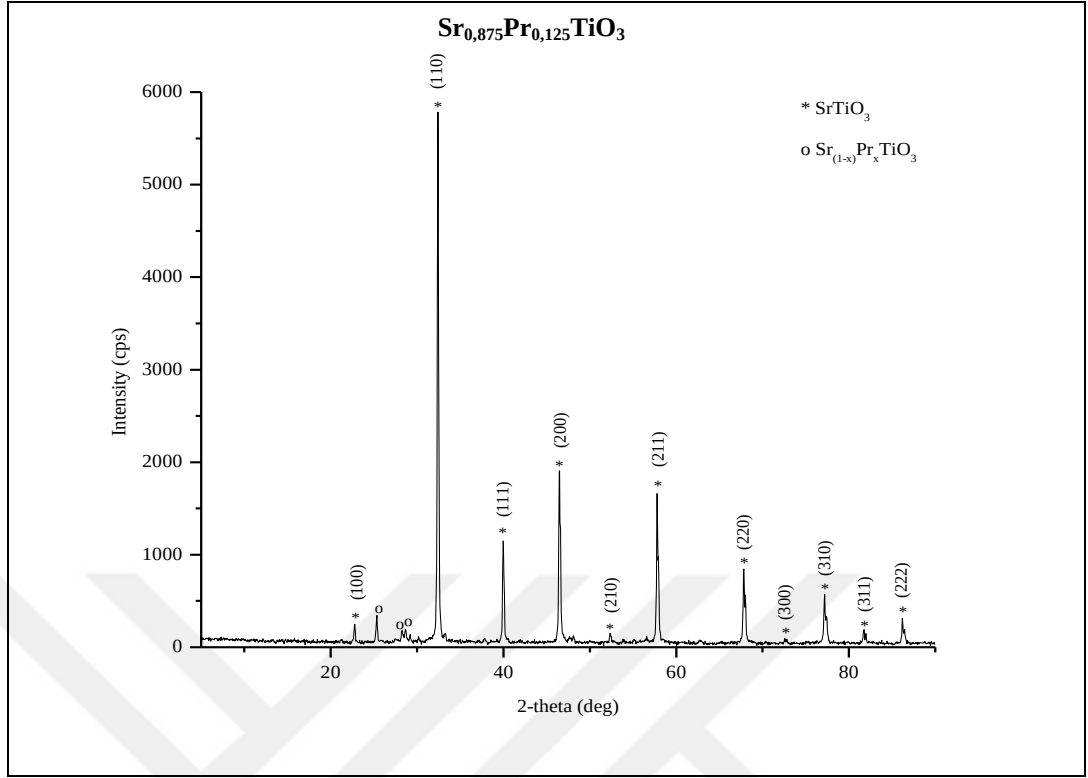
Şekil 4.85. (Devam) $\text{Sr}_{1-x}\text{Pr}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Pr_6O_{11} bileşiğine ait XRD diyagramları



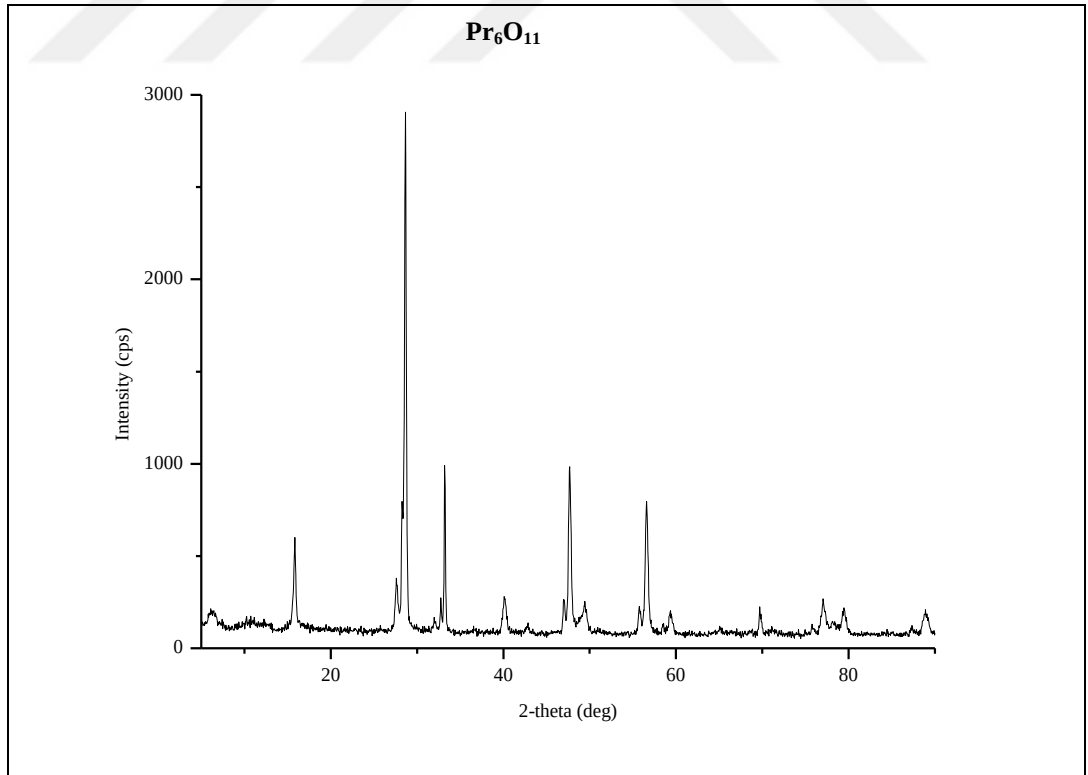
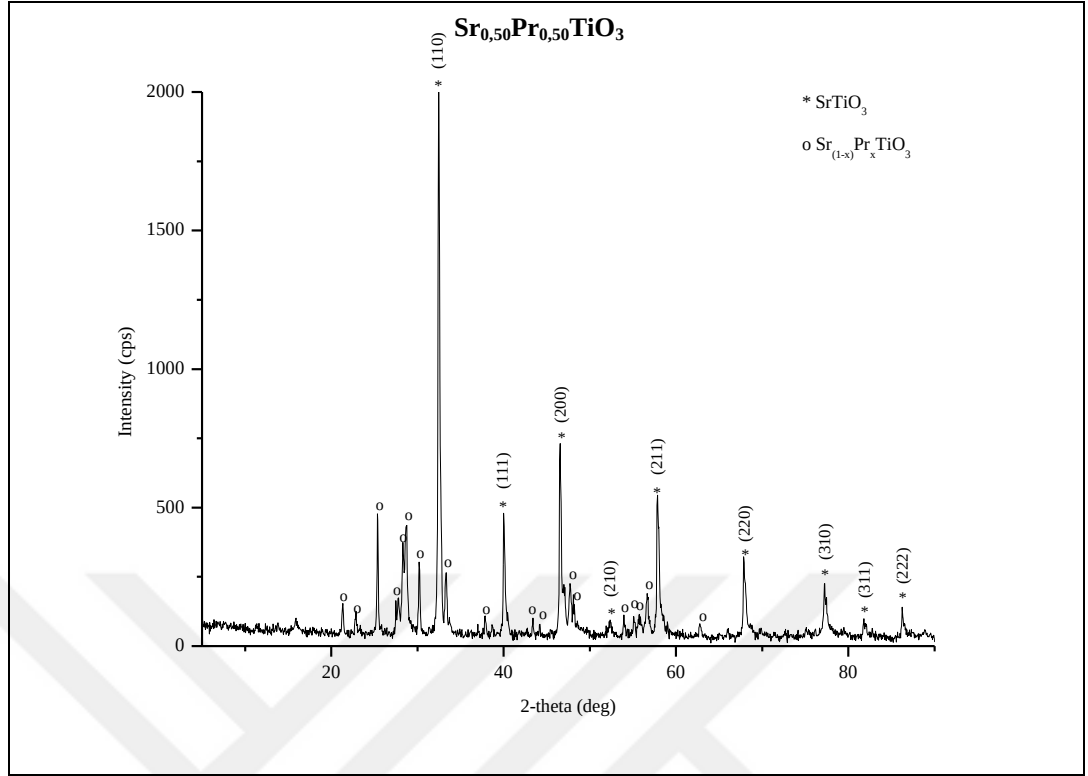
Şekil 4.85. (Devam) Sr_{1-x}Pr_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Pr₆O₁₁ bileşiğine ait XRD diyagramları



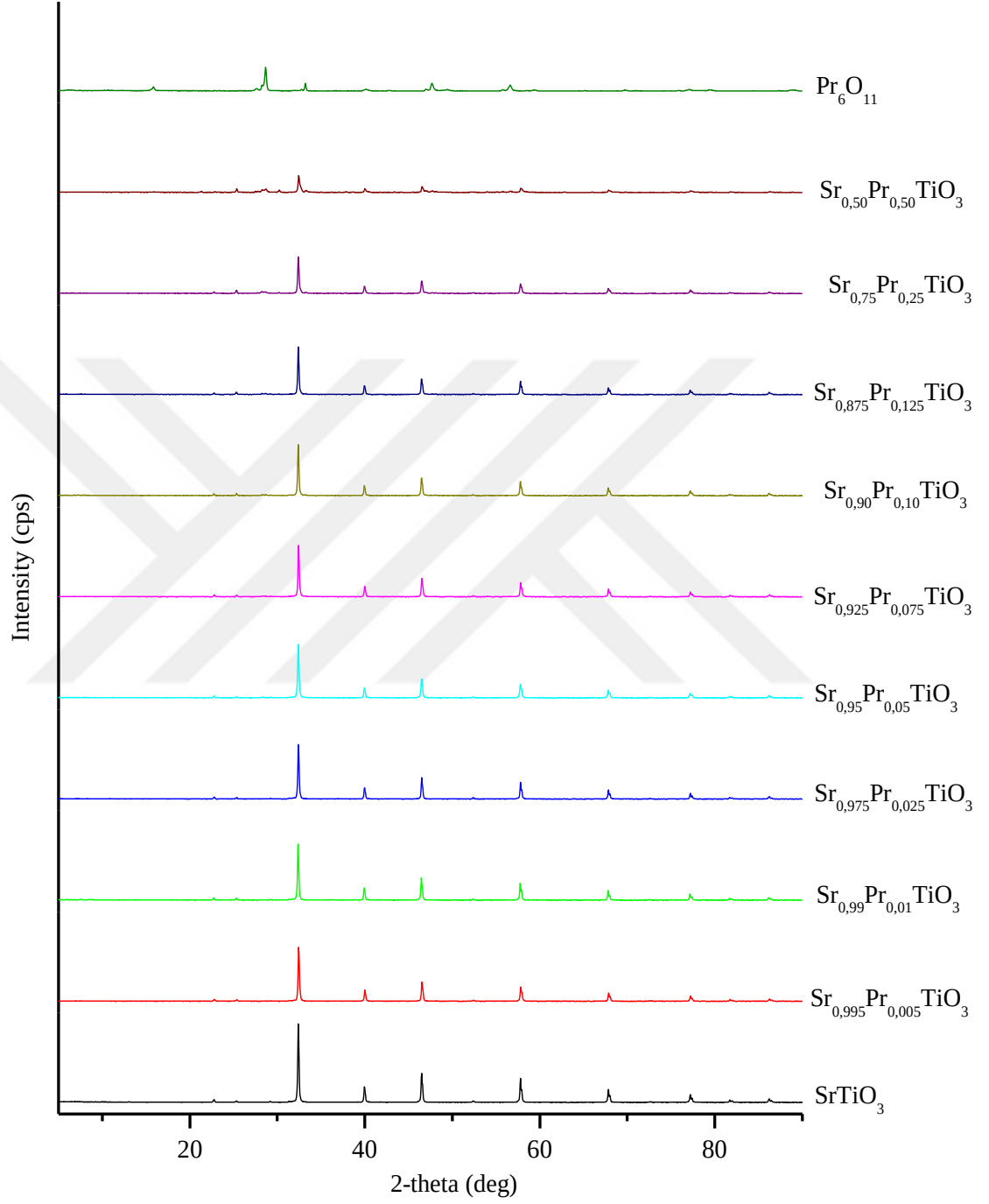
Şekil 4.85. (Devam) $\text{Sr}_{1-x}\text{Pr}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Pr_6O_{11} bileşiğine ait XRD diyagramları



Şekil 4.85. (Devam) Sr_{1-x}Pr_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Pr₆O₁₁ bileşiğine ait XRD diyagramları

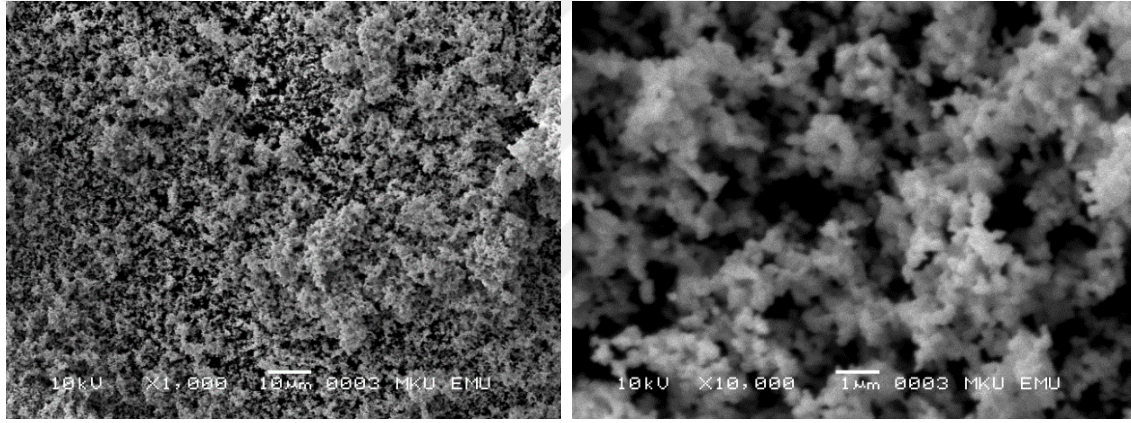


Şekil 4.85. (Devam) Sr_{1-x}Pr_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Pr₆O₁₁ bileşiğine ait XRD diyagramları

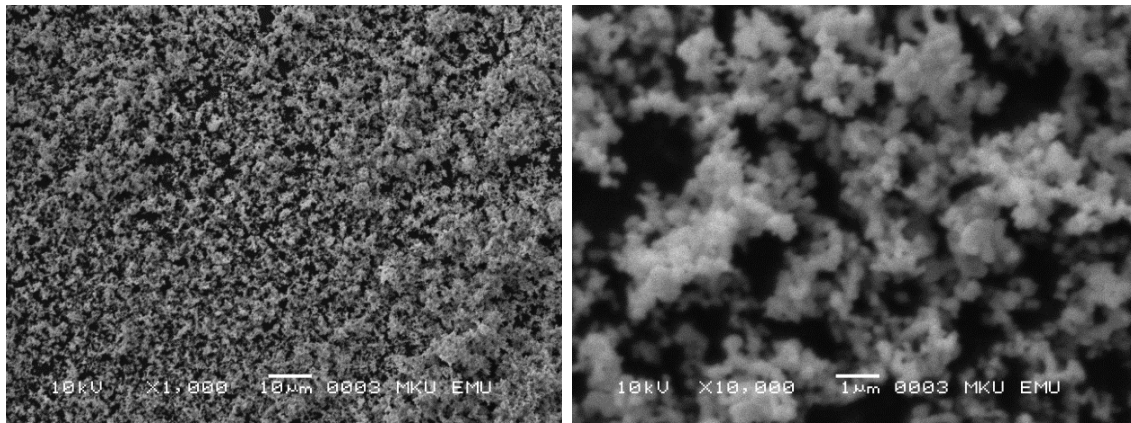


Şekil 4.86. $\text{Sr}_{1-x}\text{Pr}_x\text{TiO}_3$ (x : 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Pr_6O_{11} bileşiğine ait çoklu XRD diyagramı

Stronsiyum titanata 0,005 mol praseodimiyum katkıldığında yapıya ait olan karakteristik pikin dışında 25° açı değerinde yeni oluşan seramik yapıya ait karakteristik bir pik ortaya çıkmıştır. Yapıya katkılanan praseodimiyum miktarı 0,01 mol iken stronsiyum titanata ait olan 32° açı değerindeki karakteristik pikin şiddetinde ve 25° açı değerindeki karakteristik pikin şiddetinde artış görülmüştür. Praseodimiyum katkı miktarı arttırıldığında 25° açı değerindeki pik iki ayrı pik haline dönüşmüş, oluşan seramik yapıya ait karakteristik piklerin (25°, 28°, 33°, 47°) sayısı ve şiddeti artarken stronsiyuma ait karakteristik pikin şiddetinde azalma meydana gelmiştir. Piklerde meydana gelen bu değişimler SrTiO_3 yapısının praseodimiyum tarafından bozulduğunu ve yeni bir kristal yapının oluştuğunu göstermektedir.

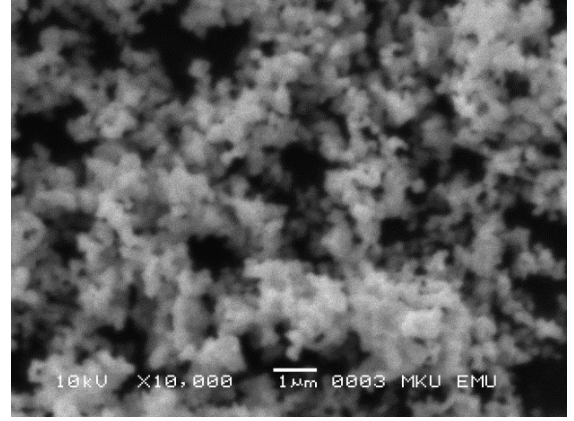
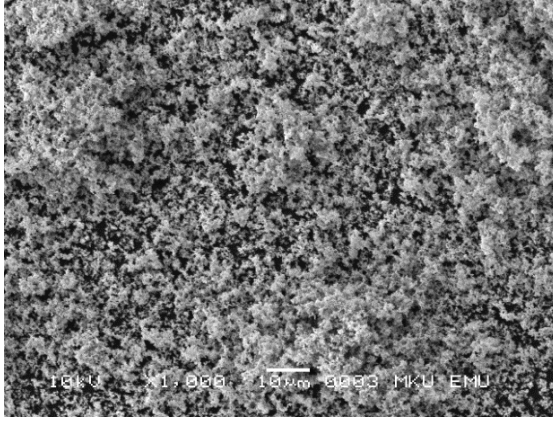


$\text{Sr}_{0,995}\text{Pr}_{0,005}\text{TiO}_3$

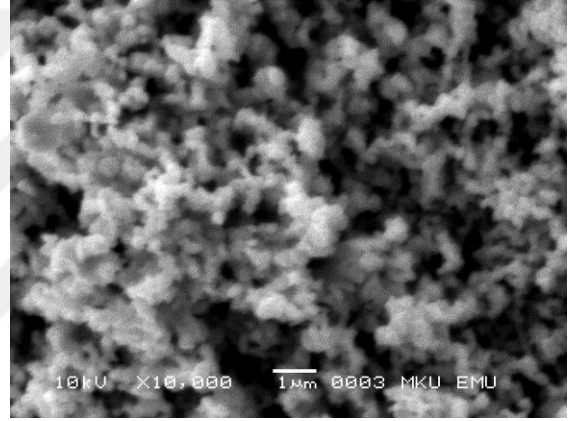
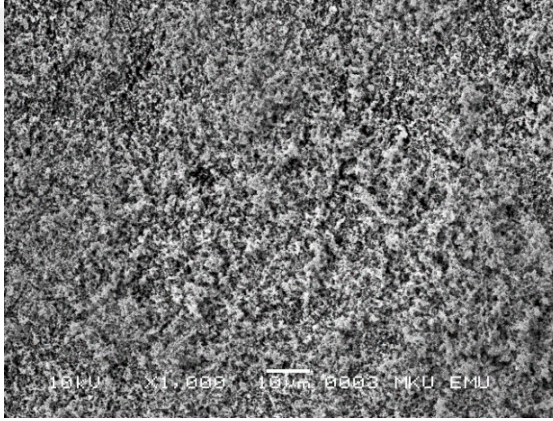


$\text{Sr}_{0,99}\text{Pr}_{0,01}\text{TiO}_3$

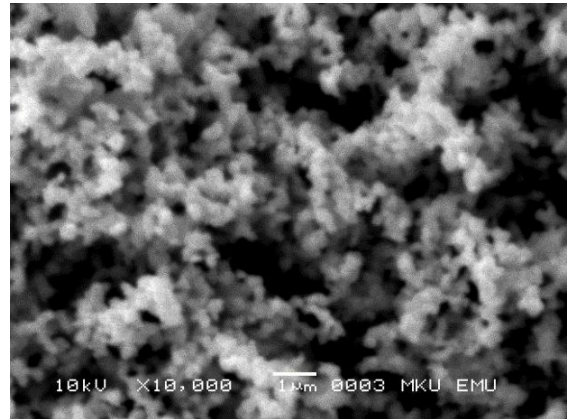
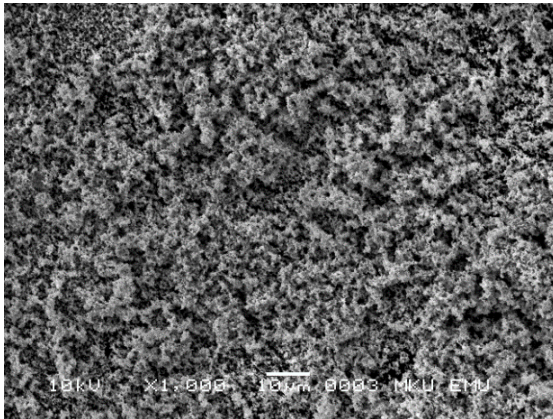
Şekil 4.87. $\text{Sr}_{1-x}\text{Pr}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



$\text{Sr}_{0,975}\text{Pr}_{0,025}\text{TiO}_3$

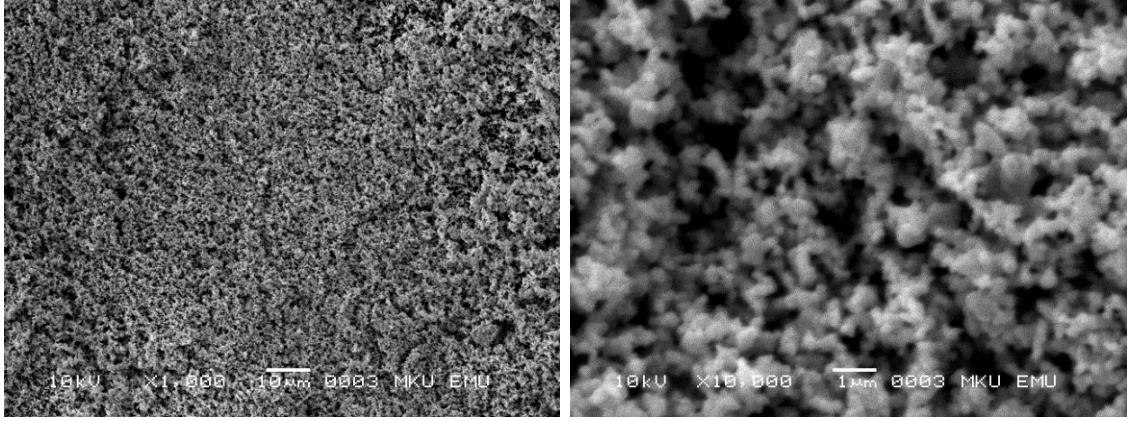


$\text{Sr}_{0,95}\text{Pr}_{0,05}\text{TiO}_3$

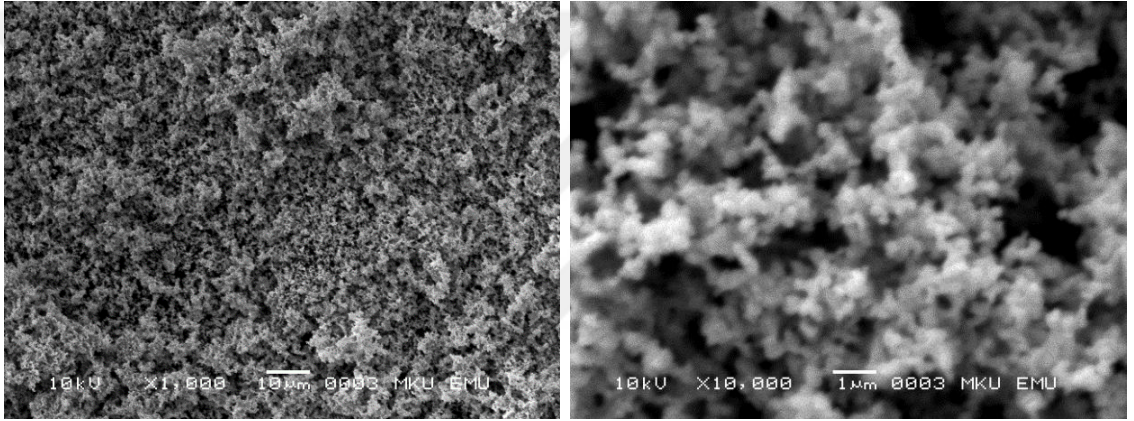


$\text{Sr}_{0,925}\text{Pr}_{0,075}\text{TiO}_3$

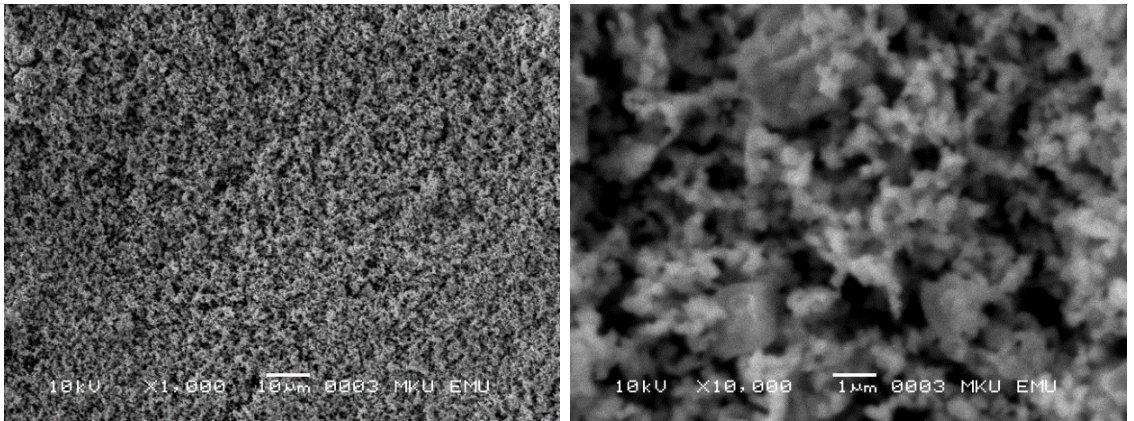
Şekil 4.87. (Devam) $\text{Sr}_{1-x}\text{Pr}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



$\text{Sr}_{0,90}\text{Pr}_{0,10}\text{TiO}_3$

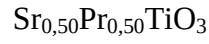
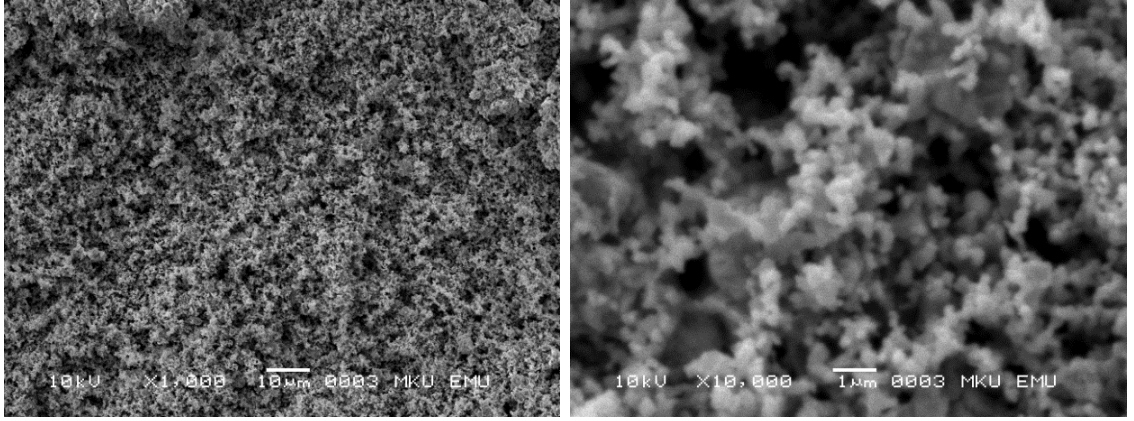


$\text{Sr}_{0,875}\text{Pr}_{0,125}\text{TiO}_3$



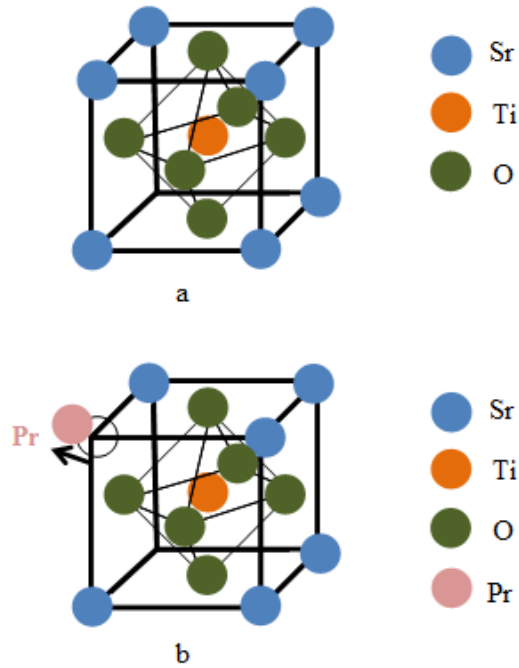
$\text{Sr}_{0,75}\text{Pr}_{0,25}\text{TiO}_3$

Şekil 4.87. (Devam) $\text{Sr}_{1-x}\text{Pr}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



Şekil 4.87. (Devam) $\text{Sr}_{1-x}\text{Pr}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri

Elde edilen numunelerin SEM görüntüleri incelendiğinde kristal yapıyı oluşturan taneciklerin yapı içerisinde homojen bir dağılım gösterdiği, tanecik büyüklüklerinin katkı miktarına bağlı olmaksızın değişim gösterdiği ve kristal yapının katkılamayla değişmediği görülmektedir.



Şekil 4.88. a) Kübik kristal yapı (SrTiO_3 seramiği kafes yapısı) b) Pr_6O_{11} katkılı SrTiO_3 seramiğinde Pr iyonu ile Sr iyonunun yer değişimi

Katı hal sentez yöntemi kullanılarak elde edilen farklı mol oranlarında praseodimiyum katkılı stronsiyum titanat örneklerinde kübik kristal yapı hakimdir. Stronsiyum titanat ve katkılanan Pr_6O_{11} bileşiği kübik kristal yapıya sahip olduğu için katkılanmayla birlikte kristal yapıda değişim olmamıştır.

Literatüre bakıldığında Singh ve arkadaşları stronsiyum titanata farklı mol oranlarında lantan iyonunu katı hal sentez yöntemini kullanarak katkılanmışlar ve lantan iyonunun yapıda Pr iyonu gibi stronsiyum iyonu ile yer değiştirdiğini; yeni oluşan yapıya kübik kristal yapı fazının hakim olduğunu ve XRD diyagramında yeni oluşan yapıya ait karakteristik piklerin oluştuğunu ifade etmişlerdir (Singh ve ark., 2017). Liu ve arkadaşları da farklı mol oranlarında praseodimiyum iyonunu stronsiyum titanata katkılanmışlar ve toz X-ışını kırınımı analizinin kübik yapı fazının varlığını kanıtladığını ifade etmişlerdir (Liu ve ark., 2010).

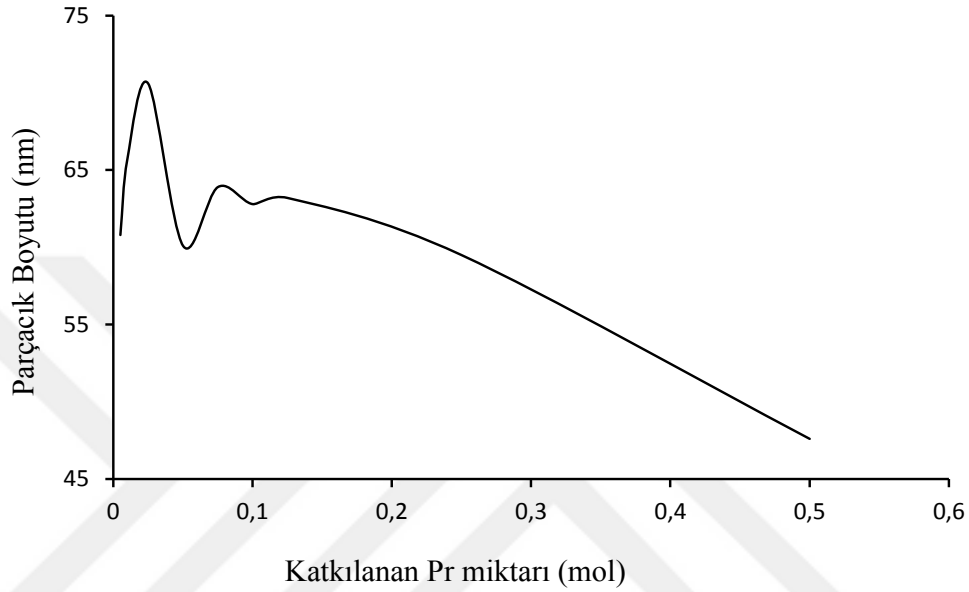
Farklı mol oranlarında praseodimiyum katkılanan SrTiO_3 seramiklerinin her bir katkılama sonucunda elde edilen yapılarının XRD kırınım desenlerinden yararlanılarak ortalama tanecik boyutları Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ve Çizelge 4.14’de verilmiştir.

$$D = \frac{0,9 \lambda}{\beta \cos \theta} \quad \lambda = 1,5400 \text{Å} \quad (4.15)$$

Çizelge 4.14. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları

Örnek	Ortalama Tanecik Boyutu (nm)
$\text{Sr}_{0,995}\text{Pr}_{0,005}\text{TiO}_3$	60,8
$\text{Sr}_{0,99}\text{Pr}_{0,01}\text{TiO}_3$	65,7
$\text{Sr}_{0,975}\text{Pr}_{0,025}\text{TiO}_3$	70,6
$\text{Sr}_{0,95}\text{Pr}_{0,05}\text{TiO}_3$	60,1
$\text{Sr}_{0,925}\text{Pr}_{0,075}\text{TiO}_3$	63,9
$\text{Sr}_{0,90}\text{Pr}_{0,10}\text{TiO}_3$	62,8
$\text{Sr}_{0,875}\text{Pr}_{0,125}\text{TiO}_3$	63,2
$\text{Sr}_{0,75}\text{Pr}_{0,25}\text{TiO}_3$	59,5
$\text{Sr}_{0,50}\text{Pr}_{0,50}\text{TiO}_3$	47,6

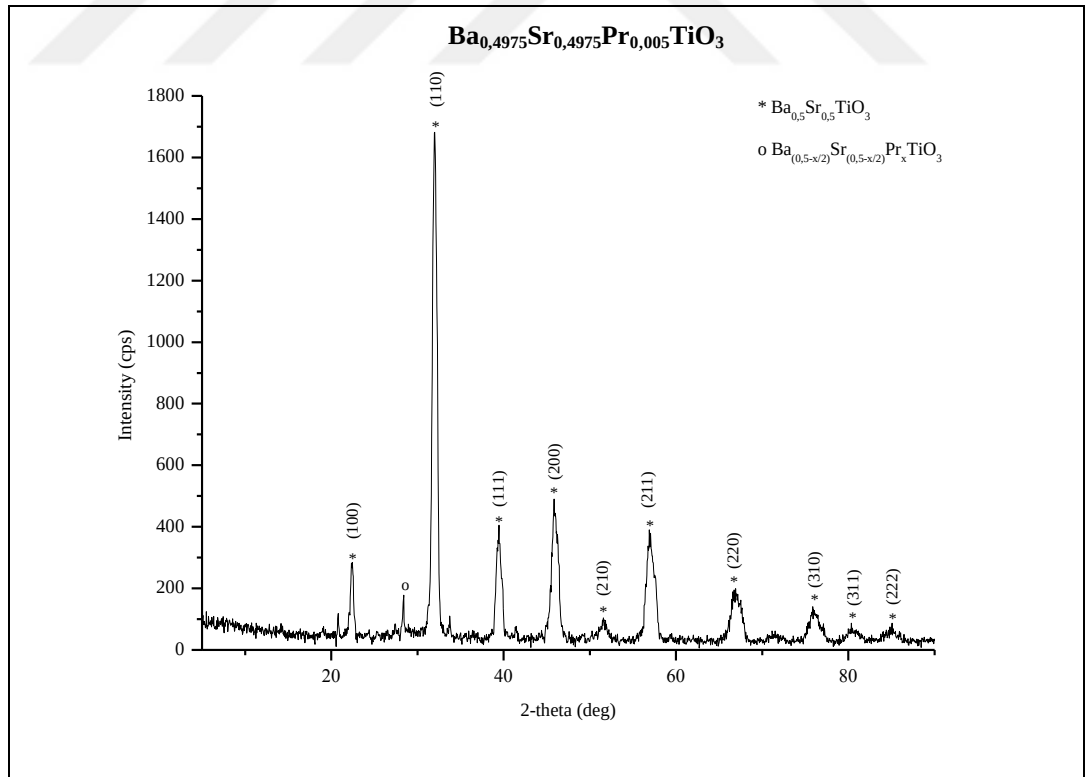
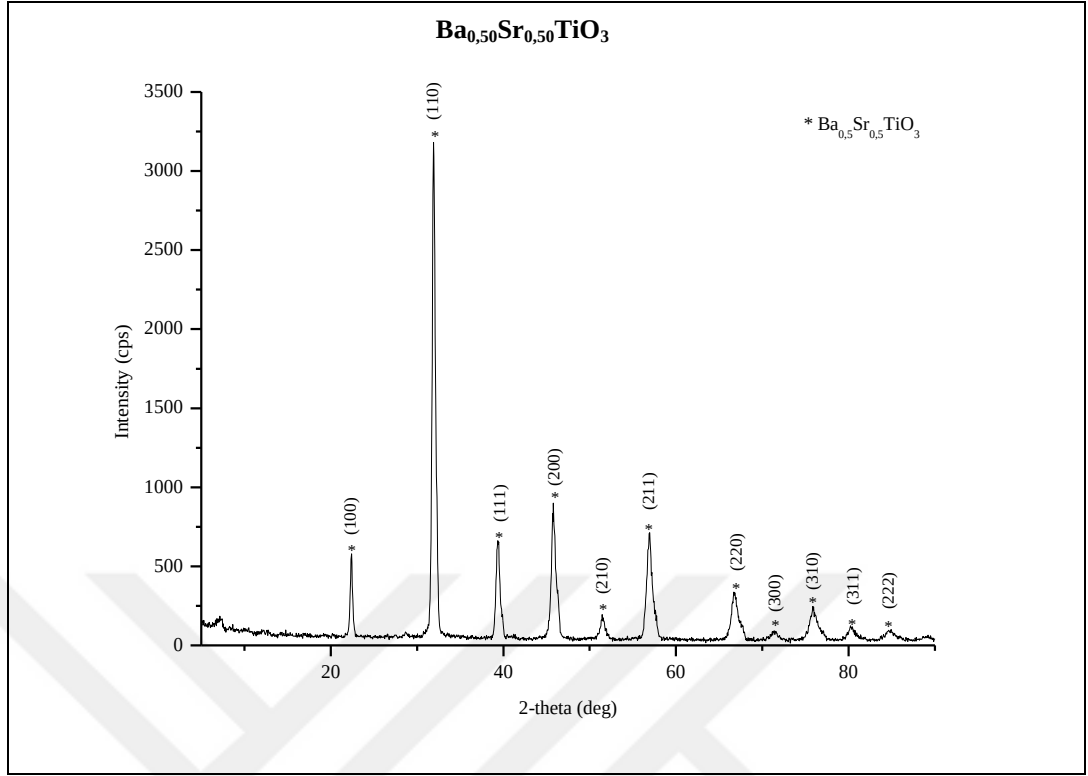
Tablodan görüldüğü gibi praseodimiyum katkı miktarının değişmesiyle kristal yapıyı oluşturan taneciklerin büyüklüğü 47,6–70,6 nm aralığında değişen değerler almıştır. Katkılama miktarına bağlı olarak ortalama tanecik boyutundaki değişim Şekil 4.89’deki grafikte gösterilmiştir.



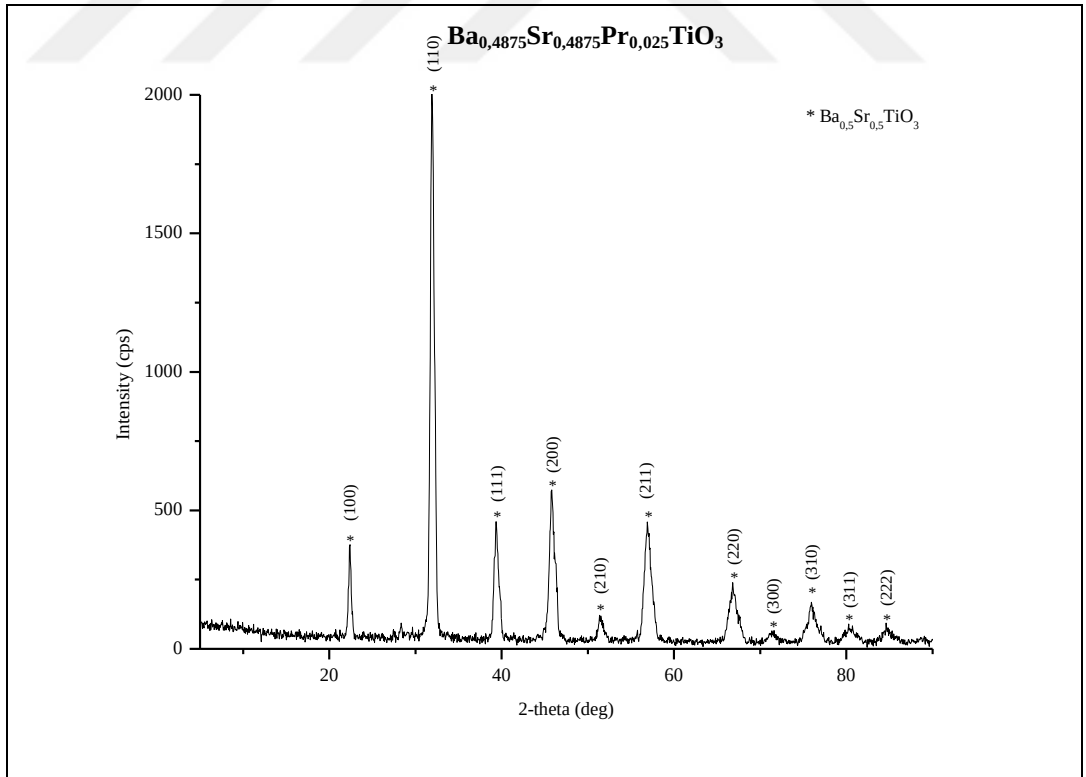
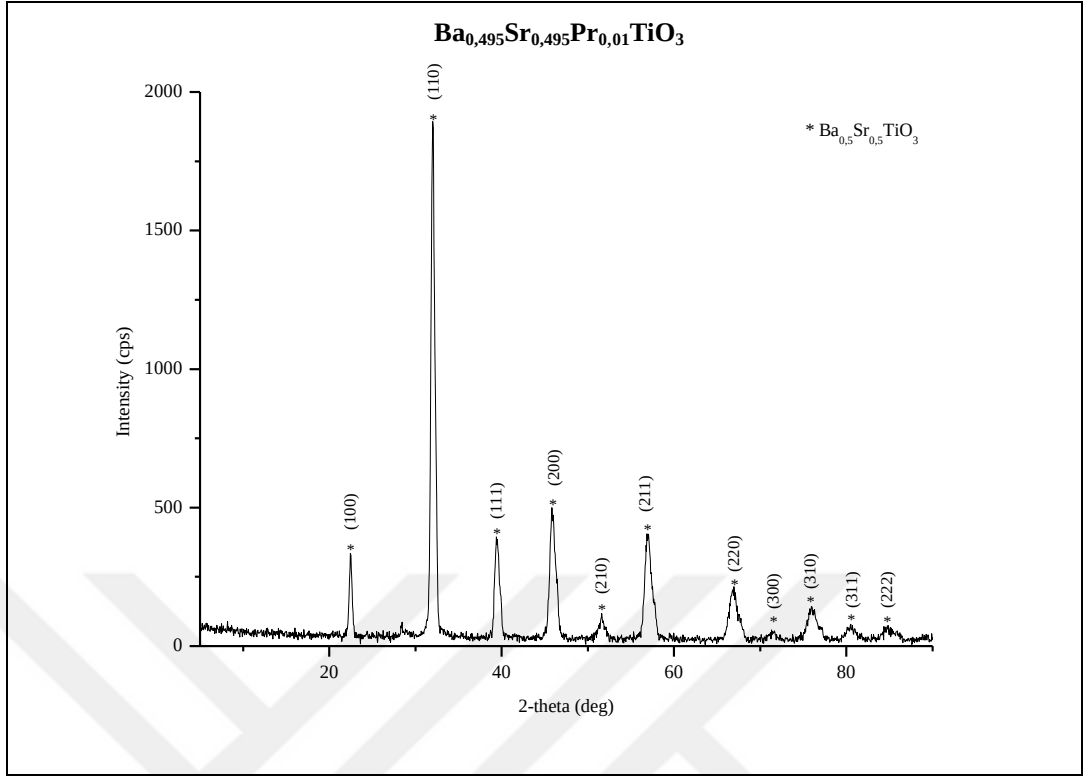
Şekil 4.89. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi

Stronsiyum titanata praseodimiyum iyonunun katkılanmasıyla elde edilen seramik yapılarda katkı miktarının artışıyla birlikte elde edilen seramik yapılara ait karakteristik pikler meydana gelmiş, stronsiyum titanata ait karakteristik piklerin şiddetinde ise azalma olduğu görülmüştür. Sentezlenen seramik yapılar kübik yapıya sahip olup ortalama tanecik boyutları 47,6–70,6 nm aralığında değişen değerler almıştır (Liu ve ark., 2010; Singh ve ark., 2017).

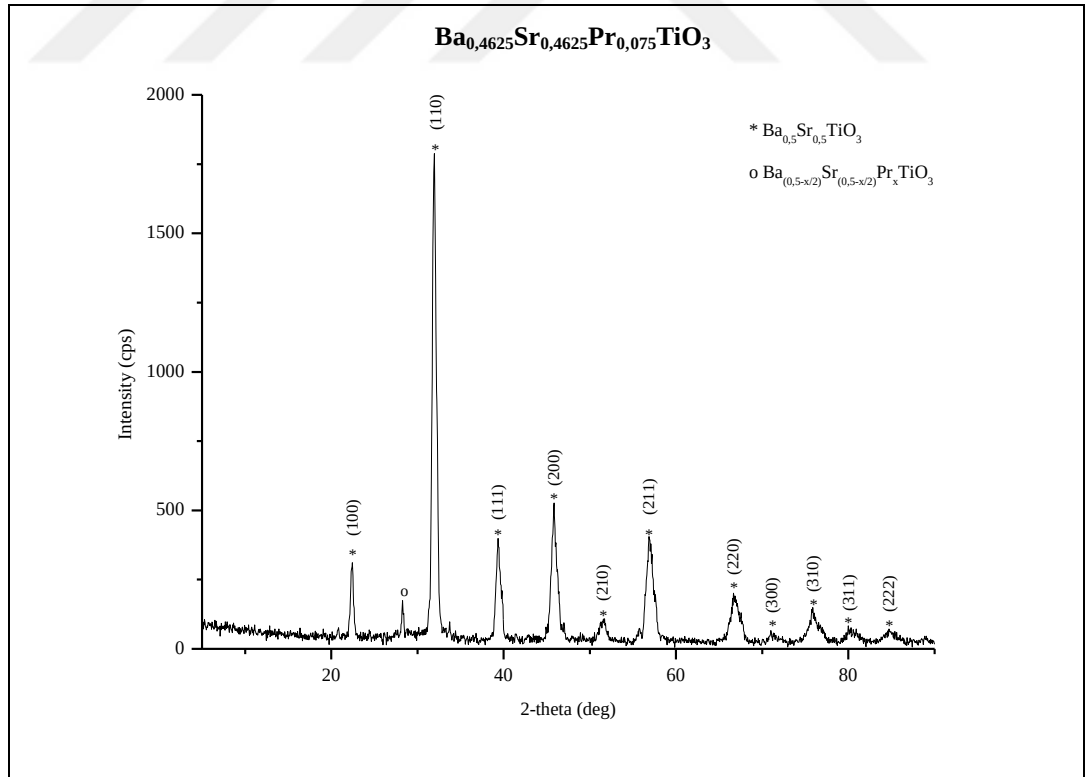
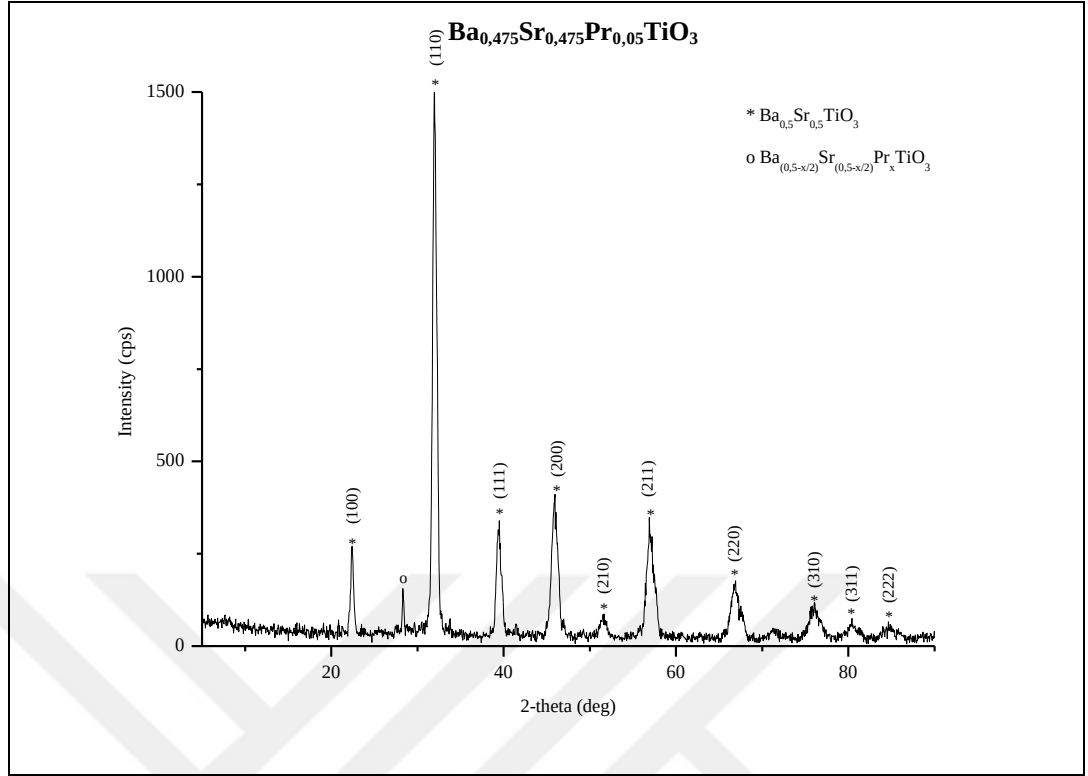
- Praseodimiyum katkılı baryum/stronsiyum titanatın katı hal sentez yöntemiyle elde edilişi: Katı hal sentez yöntemi ile farklı mol oranlarında $Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Pr_xTiO_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) katkılı seramik tozları bölüm 3.2.3.5’de anlatıldığı gibi sentezlenmiş ve kalsine edilmiştir. Elde edilen seramik tozların ve katkılanan Pr_6O_{11} katkı maddesinin $5^\circ \leq 2\theta \leq 90^\circ$ aralığında ki X-ışını kırınım desenleri Şekil 4.90 ve Şekil 4.91’de; SEM görüntüleri ise Şekil 4.92’de verilmiştir.



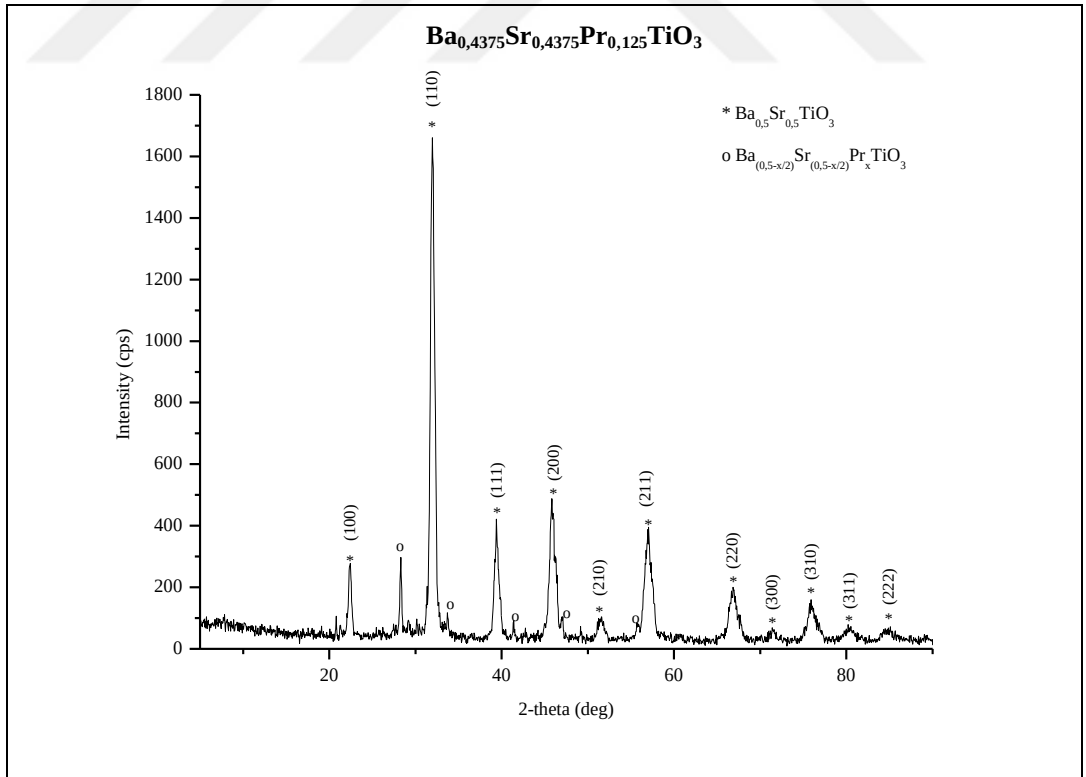
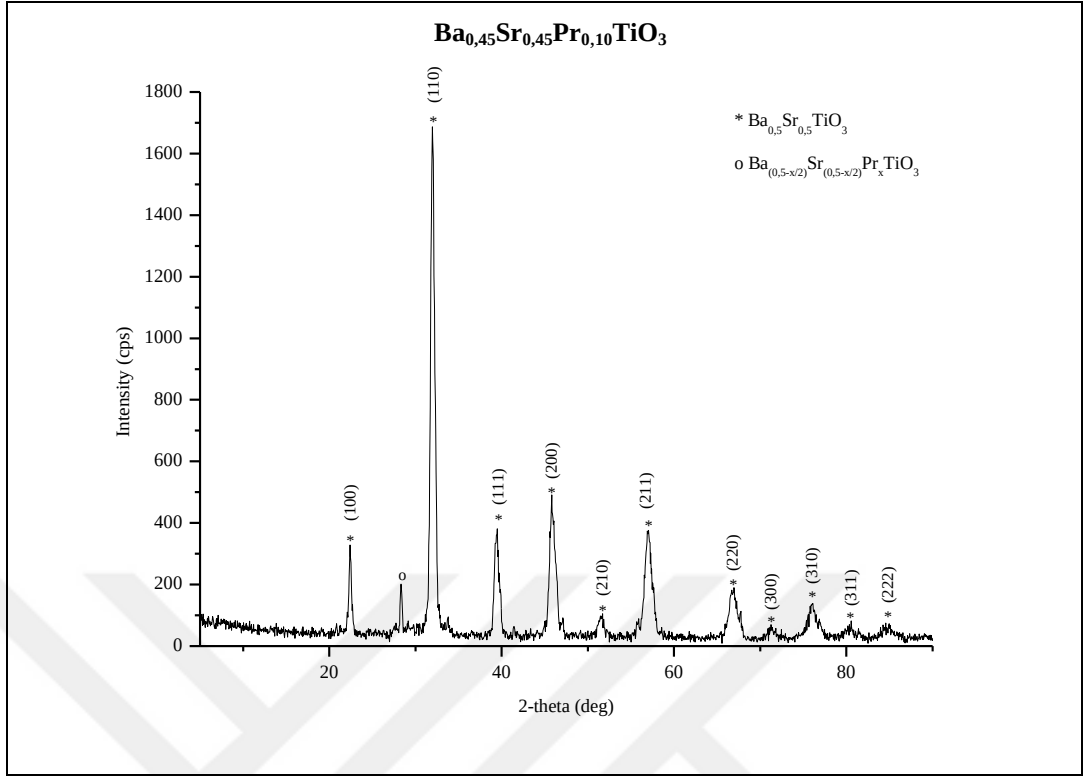
Şekil 4.90. Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Pr_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapıları ve Pr₆O₁₁ bileşiğine ait XRD diyagramları



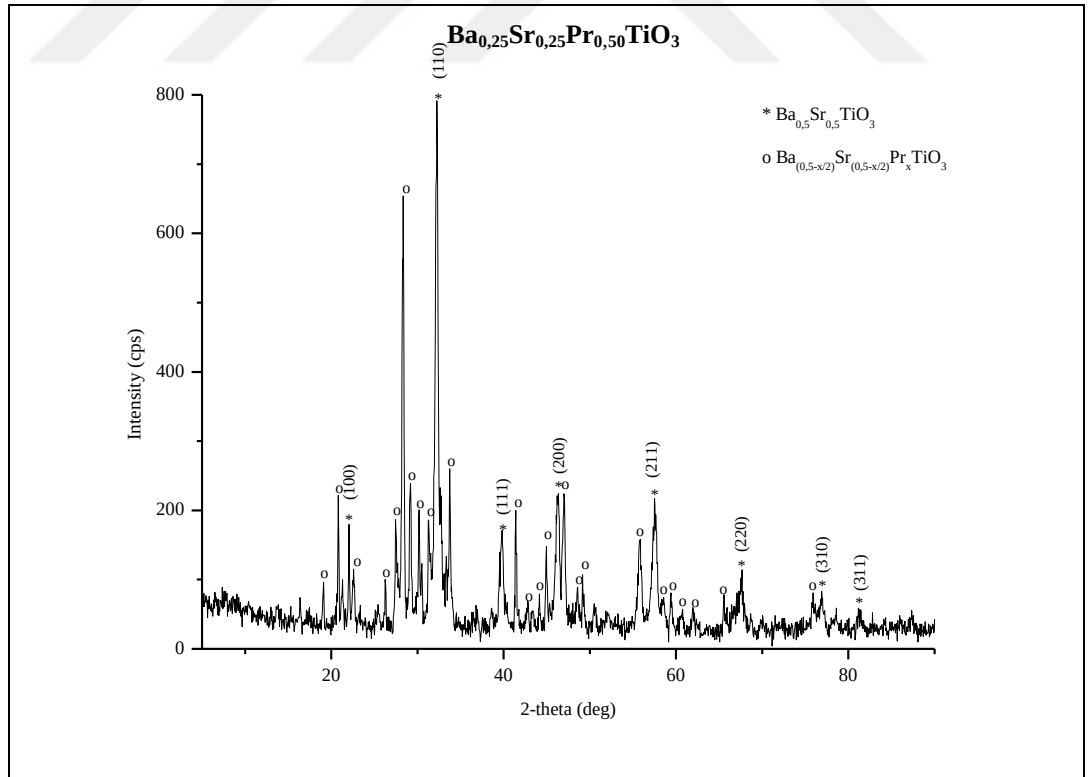
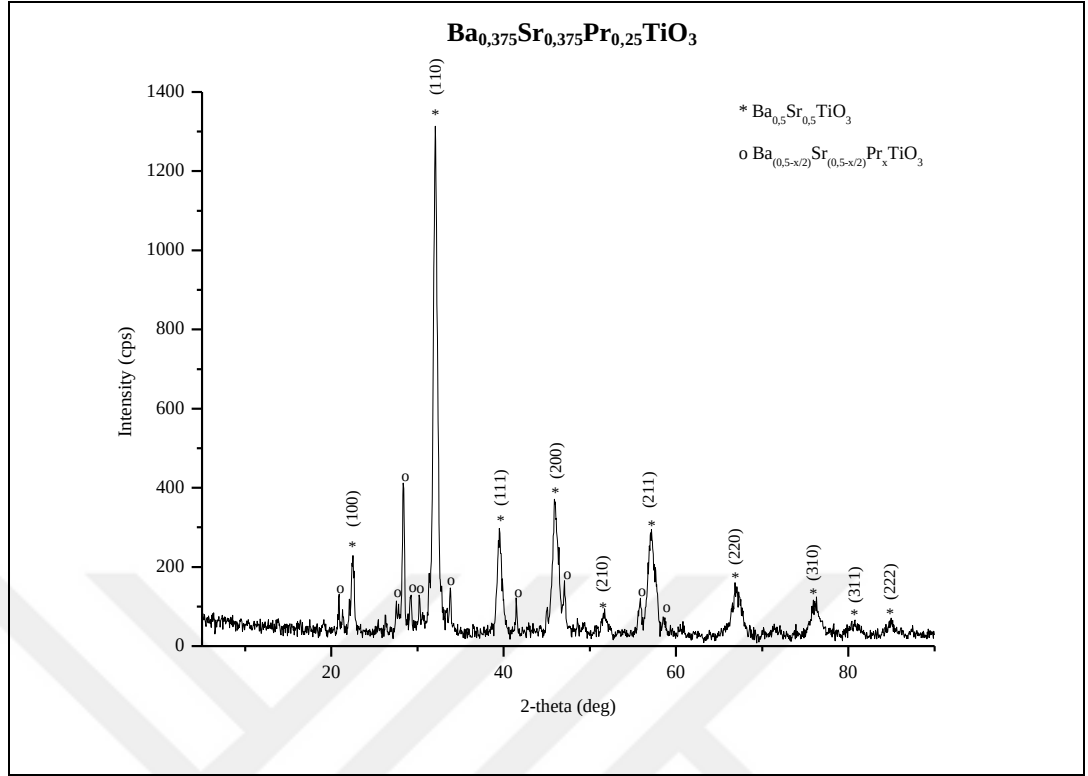
Şekil 4.90. (Devam) Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Pr_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve Pr₆O₁₁ bileşiğine ait XRD diyagramları



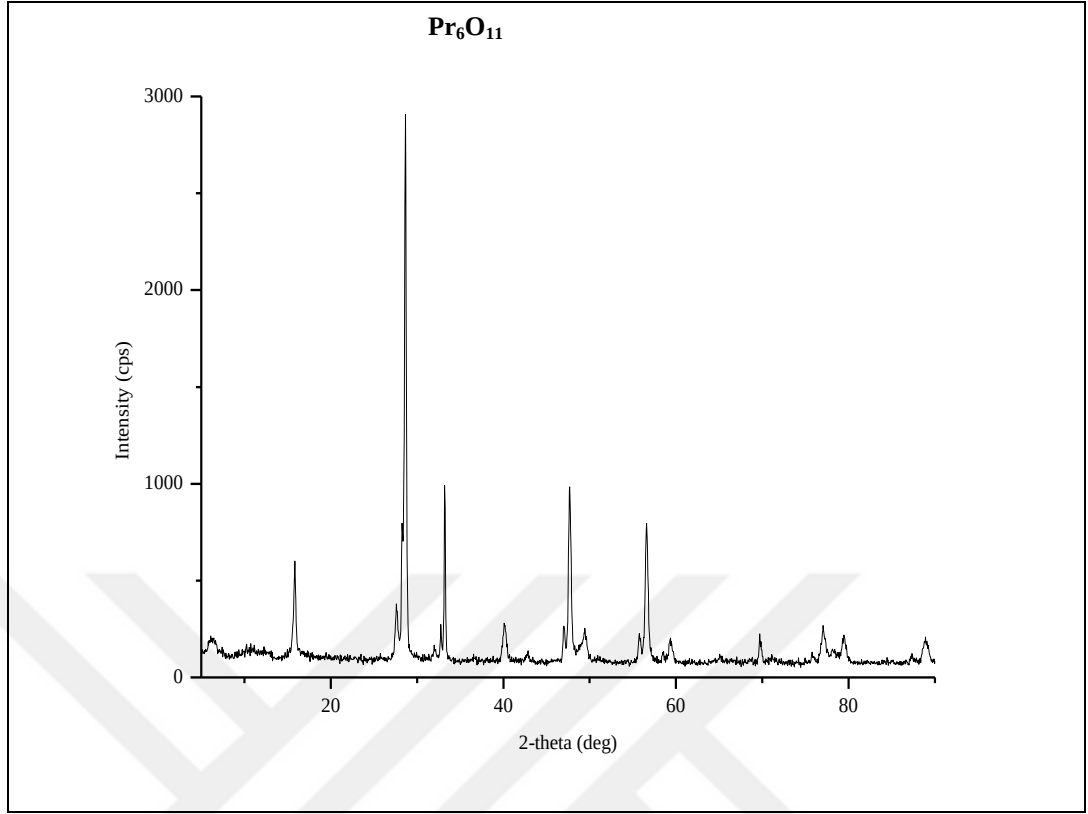
Şekil 4.90. (Devam) Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Pr_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve Pr₆O₁₁ bileşiğine ait XRD diyagramları



Şekil 4.90. (Devam) Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Pr_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve Pr₆O₁₁ bileşiğine ait XRD diyagramları

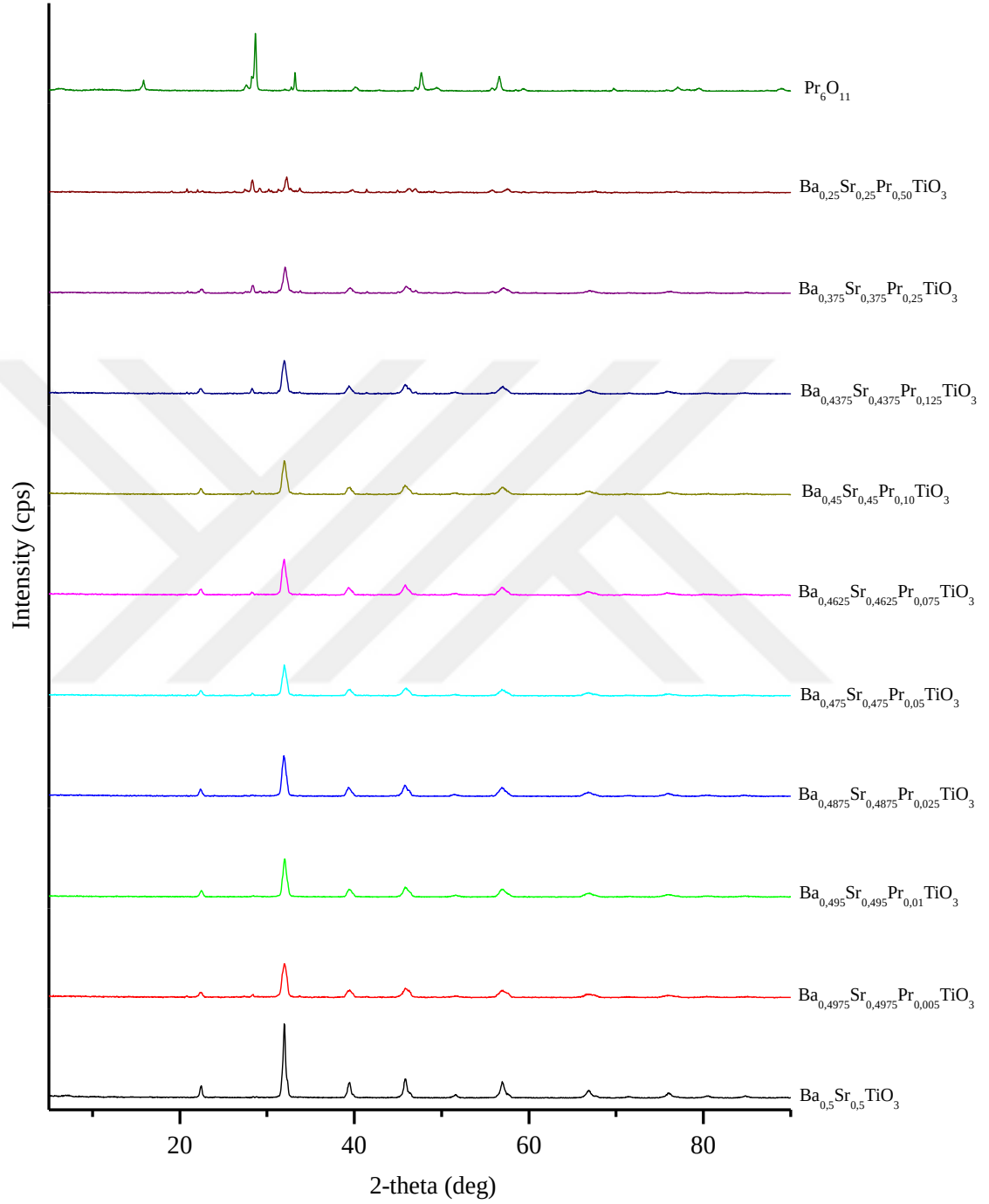


Şekil 4.90. (Devam) Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Pr_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve Pr₆O₁₁ bileşiğine ait XRD diyagramları

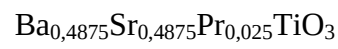
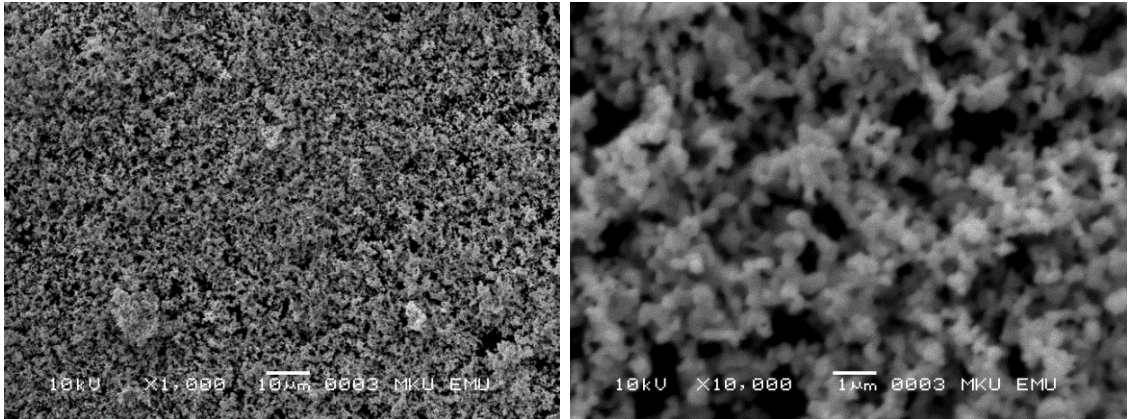
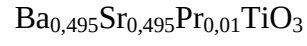
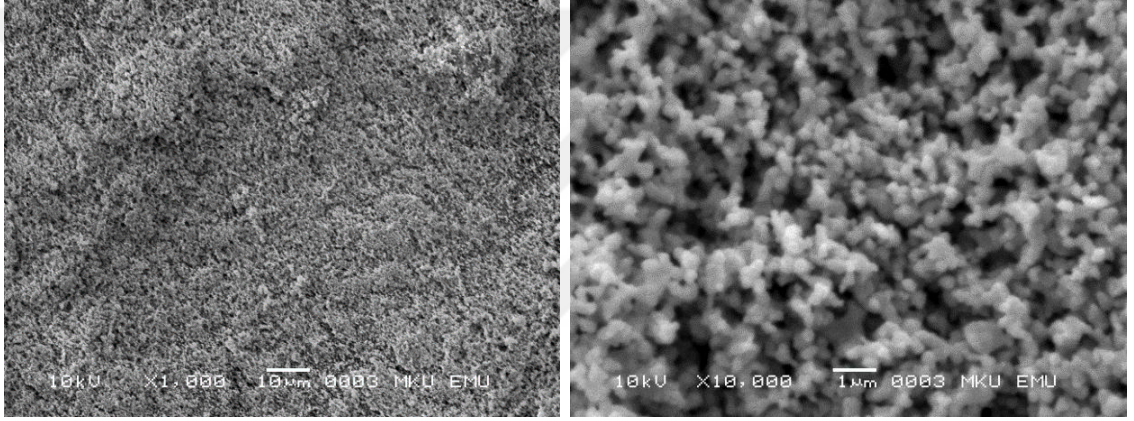
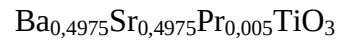
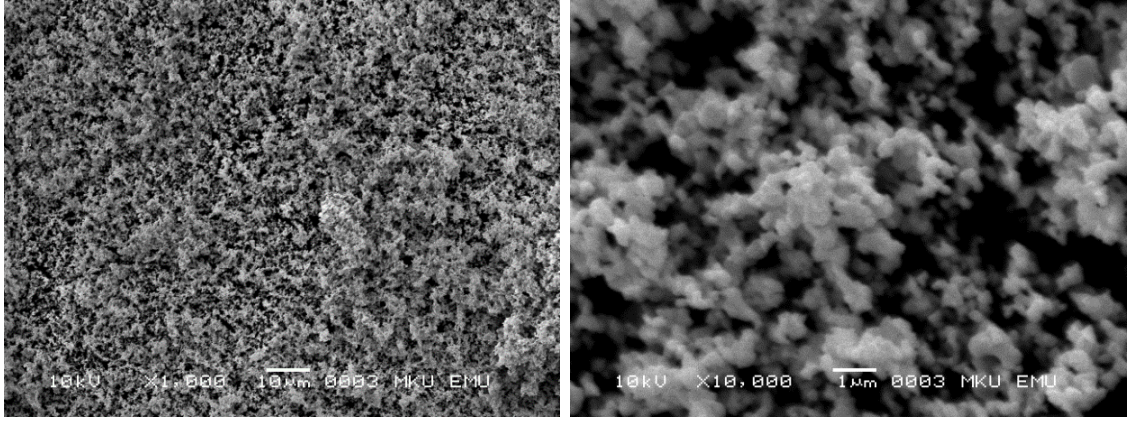


Şekil 4.90. (Devam) $\text{Ba}_{0,5-x/2}\text{Sr}_{0,5-x/2}\text{Pr}_x\text{TiO}_3$ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ve Pr_6O_{11} bileşiğine ait XRD diyagramları

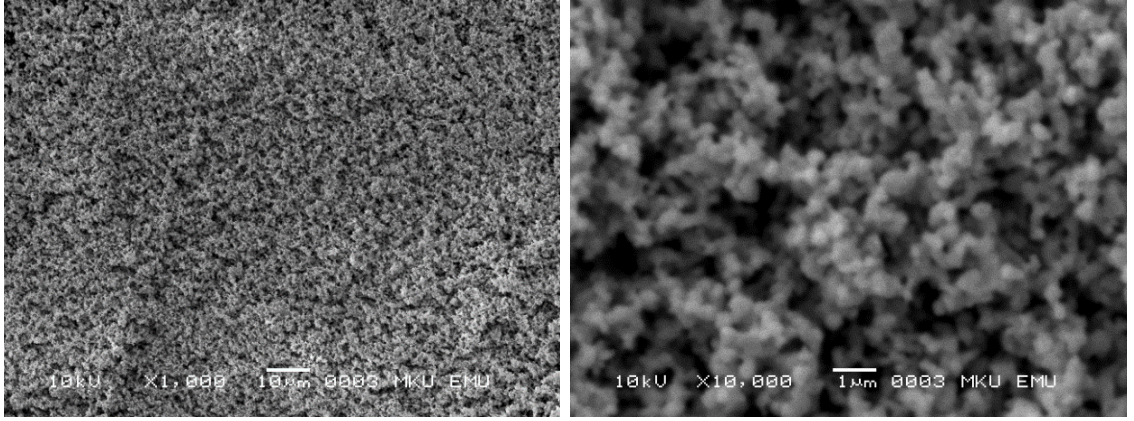
Baryum stronsiyum titanata 0,005 mol praseodimiyum iyonu katkılандığında yapıda 28° açı değeriinde yeni oluşan seramik yapıya ait karakteristik pike rastlanılmıştır. Katkı miktarı 0,01 mol ve 0,025 mol olduğunda 28° açı değeriindeki pik kaybolmuş; 0,05 mol praseodimiyum iyonu katkılандığında ise aynı açı değeriinde şiddeti yüksek bir pikin yeniden oluştuğu gözlenmiştir. Yapıya katkılanan praseodimiyum iyonunun katkı miktarı arttıkça yapıya ait piklerin sayısında ve şiddetinde artış olduğu; baryum stronsiyum titanata ait piklerin şiddetinde ise azalış olduğu gözlenmiştir. Piklerdeki değişimler katkısız baryum stronsiyum titanat yapısının bozulduğunu yeni bir kristal yapının oluştuğunu göstermektedir.



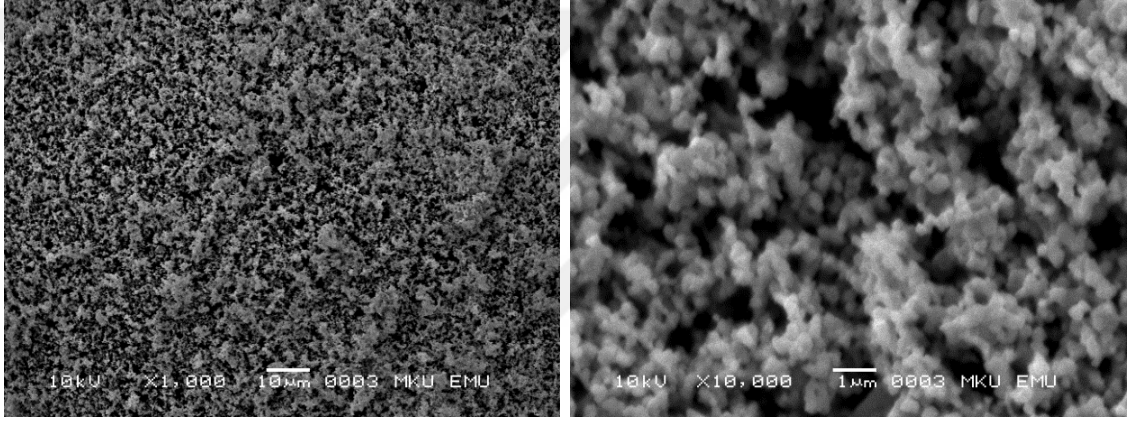
Şekil 4.91. Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Pr_xTiO₃ (x: 0; 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ve Pr₆O₁₁ bileşiğine ait çoklu XRD diyagramları



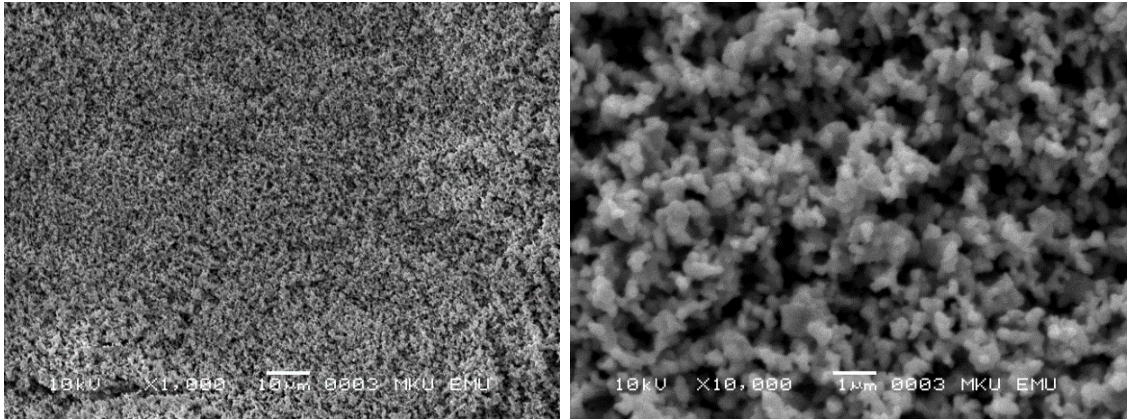
Şekil 4.92. $\text{Ba}_{0,5-x/2}\text{Sr}_{0,5-x/2}\text{Pr}_x\text{TiO}_3$ (x : 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılara ait SEM görüntüleri



$\text{Ba}_{0,475}\text{Sr}_{0,475}\text{Pr}_{0,05}\text{TiO}_3$

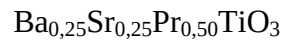
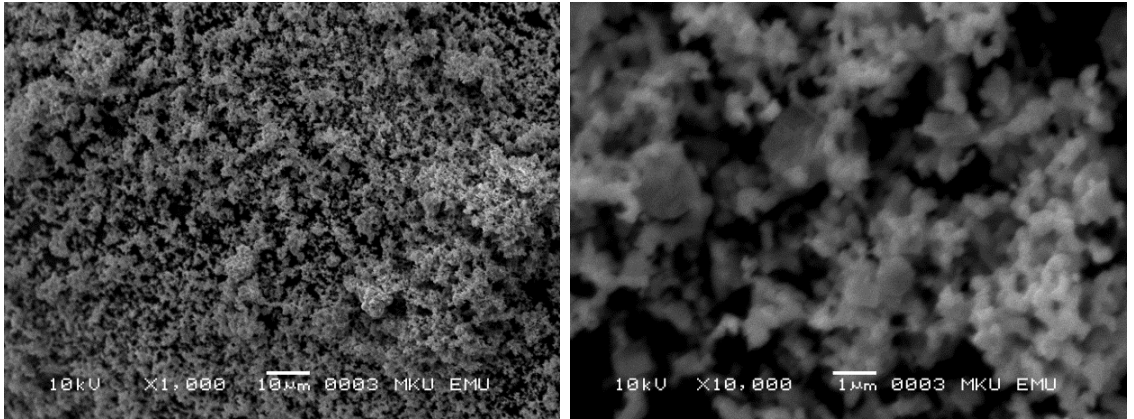
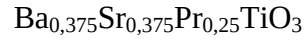
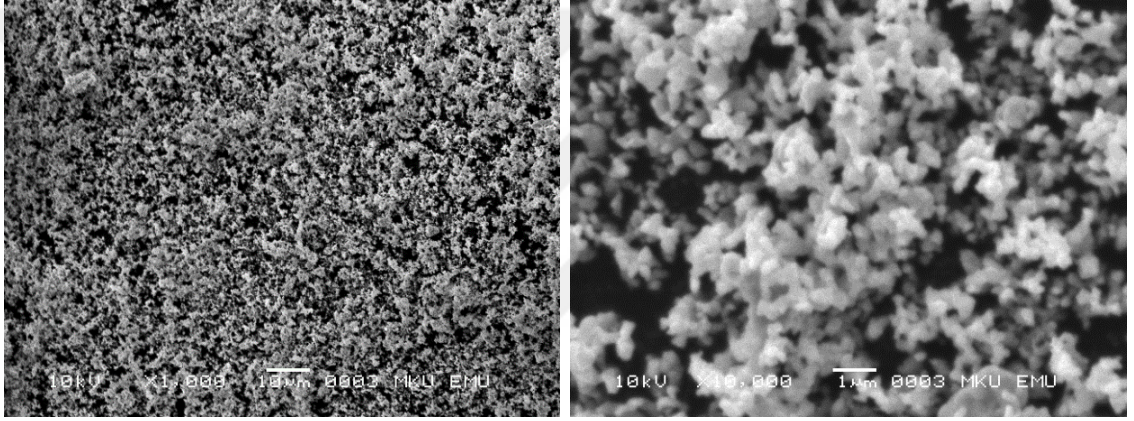
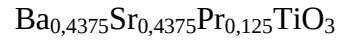
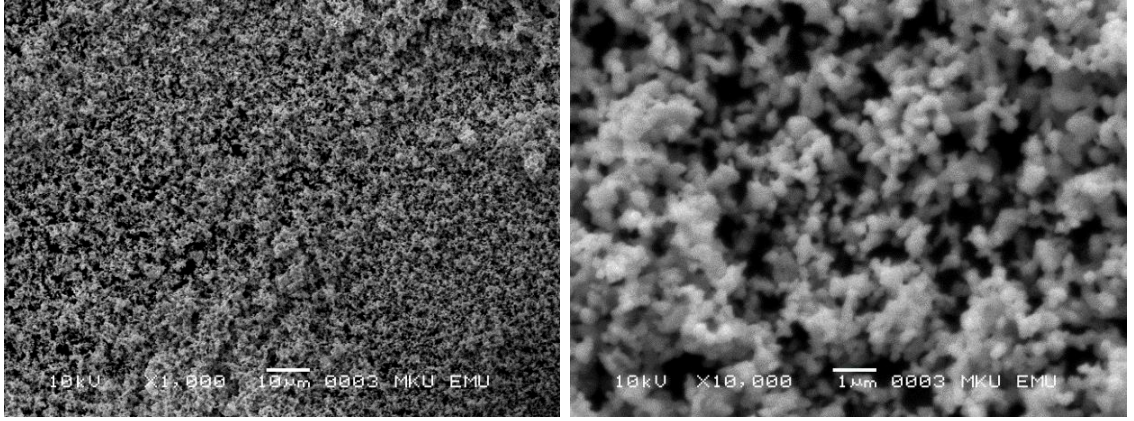


$\text{Ba}_{0,4625}\text{Sr}_{0,4625}\text{Pr}_{0,075}\text{TiO}_3$



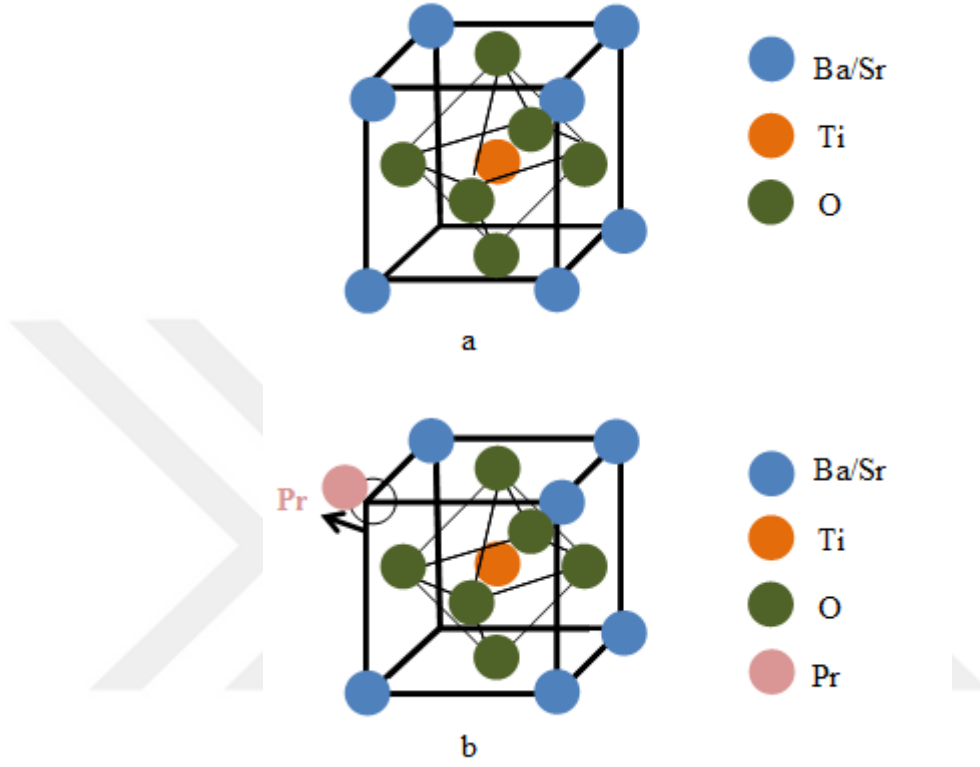
$\text{Ba}_{0,45}\text{Sr}_{0,45}\text{Pr}_{0,10}\text{TiO}_3$

Şekil 4.92. (Devam) $\text{Ba}_{0,5-x/2}\text{Sr}_{0,5-x/2}\text{Pr}_x\text{TiO}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ait SEM görüntüleri



Şekil 4.92. (Devam) $\text{Ba}_{0,5-x/2}\text{Sr}_{0,5-x/2}\text{Pr}_x\text{TiO}_3$ (x : 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,10; 0,125; 0,25; 0,50) seramik yapılarına ait SEM görüntüleri

Farklı mol oranlarında katı hal sentez yöntemi kullanılarak üretilen $Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Pr_xTiO_3$ bileşiklerinin SEM görüntüleri incelendiğinde yapı içerisinde taneciklerin homojen bir şekilde dağıldığı görülmüştür.



Şekil 4.93. a) $Ba_{0,50}Sr_{0,50}TiO_3$ seramiğinin kristal yapısı b) Pr_6O_{11} katkılı $Ba_{0,50}Sr_{0,50}TiO_3$ seramiğinde Pr iyonu ile Ba ve Sr iyonlarının yer değişimi

$Ba_{0,50}Sr_{0,50}TiO_3$ seramiği ve Pr_6O_{11} bileşiği kübik kristal yapıya sahiptir. Bundan dolayı katkısız baryum stronsiyum titanata praseodimiyum iyonunun katkılanmasıyla elde edilen seramik yapıları kübik kristal yapıya sahiptir.

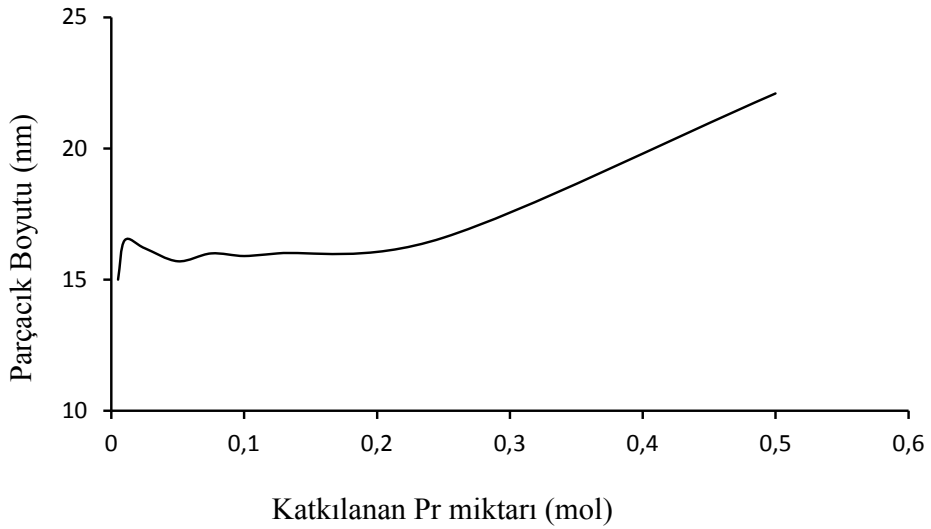
Farklı mol oranlarında praseodimiyum katkılanan $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ seramiklerinin her bir katkılama sonucunda elde edilen yapılarının XRD kırınım desenlerinden yararlanılarak ortalama tanecik boyutları Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ve Çizelge 4.15’de verilmiştir.

$$D = \frac{0,9 \lambda}{\beta \cos \theta} \quad \lambda = 1,5400 \text{Å} \quad (4.16)$$

Çizelge 4.15. Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak teorik olarak hesaplanmış ortalama tanecik boyutları

Örnek	Ortalama Tanecik Boyutu (nm)
$Ba_{0,4975}Sr_{0,4975}Pr_{0,005}TiO_3$	15,0
$Ba_{0,495}Sr_{0,495}Pr_{0,01}TiO_3$	16,5
$Ba_{0,4875}Sr_{0,4875}Pr_{0,025}TiO_3$	16,2
$Ba_{0,475}Sr_{0,475}Pr_{0,05}TiO_3$	15,7
$Ba_{0,4625}Sr_{0,4625}Pr_{0,075}TiO_3$	16,0
$Ba_{0,45}Sr_{0,45}Pr_{0,10}TiO_3$	15,9
$Ba_{0,4375}Sr_{0,4375}Pr_{0,125}TiO_3$	16,0
$Ba_{0,375}Sr_{0,375}Pr_{0,25}TiO_3$	16,6
$Ba_{0,25}Sr_{0,25}Pr_{0,50}TiO_3$	22,1

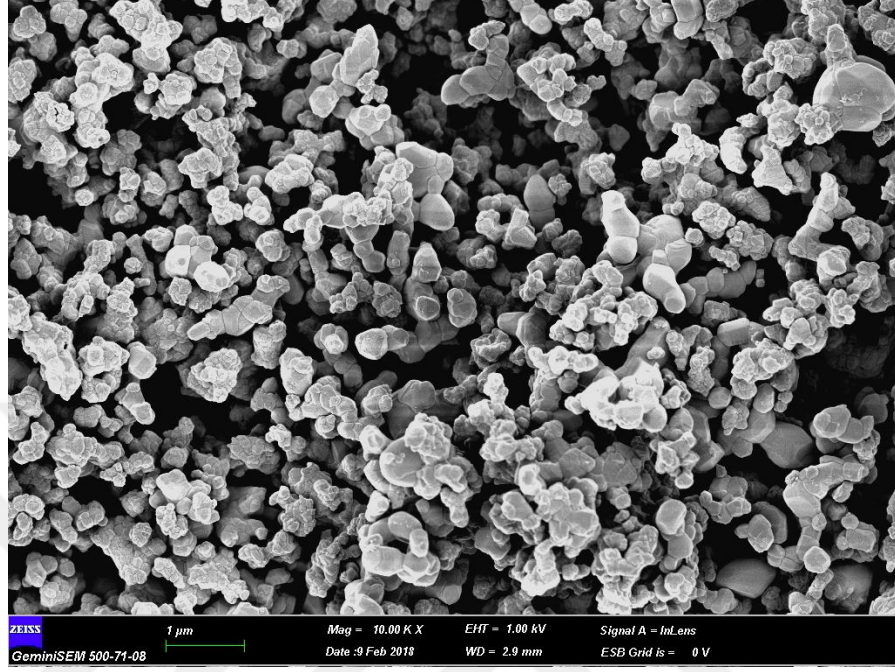
$Ba_{0,5-x/2}Sr_{0,5-x/2}Pr_xTiO_3$ katkılı örneklerinin parçacık boyutları 15,0 – 22,1 nm aralığında değişen değerler almaktadır. Katkılama miktarına bağlı olarak ortalama tanecik boyutundaki değişim Şekil 4.94’deki grafikte gösterilmiştir.



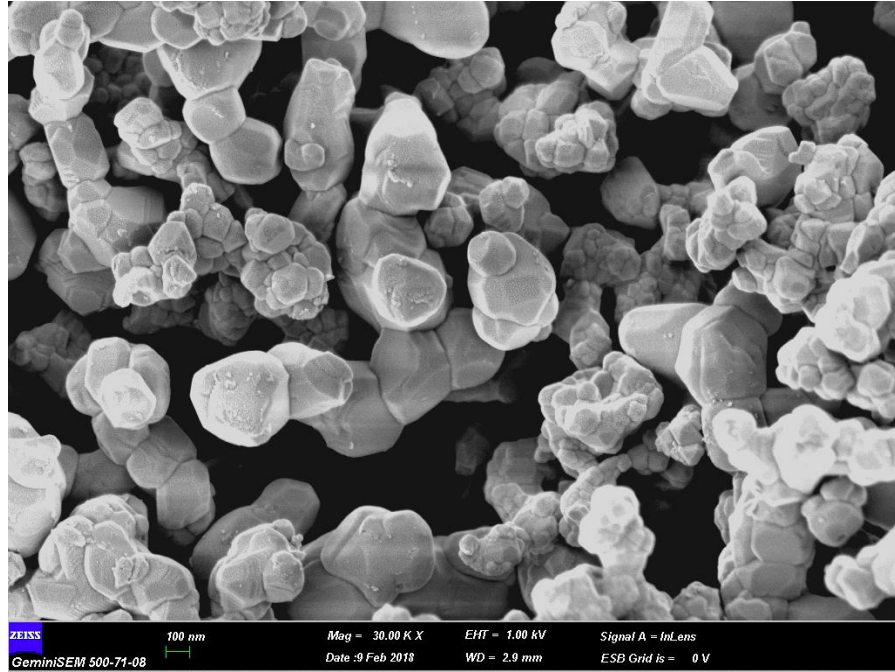
Şekil 4.94. Katkı miktarı ile ortalama tanecik boyutunun değişimi

$Ba_{0,475}Sr_{0,475}Pr_{0,05}TiO_3$ seramik yapısı Alan Emisyon Taramalı Elektron Mikroskobu (FESEM) ile incelendiğinde yapıyı oluşturan taneciklerin ortalama

büyükliğünün teorik olarak XRD kırınım desenlerinden yararlanılarak hesaplanan değere yakın olduğu görülmüştür (Şekil 4.95).

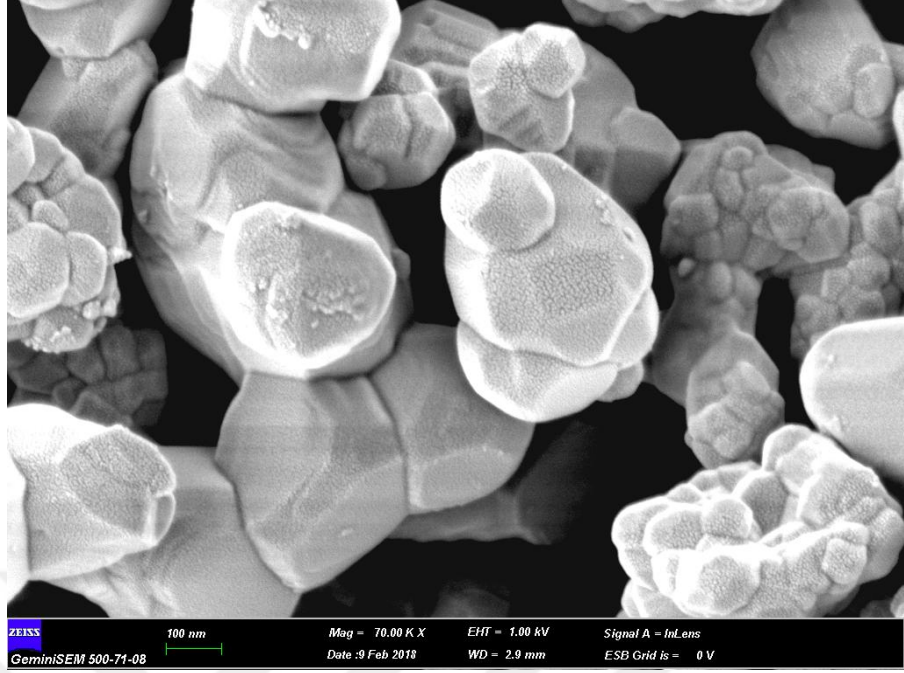


Ba_{0,475}Sr_{0,475}Pr_{0,05}TiO₃ (10.00 KX)

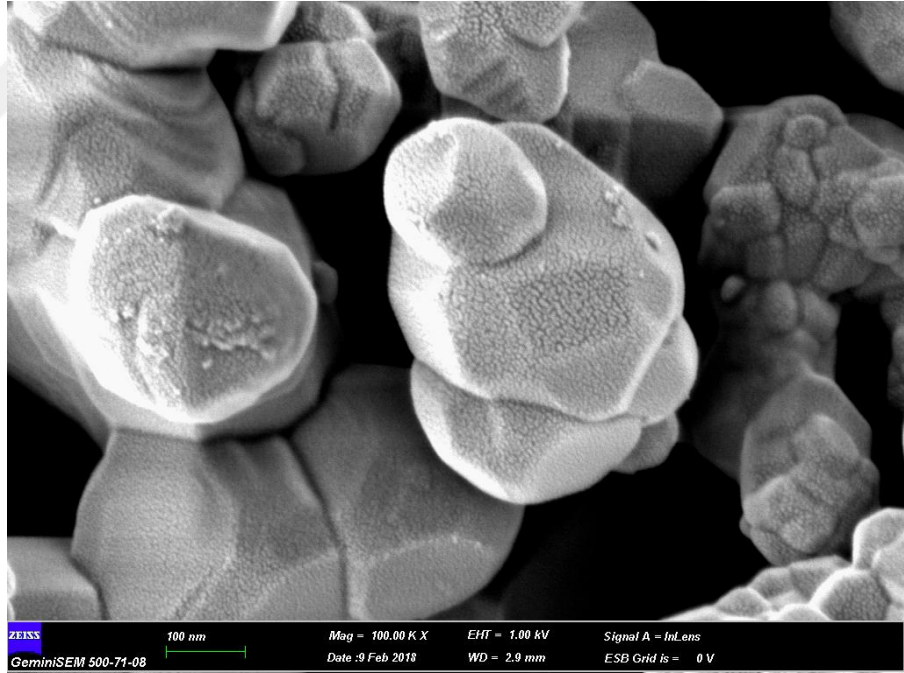


Ba_{0,475}Sr_{0,475}Pr_{0,05}TiO₃ (30.00 KX)

Şekil 4.95. Ba_{0,475}Sr_{0,475}Pr_{0,05}TiO₃ seramik yapısına ait FESEM görüntüleri



$\text{Ba}_{0.475}\text{Sr}_{0.475}\text{Pr}_{0.05}\text{TiO}_3$ (70.00 KX)



$\text{Ba}_{0.475}\text{Sr}_{0.475}\text{Pr}_{0.05}\text{TiO}_3$ (100.00 KX)

Şekil 4.95. (Devam) $\text{Ba}_{0.475}\text{Sr}_{0.475}\text{Pr}_{0.05}\text{TiO}_3$ seramik yapısına ait FESEM görüntüleri

Praseodimiyumun baryum stronsiyuma katkısıyla oluşan yapılarda yeni karakteristik pikler meydana gelmiş, baryum stronsiyum titanata ait piklerin şiddetinde ve sayısında azalma olmuştur. Elde edilen seramik yapıların kübik kristal yapıya sahip oldukları ve yapıyı oluşturan tanecik boyutlarının 15,0 – 22,1 nm aralığında değerler aldığı tespit edilmiştir.

4.3. Kimyasal Analizler

4.3.1. Sentezlenen BaTiO₃ Seramiğindeki Baryum Miktarının Belirlenişi

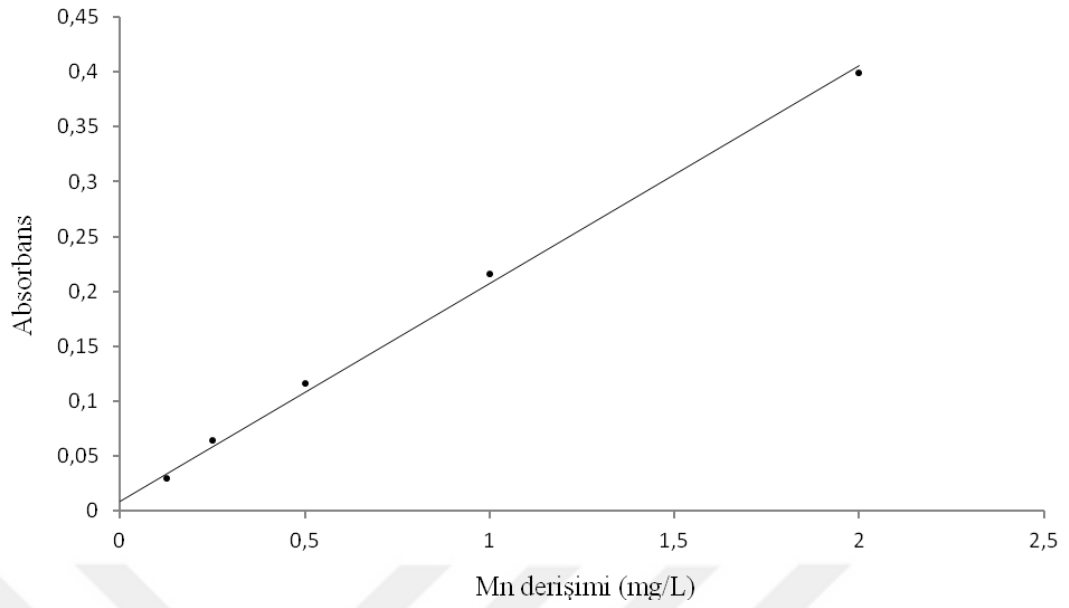
Sentezlenen baryum titanatın gravimetrik yöntemle belirlenen baryum miktarı 0,06167 g olarak bulunmuştur. Teorik olarak baryum titanatın içerdiği baryum miktarı ise 0,06272 g'dır. Geri kazanımımız;

% Geri kazanım = $(0,06167/0,06272) \times 100 = \% 98,33$ baryum olarak hesaplanmıştır.

4.3.2. Sentezlenen BaMn_xTi_{1-x}O₃ Seramiklerindeki Mangan Miktarının Belirlenişi

Sentezlenen BaMn_xTi_{1-x}O₃ seramiğindeki mangan miktarının atomik absorpsiyon spektrometresi cihazı ile tayininde kalibrasyon doğrusunun elde edilebilmesi için 0,125-2 mg/L arasında Mn içeren standartlar hazırlanarak çalışılmıştır.

Doğrunun denklemi $A = 0,009 + 0,198 C$ ve korelasyon katsayısı $r = 0,996'$ dir. Burada A absorbans değerlerini, C ise Mn derişimini (mg/L) temsil etmektedir. Elde edilen bu sonuçlara göre 0,125-2 mg/L derişim aralığında derişime karşılık absorbans doğrusal olarak değişmektedir.



Şekil 4.96. Mn'ın atomik absorpsiyon spektrometresi cihazı ile tayinine ait kalibrasyon doğrusu

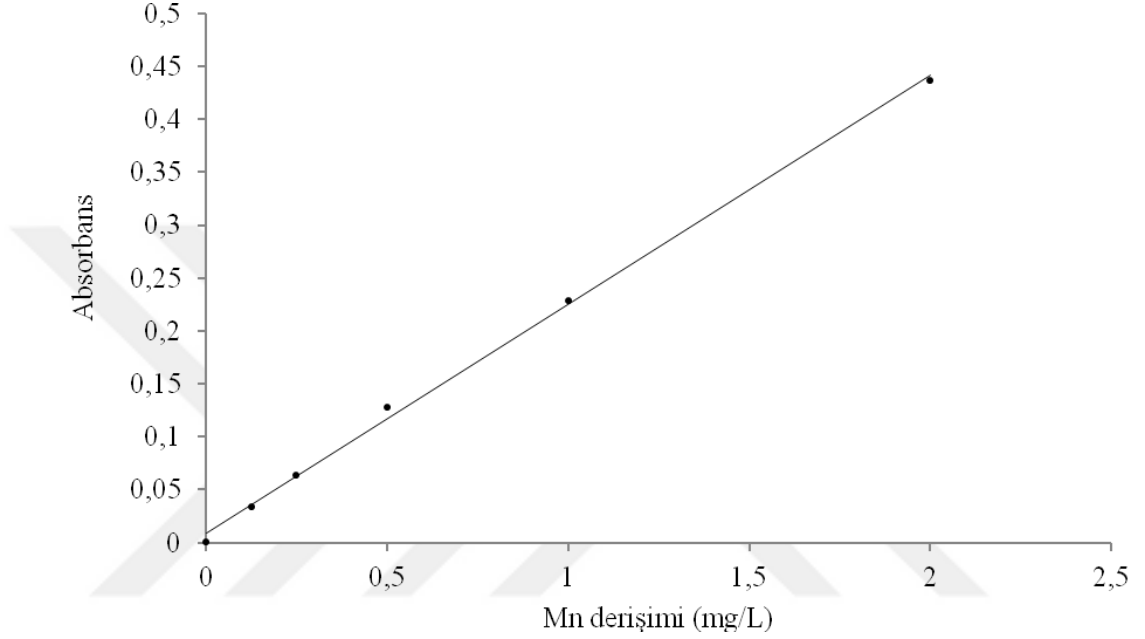
Farklı konsantrasyonlar da sentezlenen $\text{BaMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ örneklerinde mangan tayini 3 paralel olarak çalışılarak ortalama değerleri alınmış ve % geri kazanım değerleri hesaplanmıştır. Sentezlenen örneklerin analiz sonuçları ve % geri kazanım değerleri Çizelge 4.16'da verilmiştir.

Çizelge 4.16. $\text{BaMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40) analiz sonuçları ve geri kazanım değerleri

Örnek	Teorik değer (g)	Analiz sonucu elde edilen değer (g)	Geri kazanım (%)
$\text{BaMn}_{0,005}\text{Ti}_{0,995}\text{O}_3$	0,473	$0,479 \pm 0,002$	$101,3 \pm 0,4$
$\text{BaMn}_{0,01}\text{Ti}_{0,99}\text{O}_3$	0,952	$0,863 \pm 0,004$	$90,6 \pm 0,4$
$\text{BaMn}_{0,025}\text{Ti}_{0,975}\text{O}_3$	2,354	$2,427 \pm 0,002$	$103,1 \pm 0,9$
$\text{BaMn}_{0,05}\text{Ti}_{0,95}\text{O}_3$	4,799	$4,745 \pm 0,004$	$98,9 \pm 0,8$
$\text{BaMn}_{0,10}\text{Ti}_{0,90}\text{O}_3$	9,395	$10,162 \pm 0,006$	$108,2 \pm 0,7$
$\text{BaMn}_{0,15}\text{Ti}_{0,85}\text{O}_3$	14,282	$15,048 \pm 0,017$	$105,4 \pm 1,2$
$\text{BaMn}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$	18,827	$19,179 \pm 0,023$	$101,9 \pm 1,2$
$\text{BaMn}_{0,40}\text{Ti}_{0,60}\text{O}_3$	38,174	$38,665 \pm 0,021$	$101,3 \pm 1,4$

4.3.3. Sentezlenen $\text{SrMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ Seramiklerindeki Mangan Miktarının Belirleniş

Sentezlenen $\text{SrMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40) seramiğindeki mangan miktarının atomik absorpsiyon spektrometresi cihazı ile tayininde kalibrasyon doğrusunun elde edilebilmesi için 0,125-2 mg/L arasında Mn içeren standartlar hazırlanarak çalışılmıştır.



Şekil 4.97. Mn'ın atomik absorpsiyon spektrometresi cihazı ile tayinine ait kalibrasyon doğrusu

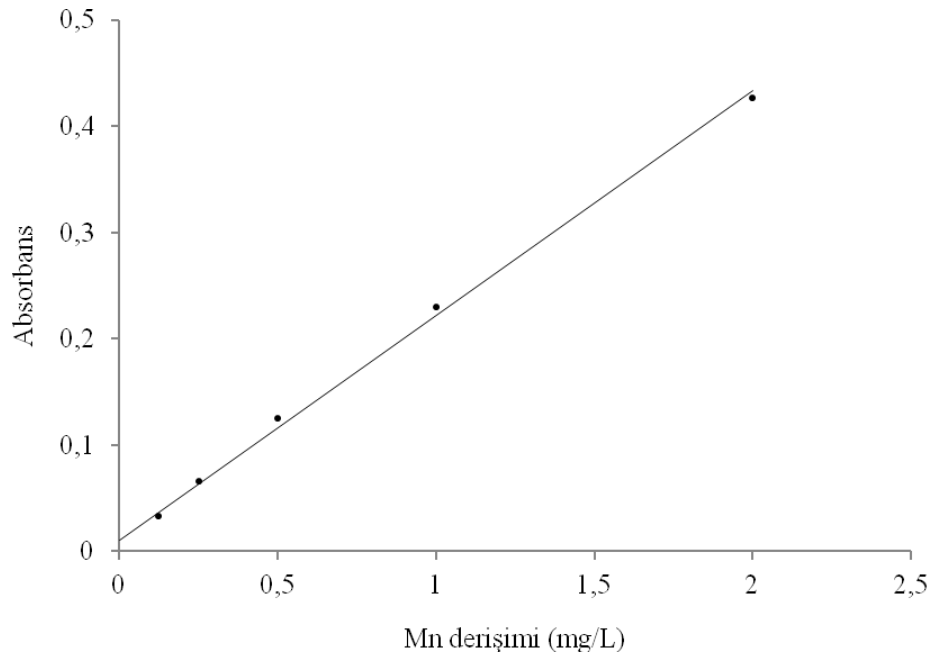
Doğrunun denklemi $A = 0,009 + 0,216 C$ ve korelasyon katsayısı $r = 0,998$ ' dir. Burada A absorbans değerlerini, C ise Mn derişimini (mg/L) temsil etmektedir. Elde edilen bu sonuçlara göre 0,125-2 mg/L derişim aralığında derişime karşılık absorbans doğrusal olarak değişmektedir.

Farklı konsantrasyonlar da sentezlenen $\text{SrMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ örneklerinde mangan tayini 3 paralel olarak çalışılarak ortalama değerleri alınmış ve % geri kazanım değerleri hesaplanmıştır. Sentezlenen örneklerin analiz sonuçları ve % geri kazanım değerleri Çizelge 4.17'de verilmiştir.

Çizelge 4.17. $\text{SrMn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) analiz sonuçları ve geri kazanım değerleri

Örnek	Teorik değer (g)	Analiz sonucu elde edilen değer (g)	Geri kazanım (%)
$\text{SrMn}_{0,005}\text{Ti}_{0,995}\text{O}_3$	0,605	$0,679 \pm 0,02$	$112,3 \pm 2,9$
$\text{SrMn}_{0,01}\text{Ti}_{0,99}\text{O}_3$	1,209	$1,283 \pm 0,01$	$106,1 \pm 0,6$
$\text{SrMn}_{0,025}\text{Ti}_{0,975}\text{O}_3$	3,141	$3,031 \pm 0,03$	$96,5 \pm 1,0$
$\text{SrMn}_{0,05}\text{Ti}_{0,95}\text{O}_3$	6,305	$5,626 \pm 0,10$	$89,2 \pm 1,6$
$\text{SrMn}_{0,10}\text{Ti}_{0,90}\text{O}_3$	12,050	$10,989 \pm 0,26$	$91,2 \pm 2,2$
$\text{SrMn}_{0,15}\text{Ti}_{0,85}\text{O}_3$	18,487	$18,697 \pm 0,55$	$101,1 \pm 3,0$
$\text{SrMn}_{0,20}\text{Ti}_{0,80}\text{O}_3$	25,180	$25,147 \pm 0,20$	$99,9 \pm 0,8$
$\text{SrMn}_{0,40}\text{Ti}_{0,60}\text{O}_3$	50,000	$42,088 \pm 0,64$	$84,2 \pm 1,3$
$\text{SrMn}_{0,60}\text{Ti}_{0,40}\text{O}_3$	73,740	$62,253 \pm 0,76$	$84,4 \pm 1,0$

4.3.4. Sentezlenen $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{Mn}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ Seramiklerindeki Mangan Miktarının Belirlenişi



Şekil 4.98. Mn'in atomik absorpsiyon spektrometresi cihazı ile tayinine ait kalibrasyon doğrusu

Sentezlenen $Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_xTi_{1-x}O_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramiğindeki mangan miktarının atomik absorpsiyon spektrometresi cihazı ile tayininde kalibrasyon doğrusunun elde edilebilmesi için 0,125-2,000 mg/L arasında Mn içeren standartlar hazırlanarak çalışılmıştır.

Doğrunun denklemi $A = 0,010 + 0,211 C$ ve korelasyon katsayısı $r = 0,997'$ dir. Burada A absorbans değerlerini, C ise Mn derişimini (mg/L) temsil etmektedir. Elde edilen bu sonuçlara göre 0,125-2 mg/L derişim aralığında derişime karşılık absorbans doğrusal olarak değişmektedir.

Farklı konsantrasyonlar da sentezlenen $Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_xTi_{1-x}O_3$ örneklerinde mangan tayini 3 paralel olarak çalışılarak ortalama değerleri alınmış ve % geri kazanım değerleri hesaplanmıştır. Sentezlenen örneklerin analiz sonuçları ve % geri kazanım değerleri Çizelge 4.18'de verilmiştir.

Çizelge 4.18. $Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_xTi_{1-x}O_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) analiz sonuçları ve geri kazanım değerleri

Örnek	Teorik değer (g)	Analiz sonucu elde edilen değer (g)	Geri kazanım (%)
$Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_{0,005}Ti_{0,995}O_3$	0,546	$0,552 \pm 0,002$	$101,1 \pm 0,5$
$Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_{0,01}Ti_{0,99}O_3$	1,076	$1,151 \pm 0,02$	$107,0 \pm 1,8$
$Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_{0,025}Ti_{0,975}O_3$	2,687	$2,443 \pm 0,05$	$90,9 \pm 2,0$
$Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_{0,05}Ti_{0,95}O_3$	5,397	$5,255 \pm 0,07$	$97,4 \pm 1,3$
$Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_{0,10}Ti_{0,90}O_3$	10,985	$10,605 \pm 0,12$	$96,5 \pm 1,1$
$Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_{0,15}Ti_{0,85}O_3$	15,978	$13,591 \pm 0,026$	$85,1 \pm 0,2$
$Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_{0,20}Ti_{0,80}O_3$	22,106	$22,204 \pm 0,36$	$100,4 \pm 1,6$
$Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_{0,40}Ti_{0,60}O_3$	42,666	$36,135 \pm 0,38$	$84,7 \pm 0,9$
$Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_{0,60}Ti_{0,40}O_3$	65,435	$51,276 \pm 0,40$	$78,76 \pm 0,6$

5. SONUÇ ve ÖNERİLER

5.1. Sonuç

Titanat tabanlı seramiklerin kullanımı eski yıllara dayanmaktadır. Baryum titanat tabanlı seramikler Wainer ve Solomon tarafından 1942 yılında keşfedilmiştir. Baryum titanatın keşfiyle dielektrik malzemelerin üretimi ve kullanımına yönelik birçok çalışma geçmişten günümüze kadar yapılmaya devam etmektedir.

Katı hal sentez yöntemi kullanılarak üretilen $BaTiO_3$, $SrTiO_3$, $Ba/SrTiO_3$ seramiklerin üretiminde iki farklı homojenizasyon tekniği kullanılmıştır. Katı hal sentez yönteminde karıştırma tekniği olarak çalkalama literatürde genellikle tercih edilen bir yöntemdir. Bu yöntemde karıştırılmak istenen tozlar homojen bir yapı elde edilmesi için 4-24 saat arasında aseton, su, etanol... vb. farklı çözücülerde 200-400 rpm aralığında tutularak homojenize edilir. Son yıllarda bu yapılan uzun işleme alternatif olarak önerilen ultrasonik karıştırma yöntemi öne çıkmaya başlamıştır. Her iki homojenizasyon tekniği homojenizasyon süresi, bu tekniklerle elde edilen yapıların kristal tanecik büyüklükleri, XRD kristal desen yönelimleri, morfolojik özellikleri yönünden karşılaştırılmıştır. Çalkalayıcı (12 saatlik karıştırma) ve ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak (5 dakikalık karıştırma) elde edilen baryum titanatın XRD ve SEM sonuçları incelendiğinde ultrasonik homojenizasyon cihazı kullanılarak sentezlenen seramiği oluşturan taneciklerin daha küçük yapıda olduğu, daha homojen seramik yüzeyler meydana geldiği, XRD piklerinin daha net, sinyal/gürültü oranlarının daha yüksek olduğu görülmüştür. Ultrasonik homojenizasyon cihazı ile hem oldukça küçük boyutlarda tanecik boyutuna hem de yüksek doluluk oranına sahip seramik tozlar elde edilmiştir. Sentezlenecek olan seramiklerin homojenizasyon işlemleri için ultrasonik homojenizasyon cihazının kullanılmasının zaman ve maliyet açısından daha avantajlı bir yöntem olduğu tespit edilmiştir.

Baryum karbonat ve titanyum dioksit ayrışması, sıvı çözeltinin asitlik bazlık kuvveti, sıvı çözeltinin ayrışması ve sulu titanyum dioksit şekli baryum titanatın homojenizasyon basamağında önemli yere sahiptir. Homojenizasyon işlemi sırasında kullanılan sıvıların yapılarında bulunan O-H gruplarına bağlı olarak baryum titanatın oluşumu hızlanır. Metanol, su ve asetona bakıldığında metanol ve suyun benzer işlevsel gruplara sahip olmasından dolayı pKa değeri birbirine oldukça yakınken; asetonun

fonksiyonel grubunun oldukça farklı olmasından dolayı pKa değeri de farklıdır. Sıvıların ayrışması O-H grubuna bağlıdır. Suyun yapısındaki O-H gruplarının miktarı metanol yapısından daha yüksektir. Aseton ise yapısında O-H grubuna sahip değildir. Baryum iyonu düşük alan kuvvet iyonlarından dolayı yüksek alan iyonlarıyla reaksiyona girebilir. Homojenizasyon işlemi sırasında metanol yada su kullanıldığında baryum ve titanyum iyonları bunlarla reaksiyona girerken, asetonda herhangi bir oluşum söz konusu değildir. Tüm bu sebeplerden dolayı homojenizasyon işlemi sırasında çözücü olarak aseton kullanılarak nanoboyutta seramikler sentezlenebilmiştir.

Baryum titanat ve stronsiyum titanat seramiklerinin başlangıç malzemeleri stokiometrik oranlarda tartıldıktan sonra aseton varlığında ultrasonik homojenizasyon cihazı ile homojenize edilmiş ve katıhal sentez yöntemi gerçekleştirilmiştir. Sentezlenen seramiklerin XRD ve SEM cihazlarıyla karakterize edilmesi sonucunda baryum titanatın kalsinasyon sıcaklığı 1100 °C, kalsinasyon süresi 4 saat, sinterleme sıcaklığı 1400 °C, sinterleme sıcaklığı 8 saat; stronsiyum titanatın kalsinasyon sıcaklığı 1100 °C, kalsinasyon süresi 2 saat, sinterleme sıcaklığı 1400 °C olarak belirlenmiştir.

Ba/SrTiO₃ yapıları farklı mol oranlarında karıştırılarak sentezlenmiş ve ağırlıklı yapısı baryum olanlar (Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO₃, Ba_{0,6}Sr_{0,4}TiO₃) baryum titanatın kalsinasyon sıcaklığında (1100 °C) ve süresinde (4 saat); ağırlıklı yapısı stronsiyum olanlar (Ba_{0,4}Sr_{0,6}TiO₃, Ba_{0,2}Sr_{0,8}TiO₃) stronsiyum titanatın kalsinasyon sıcaklığında (1100 °C) ve süresinde (2 saat) kalsine edilmiştir. Sentezlenen seramik yapılar incelendiğinde ağırlıklı yapının baryum olduğu seramik tozlarında baryuma ait pikler daha net görülmekte, yapıdaki stronsiyum miktarının artışıyla baryum titanata ait olan piklerde azalma olmakla birlikte stronsiyum titanata ait olan karakteristik piklerde belirginleşerek artma meydana gelmiştir. Baryum ve stronsiyum miktarlarının eşit olduğu Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO₃ örneğinde ise her iki yapıya ait karakteristik piklerin yer aldığı tespit edilmiştir. Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO₃ tozu için yapılan karakterizasyon çalışması sonucunda kalsinasyon süresi 2 saat ve kalsinasyon sıcaklığı ise 1100 °C olarak belirlenmiştir.

BaTiO₃, SrTiO₃ ve Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO₃ seramikleri sentezlenip karakterizasyon işlemleri yapıldıktan sonra bu sentezlenen seramiklere Mn⁺³ (Mn₂O₃), K⁺ (K₂CO₃), In⁺³ (In₂O₃), Rb⁺ (Rb₂CO₃) ve Pr⁺ (Pr₆O₁₁) iyonları katkılanarak kristal yapıda meydana gelen değişimler incelenmiştir. Mn³⁺ (r = 72 pm), ve In³⁺ (r = 76 pm) iyonlarının yarıçapı BaTiO₃, SrTiO₃, Ba/SrTiO₃ seramiklerindeki Ti³⁺ (r = 81 pm) iyonunun yarıçapına

yakın olduğundan dolayı bu iyonların kristal yapıda titanyum iyonunun yerine; K^+ ($r=151$ pm), Rb^+ ($r=166$ pm) ve Pr^+ ($r=151$ pm) iyonlarının yarıçapı ise $BaTiO_3$, $SrTiO_3$, $Ba/SrTiO_3$ seramiklerindeki Ba^{+2} ve Sr^{+2} iyonlarının yarıçapına yakın olduğundan dolayı bu iyonların yerine geçerek yeni kristal yapılar oluşturmuştur. Katkılama esnasında yapıda pozitif ve negatif boşlukların meydana gelmesinden dolayı katkılanan iyon Ba^{+2} ve Sr^{+2} iyonlarıyla yer değiştirebileceği gibi Ti^{3+} iyonu ile da yer değiştirebileceğinden dolayı yapının elektriksel iletkenliğinde de değişimler olmaktadır.

Baryum titanata farklı mol oranlarında Mn^{+3} , K^+ , In^{+3} , Rb^+ ve Pr^+ katkılanmasıyla elde edilen $BaMn_xTi_{1-x}O_3$ (x : 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,1; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60); $Ba_{1-x}K_xTiO_3$, $BaIn_xTi_{1-x}O_3$, $Ba_{1-x}Rb_xTiO_3$ ve $Ba_{1-x}Pr_xTiO_3$ (x : 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,075; 0,1; 0,125; 0,25; 0,50) katkılı örneklerin katkı miktarına bağlı olarak bazı fazlar bozularak yeni fazların meydana geldiği XRD desenlerinin incelenmesiyle görülmüştür. Her bir metal oksidin XRD desenleri alınarak katkılama miktarlarındaki artışa bağlı olarak yapıda meydana gelen değişim orijinal metal-oksit XRD kırınım desenine bakılarak tartışılmıştır. Mangan iyonunun katkılanmasıyla elde edilen seramik yapılar da katkı miktarına bağlı olarak tetragonal, kübik ve hekzagonal kristal yapı fazlarına; potasyum iyonunun katkılanmasıyla elde edilen bileşiklerde tetragonal ve kübik kristal yapı fazlarına; indiyum iyonunun katkılanmasıyla elde edilen seramik yapılarda kübik, yapı fazına, rubidyum iyonunun katkılanmasıyla elde edilen seramik yapılarda tetragonal yapı fazına, praseodimiyum iyonunun katkılanmasıyla elde edilen bileşiklerde ise tetragonal ve kübik kristal yapı fazlarına rastlanılmıştır. Yapıyı oluşturan taneciklerin ortalama boyutu katkı miktarına bağlı olarak değişkenlik göstermiştir. Mangan iyonu katkısıyla 27 - 55,8 nm, potasyum iyonu katkısıyla 44,8 - 53,1 nm, indiyum iyonu katkısıyla 29,90 - 45,70 nm, rubidyum iyonu katkısıyla 42,0 - 76,1 nm, praseodimiyum iyonunun katkısıyla ise 43,0 - 49,3 nm aralığında değişen değerler aldığı belirlenmiştir.

Stronsiyum titanata farklı mol oranlarında Mn^{+3} , K^+ , In^{+3} , Rb^+ ve Pr^+ iyonlarının katkılanmasıyla elde edilen yeni kristal yapıların kübik yapı fazına sahip olduğu görülmüştür. Katkılama miktarındaki artışla kristal yapıda herhangi bir değişim gözlenmemiştir. In_2O_3 , Mn_2O_3 ve Pr_6O_{11} bileşikleri stronsiyum titanatla aynı kristal yapı fazına (kübik yapı fazına) sahip oldukları için stronsiyum titanata katkılanmaları ile kristal yapıda bir değişim söz konusu olmamıştır. K_2CO_3 ve Rb_2CO_3 bileşikleri ise

monoklinik kristal yapı fazına sahiptir. Bu bileşiklerin katkısız stronsiyum titanata katkılanmasıyla kübik yapıdaki β açısının değişerek yapının monokliniğe doğru değişmesi beklenmiş fakat stronsiyum iyonu ile yer değiştiren potasyum ve rubidyum iyonları kristal yapıda böyle bir açısal değişiklik oluşturacak kadar kararlılık gösterememiştir. Katkılama miktarına bağlı olarak oluşan yapılardaki ortalama tanecik boyutundaki değişim mangan, potasyum, indiyum, rubidyum, praseodimiyum iyonları katkısı sonrası sırasıyla 45,1 – 85,1 nm, 57,6 – 84,0 nm, 53,5 – 83,4 nm, 53,1 – 79,7 nm, 47,6-70,6 nm boyutunda olduğu tespit edilmiştir.

Baryum/stronsiyum titanata farklı mol oranlarında Mn^{+3} , K^+ , In^{+3} , Rb^+ ve Pr^+ katkılanmasıyla elde edilen katkılı örneklerin katkı miktarına bağlı olarak yeni fazlar meydana gelmiştir. Baryum/stronsiyum titanat kübik kristal yapı fazına sahiptir. Yapıya kübik kristal yapı fazına sahip farklı mol oranlarında In_2O_3 , Mn_2O_3 ve Pr_6O_{11} bileşikler katkılандığında yeni oluşan seramik yapıların da kübik kristal yapı fazının hakim olduğu görülmüştür. K_2CO_3 ve Rb_2CO_3 bileşikler ise monoklinik kristal yapı fazına sahip olmalarına rağmen baryum/stronsiyum titanata katkılanmalarıyla yapıda iyonların yer değiştirmesi gözlemlenmiş fakat kristal yapı fazında değişim gözlenmemiş baryum/stronsiyum titanatın kristal yapı fazı olan kübik yapı fazının hakim olduğu tespit edilmiştir. Yapıyı oluşturan taneciklerin ortalama boyutunun mangan iyonu katkısıyla 16,8 – 28,6 nm, potasyum iyonu katkısıyla 14,4 – 68,8 nm, indiyum iyonu katkısıyla 24,7 – 152,6 nm, rubidyum iyonu katkısıyla 14,4 – 69,5 nm, praseodimiyum iyonunun katkısıyla ise 15,0 – 22,1 nm aralığında değişen değerler aldığı belirlenmiştir.

Sentezlenen baryum titanat seramiğindeki baryum miktarı gravimetrik yöntem kullanılarak belirlenmiş, geri kazanım değeri % 98,33 olarak bulunmuştur. Sonrasında baryum titanat, stronsiyum titanat ve baryum/stronsiyum titanata katkılanan farklı mol oranlarındaki Mn miktarı atomik absorpsiyon spektrometresi cihazı kullanılarak tespit edilmiştir. $BaMn_xTi_{1-x}O_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40) seramiklerinde ki geri kazanım değeri % 90,6 - 108,2 aralığında; $SrMn_xTi_{1-x}O_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40) seramiklerinde ki geri kazanım değeri %84,2 – 112,3 aralığında; $Ba_{0,5}Sr_{0,5}Mn_xTi_{1-x}O_3$ (x: 0,005; 0,01; 0,025; 0,05; 0,10; 0,15; 0,20; 0,40; 0,60) seramiklerinde ki geri kazanım değeri ise %78,76 – 107,0 aralığında yer aldığı tespit edilmiştir.

5.2. Öneriler

Sentezlenen ve morfolojik özellikleri incelenen seramik malzemeler; ϵ değerinin oldukça yüksek olması ve katkılamayla bunun daha da arttırılabilmesi buna ilaveten oldukça küçük d oranlarında ince filmler üretebilme özelliğinin bulunması sebebiyle bu çalışmada tercih edilmiştir.

İleri ki çalışmalarda bu seramiklerin elektriksel özellikleri incelenerek, sentezlenen tozlar preslenerek peletler haline getirilip metal-seramik-metal şeklinde iki elektrot arasına alınarak MIM (metal-insulator-metal) yapıda kondansatörler üretilebilir. Bu kondansatörler sanayinin çeşitli alanlarında amaca uygun olarak kullanılabilir.



KAYNAKLAR

- Attar, A. S., Sichani, E. S., Sharafi S., 2017. Structural and dielectric properties of Bi-doped barium strontium titanate nanopowders synthesized by sol-gel method. **Journal of Materials Research and Technology**, 6(2): 108-115.
- Avrahami, Y., 2003. BaTiO₃ based materials for piezoelectric and electro-optic applications. **Massachusetts Institute of Technology Dept. Of Materials Science and Engineering**.
- Bell, A. J., 2008. Ferroelectrics: The role of ceramic science and engineering. **Journal of the European Ceramic Society**, 28: 1307-1317.
- Bradha, M., Vijayaraghavan, T., Suriyaraj, S. P., Selvakumar, R., Ashok, A. M., 2015. Synthesis of photocatalytic La_(1-x)A_xTiO_{3,5-δ} (A= Ba, Sr, Ca) nano perovskites and their application for photocatalytic oxidation of congo red dye in aqueous solution. **Journal of Rare Earths**, Vol. 33, No. 2.
- Brzozowski, E., Castro, M. S., 2000. Synthesis of barium titanate improved by modifications in the kinetics of the solid state reaction. **Journal of the European Ceramic Society**, 20: 2347-2351.
- Brzozowski, E., Castro, M. S., Foschini, C. R., Stojanovic, B., 2002. Secondary phases in Nb-doped BaTiO₃ ceramics. **Ceramics International**, 28: 773-777.
- Butee, S., Kulkarni, A. R., Prakash, O., Aiyar, R. P. R. C., Sudheendran, K., James Raju, K. C., 2010. Effect of lanthanide ion substitution on RF and microwave dielectric properties of BiNbO₄ ceramics. **Journal of Alloys and Compounds**, 492: 351-357.
- Cai, W., Fu, C., Lin, Z., Deng, X., 2011. Vanadium doping effects on microstructure and dielectric properties of barium titanate ceramics. **Ceramics International**, 37: 3643-3650.
- Chan, N., 2010. Study of barium strontium zirconate titanate thin films and their microwave device applications. **The Hong Kong Polytechnic University**, China.
- Chen, C., Zhuang, H., Zhu, X., Zhou, K., Zhang, D., 2015. Enhancement of relaxor properties by Nb doping in Ba_{0,8}Sr_{0,12}Ca_{0,08}TiO₃ lead-free ferroelectric ceramics. **Ceramics International**, 41: 9893-9898.
- Chao, S., Dogan, F., 2011. BaTiO₃-SrTiO₃ layered dielectrics for energy storage. **Materials Letters**, 65: 978-981.
- Chen, T., Balu, V., Katakam, S., Lee, J., Lee, J. C., 1999. Effects of Ir electrodes on barium strontium titanate thin-film capacitors for high- density memory application. **IEEE Transactions on Electron Devices**, Volume: 46, 12:2304-2310.
- Chen, Z., Yuan-fang, Q., 2012. Dielectric properties and phase transitions of La₂O₃- and Sb₂O₃- doped barium strontium titanate ceramics. **Transactions of Nonferrous Metals Society of China**, 22: 2742-2748.
- Chung, H., J., Chung, S. J., Kim, J. H., Woo, S. I., 2001. The effect of post-annealing on the electrical properties of (Pr, Sr)TiO₃ thin films prepared by liquid source misted chemical deposition for ultra large-scale integration (ULSI) dynamic random Access memory (DRAM) capacitor. **Thin Solid Films**, 394: 212-217.
- Cui, J., Dong, G., Yang, Z., Du, J., 2010. Low dielectric loss and enhanced tunable properties of Mn-doped BST/MgO composites. **Journal of Alloys and Compounds**, 490: 353-357.

- Ertug, B., 2008. Baryum titanat esaslı seramiklerin nemli ortamdaki elektriksel özelliklerine boşluk oluşturan bazı katkıların etkisi. **İstanbul Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü**, 29-32s, İstanbul.
- Ersoy, S., 2010. Baryum titanat esaslı seramiklerin üretilmesi ve karakterizasyonları. **Gebze İleri Teknoloji Enstitüsü Mühendislik ve Fen Bilimleri Enstitüsü**, 22s, Gebze.
- Fang, C. Y., Wang, C., Polotai, A. V., Agrawal, D. K., Lanagan, M. T., 2008. Microwave synthesis of nano-sized barium titanate. **Materials Letters**, 62: 2551-2553.
- Fardin, E. A., 2007. Barium strontium titanate thin films for tunable microwave applications. **School of Electrical and Computer Engineering Science, Engineering and Technology Portfolio RMIT University**, Australia.
- Gao, F., Zhao, H., Li, X., Cheng, Y., Zhou, X., Cui, F., 2008. Preparation and electrical properties of yttrium-doped strontium titanate with B-site deficiency. **Journal of Power Sources**, 185: 26-31.
- Ganguly, M., Rout, S. K., Woo, W. S., Ahn, C. W., Kim, I. W., 2013. Characterization of A-site deficient samarium doped barium titanate. **Physica B**, 411: 26-34.
- Gao, C., Fu, Q., Zhou, D., Zu, H., Chen, T., Xue, F., Hu, Y., Zheng, Z., Luo, W., 2017. Nanocrystalline semiconducting donor-doped BaTiO₃ ceramics for laminated PTC thermistor. **Journal of the European Ceramic Society**, 37: 1523-1528.
- Gijp, S., 1998. Preparation of homogeneously-doped barium titanate. **University of Twente**, Netherlands.
- Guigues, B., Guilan, J., Defay, E., Garrec, P., Woloan, D., Andre, B., Laugier, F., Pantel, R., Gagnard, X., Aid, M., 2007. SrTiO₃/BaTiO₃ multilayers thin films for integrated tunable capacitors applications. **Journal of the European Ceramic Society**, 27: 3851-3854.
- Hou, B., Xu, Y., Wu, D., Sun, Y., 2006. Preparation and characterization of single-crystalline barium strontium titanate nanocubes via solvothermal method. **Powder Technology**, 170: 26-30.
- Hu, Y., Tan, O. K., Cao, W., Zhu, W., 2004. A low temperature nano-structured SrTiO₃ thick film oxygen gas sensor. **Ceramics International**, 30: 1819-1822.
- Hu, Q., Shen, Z., Li, Y., Li, Y., Wang, Z., Luo, W., Xie, Z., 2014. Enhanced energy storage properties of dysprosium doped strontium titanate ceramics. **Ceramics International**, 40: 2529-2534.
- Huan, Y., Wang, X., Fang, J., Li, L., 2014. Grain size effect on piezoelectric and ferroelectric properties of BaTiO₃ ceramics. **Journal of the European Ceramic Society**, 34: 1445-1448.
- Ioachim, A., Toacsan, M. I., Banciu, M. G., Nedelcu, L., Dutu, A., Antohe, S., Berbecaru, C., Georgescu, L., Stoica, G., Alexandru, H. V., 2007. Transitions of barium strontium titanate ferroelectric ceramics for different strontium content. **Thin Solid Films**, 515: 6289-6293.
- Jung, Y., Lim, D., Nho, J., Cho, S., Riman, R. E., Lee, B. W., 2005. Glycothermal synthesis and characterization of tetragonal barium titanate. **Journal of Crystal Growth**, 274: 638-652.
- Jung, W., Kim, J., Kim, H., Yoon, D., 2010. Effect of temperature schedule on the particle size of barium titanate during solid-state reaction. **Materials Letters**, 64: 170-172.

- Kambale, K. R., Kulkarni, A. R., Venkataramani, N., 2014. Grain growth kinetics of barium titanate synthesized using conventional solid state reaction route. **Ceramics International**, 40: 667-673.
- Khollam, Y. B., Deshpande, S. B., Potdar, H. S., Bhoraskar, S. V., Sainkar, S. R., Date, S. K., 2005. Simple oxalate precursor route for the preparation of barium-strontium titanate: $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$. **Material Characterization**, 54: 63-74.
- Kim, J., 2002. Synthesis of porous (Ba,Sr)TiO₃ ceramics and PTCR characteristics. **Materials Chemistry and Physics**, 78: 154-159.
- Klee, M., Keur, W., Mauczok, R., Esch, H., Wild, M., Liu, J., Roest, A., Reimann, K., Renders, C., Peters, L., Tiggelman, M. P. J., Wunnicke, O., Neumann, K., 2008. MI004 miniaturised, high performance ferroelectric and piezoelectric thin film devices. **Applications of Ferroelectrics, 2008. ISAF 2008. 17th IEEE International Symposium on the 23-28 Feb. 2008**, Santa Re, NM, USA, doi: 10.1109/ISAF.2008.4693744.
- Klee, M., Esch, H., Keur, W., Kumar, B., Leuken-Peters, L., Liu, J., Mauczok, R., Neumann, K., Reimann, K., Renders, C., Roest, A. L., Tiggelman, M. P. J., Wild, M., Wunnicke, O., Zhao, J., 2009. **IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control**, Vol. 56, No. 8.
- Kozawa, T., Onda, A., Yanagisawa, K., 2009. Accelerated formation of barium titanate by solid-state reaction in water vapour atmosphere. **Journal of the European Ceramic Society**, 29: 3259-3264.
- Kumar, P., Singh, S., Spah, M., Juneja, J. K., 2010. Synthesis and dielectric properties of substituted barium titanate ceramics. **Journal of Alloys and Compounds**, 489: 59-63.
- Langhammer, H. T., Müller, T., Felgner, K. H., Abicht, H. P., 2000. Influence of strontium on manganese-doped barium titanate ceramics. **Materials Letters**, 42: 21-24.
- Langhammer, H. T., Müller, T., Böttcher, R., Abicht, H., 2003. Crystal structure and related properties of copper-doped barium titanate ceramics. **Solid State Sciences**, 5: 967-971.
- Lee, W. W., Chung, W., Huang, W., Lin, W., Lin, W., Jiang, Y., Chen, C., 2013. Photocatalytic activity and mechanism of nano-cubic barium titanate prepared by a hydrothermal method. **Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers**, 44: 660-669.
- Leng, S., Zheng, L., Li, G., Zeng, J., Yin, Q., Xu, Z., Chu, R., 2011. Impedance spectroscopy analysis for high-Tc $\text{BaTiO}_3\text{-(Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3$ lead-free PTCR ceramics. **Phys. Status Solidi A** 208, No 5, 1099-1104.
- Li, J., Jin, D., Zhou, L., Cheng, J., 2012. Dielectric properties of Barium Strontium Titanate (BST) ceramics synthesized by using mixed-phase powders calcined at varied temperatures. **Materials Letters**, 76: 100-102.
- Li, Y., Yao, X., Wang, X., Hao, Y., 2012. Studies of dielectric properties of rare earth (Dy, Tb, Eu) doped barium titanate sintered in pure nitrogen. **Ceramics International**, 38S: S29-S32.
- Li, Y. Y., Hao, H. S., Qin, L., Wang, H. L., Nie, M. Q., Hu, Z. Q., Gao, W. Y., Liu, G. S., 2015. Synthesis and characterization of Ho^{3+} -doped strontium titanate downconversion nanocrystals and its application in dye-sensitized solar cells. **Journal of Alloys and Compounds**, 622: 1-7.

- Lim, J., Kim, D., Nahm, S., Paik, J., Lee, H., 2006. Effect of B_2O_3 and CuO additives on the sintering temperature and microwave dielectric properties of $Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ ceramics. **Materials Research Bulletin**, 41: 1199-1205.
- Liu, S., Zenou, V. Y., Sus, I., Kotani, T., van Schilfgaarde, M., Newman, N., 2007. Structure-dielectric property relationship for vanadium- and scandium- doped barium strontium titanate. **Acta Materialia**, 55: 2647-2657.
- Liu, C., Liu, P., 2010. Two kinds of anomalous dielectric phenomena in Pr-doped $SrTiO_3$ ceramics: The Debye-like and ferroelectric-like behaviors. **Physica B**, 405: 4881-4885.
- Liu, H., Cao, B., O'Connor, C. J., 2010. Structural and magnetic properties of single crystalline Co-doped barium titanate nanoparticles. **Journal of Magnesium and Magnetic Materials**, 322: 790-793.
- Marina, O. A., Canfield, N. L., Stevenson, J. W., 2002. Thermal, electrical, and electrocatalytical properties of lanthanum-doped strontium titanate. **Solid State Ionics**, 149: 21-28.
- Molla, A. R., Tarafder, A., Karmakar, B., 2016. Fabrication and properties of Nd^{+3} -doped ferroelectric barium bismuth titanate glass-ceramic nanocomposites. **Journal of Alloys and Compounds**, 680: 237-246.
- Moulson, A. J., Herbert, J. M., 2003. Electroceramics: Materials, properties, applications, 2nd edition. **John Wiley & Sons Inc.**
- Nath, J., Ghosh, D., Maria, J. P., K,ngon, A. I., Fathelbab, W., Franzan, P. D., Steer, M. B., 2005. An Electronically tunable microstrip bandpass filter using thin film barium strontium titanate (BST) varactors. **IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques**, Vol. 53, No. 9.
- Nath, A. K., Jiten, C., Singh, K. C., 2010. Influence of ball milling parameters on the particle size of barium titanate nanocrystalline powders. **Physica B**, 405: 430-434.
- Nath, A. K., Medhi, N., 2012. Piezoelectric properties of enviromental friendly bismuth doped barium titanate ceramics. **Materials Letters**, 73: 75-77.
- Ouagague, B., El-Shaarawy, H. B., Pacchini, S., Payan, S., Rousseau, A., Maglione, M., Plana, R., 2010. BST tunability study at DC and microwave frequencies by using IDC and MIM capacitors. **Proceedings of Asia-Pacific Microwave Conference**.
- Paunovic, V., Mitic, V. V., Prijic, Z., Zivkovic, L., 2014. Microstructure and dielectric properties of Dy/Mn doped $BaTiO_3$ ceramics. **Ceramics International**, 40: 4277-4284.
- Patel, N. D., Mangrola, M. H., Soni, K. G., Joshi, V. G., 2017. Structural and electrical properties of nanocrystalline barium strontium titanate. **Materials Today: Proceedings**, 4: 3842-3851.
- Perillat-Merceroz, C., Roussel, P., Capoen, E., Rosini, S., Gelin, P., Vannier, R., Gauthier, G., 2015. Synthesis and properties of $La_{0.05}Ba_{0.95}Ti_{1-x}MyO_3$ (M = Mn, Ce) as anode materials for solid oxide fuel cells. **Solid State Ionics**, 283: 21-29.
- Pisitpipathsin, N., Kantha, P., Pengpat, K., Promsawut, M., Pojprapai, S., 2015. Effect of $KNbO_3$ on physical and electrical properties of lead-free $BaTiO_3$ ceramic. **Ceramics International**, 41: 3639-3646.
- Qi, J. Q., Wang, Y., Chen, W. P., Li, L. T., Chan, H. L. W., 2005. Direct large-scale synthesis of perovskite barium strontium titanate nano-particles from solutions. **Journal of Solid State Chemistry**, 178: 279-284.

- Raj, P. M., Balaraman, D., Govind, V., Abothu, I. R., Wan, L., Gerhardt, R., Swaminathan, M., Tummala, R., 2007. Processing and dielectric properties of nanocomposite thin film 'supercapacitors' for high- frequency embedded decoupling. **IEEE Transactions on Components and Packaging Technologies**, Volume. 30, 4: 569-578.
- Rathee, D., Kumar, M., Arya, S. K., 2010. CMOS development and optimization, scaling issue and replacement with high-k material for future microelectronics. **International Journal of Computer Applications**, Volume.8, No. 5.
- Ren, T., Zhang, L., Wang, X., Wei, C., Liu, J., Liu, L., Li, Z., 2002. High quality ferroelectric capacitor for feram applications. **Integrated Ferroelectrics**, 46: 47-53.
- Rho, J., Kim, S. J., Heo, W., Lee, N., Lee, H., Ahn, J., 2010. $\text{PbZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ ferroelectric thin-film capacitors for flexible nonvolatile memory applications. **IEEE Electron Device Letters**, Vol. 31, No. 9.
- Sekhar, K. C., Hong, K. P., Key, S. H., Han, C. S., Kim, J. C., Kim, D. S., Park, J. C., Cho, Y. S., 2013. Enhanced dielectric and tunable characteristics of K-doped $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$ thin films prepared by pulsed laser deposition. **Thin Solid Films**, 527: 267-272.
- Shihua, D., Tianxiu, S., Xiaojing, Y., Xiaobing, L., Guobiao, L., 2012. The dielectric properties of BaTiO_3 based ceramics co-doped with Bi/Mn. **Ceramics International**, 38: 33-36
- Singh, S., Krupanidhi, S. B., 2007. Synthesis and structural characterization of $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$ nanotubes. **Physics Letters**, 367: 356-359.
- Singh, S., Jha, P. A., Varma, S., Singh, P., 2017. Large polaron hopping phenomenon in lanthanum doped strontium titanate. **Journal of Alloys and Compounds**, 704: 707-716.
- Smith, W. F., 2006. Malzeme Bilimi ve Mühendisliği, **Literatür Yayıncılık**.
- Stojanovic, B. D., Simoes, A. Z., Paiva-Santos, C. O., Jovalekic, C., Mitic, V. V., Varela, J. A., 2005. Mechanochemical synthesis of barium titanate. **Journal of the European Ceramic Society**, 25: 1985-1989.
- Suzuki, T., Morito, K., Iwazaki, Y., 2005. The latest advances in high-dielectric thin-film capacitor technology for GHz-RF devices. **Integrated Ferroelectrics**, 76: 47-57.
- Tkach, A., Vilarinho, P. M., Senos, A. M. R., Kholkin, A. L., 2005. Effect of nonstoichiometry on the microstructure and dielectric properties of strontium titanate ceramics. **Journal of the European Ceramic Society**, 25: 2769-2772.
- Tkach, A., Vilarinho, P. M., Kholkin, A. L., 2006. Dependence of dielectric properties of manganese-doped strontium titanate ceramics on sintering atmosphere. **Acta Materialia**, 54: 5385-5391.
- Tkach, A., Amaral, J. S., Amaral, V. S., Vilarinho, P. M., 2017. Dielectric spectroscopy and magnetometry investigation of Gd-doped strontium titanate ceramics. **Journal of the European Ceramic Society**, 37: 2391-2397.
- Tiggelman, M. P. J., 2009. Thin film barium strontium titanate capacitors for tunable RF front-end applications. **University of Twente**, The Netherlands.
- Tubchareon, T., Soisuwan, S., Ratanathamaphan, S., Praserttham, P., 2013. Effect of Na-, K-, Mg-, and Ga dopants in A/B-sites on the optical band gap and photoluminescence behavior of $(\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5})\text{TiO}_3$ powders. **Journal of Luminescence**, 142: 75-80.

- Ünal, U., 1999. Preparation and determination of rheological behaviour of fine strontium titanate powder suspensions. **İzmir Institute of Technology** , 1-3s, İzmir.
- Varatharajan, R., Jayavel, R., Subramanian, C., Ramasamy, P., 2000. Growth and characterization of Ce and Nb doped barium strontium titanate single crystals. **Materials Research Bulletin**, 35: 603-611.
- Varatharajan, R., Madeswaran, S., Jayavel, R., 2001. Nb:BST: Crystal growth and ferroelectric properties. **Journal of Crystal Growth**, 225: 484-488.
- Verma, K., Sharma, S., 2012. Influence of addition of copper cadmium ferrite on the dielectric and electrical behavior of BaSrTiO₃ ceramics. **Ceramics International**, 38: 5957-5966.
- Victor, A., Nath, J., Ghosh, D., Boyette, B., Maria, J. P., Steer, M. B., Kingon, A. I., Stauff, G. T., 2006. Noise characteristics of an oscillator with a barium strontium titanate (BST) varactor. **IEEE Proc.-Microw. Antennas Propag.**, Vol.153, 96-102, doi:10.1049/ip-map:20050068.
- Wang, H., Xu, S., Lu, S., Zhao, S., Wang, B., 2009. Dielectric properties and microstructures of CaSiO₃ ceramics with B₂O₃ addition. **Ceramics International**, 35: 2715-2718.
- Wang, X., Zhang, Y., Ma, T., Deng, C., Dai, X., 2012. Effects of MnO₂ concentration on dielectric properties of barium strontium titanate glass ceramics. **Ceramics International**, 38S: 57-60.
- Wang, Z., Cao, M., Yao, Z., Li, G., Song, Z., Hu, W., Hao, H., Liu, H., Yu, Z., 2014. Effects of Sr/Ti ratio on the microstructure and energy storage properties of nonstoichiometric SrTiO₃ ceramics. **Ceramics International**, 40: 929-933.
- Wei, X., Yao, X., 2003. Nonlinear dielectric properties of barium strontium titanate ceramics. **Materials Science and Engineering B**, 99: 74-78.
- Wu, G., Li, P., Xu, D., Luo, B., Hong, Y., Shi, W., Liu, C., 2015. Hydrothermal synthesis and visible-light-driven photocatalytic degradation for tetracycline of Mn-doped SrTiO₃ nanocubes. **Applied Surface Science**, 333: 39-47.
- Xinle, Z., Zhimei, M., Zuojiang, X., Guang, C., 2006. Preparation and characterization on nano-sized barium titanate powder doped with lanthanum by sol-gel process. **Journal of Rare Earths**, 24: 82.
- Yoon, H., Zou, J., Sammes, N. M., Chung, J., 2015. Ru-doped lanthanum strontium titanates for the anode of solid oxide fuel cells. **International Journal of Hydrogen Energy**, 40: 10985-10993.
- Yue, Q., Luo, L., Jiang, X., Li, W., Zhou, J., 2014. Aging effect of Mn-doped Ba_{0.77}Ca_{0.23}TiO₃ ceramics. **Journal of Alloys and Compounds**, 610: 276-280.
- Yüksel, B., 2003. Baryum titanatın mikro yapısına stokiometrinin ve SiO₂ katkısının etkisi. **İstanbul Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü**, 3s, İstanbul.
- Zhang, M., Yu, J., Chu, J., Chen, Q., Chen, W., 2003. Microstructures and photoluminescence of barium titanate nanocrystals synthesized by the hydrothermal process. **Journal of Materials Processing Technology**, 137: 78-81.
- Zhang, Z., Zhao, L., Wang, X., Yang, J., 2004. The preparation and electrical properties of SrTiO₃-Based capacitor-varistor double-function ceramics. **Journal of Sol-Gel Science and Technology**, 32: 367-370.
- Zhang, Y., Wang, L., Xue, D., 2012. Molten salt route of well dispersive barium titanate nanoparticles. **Powder Technology**, 217: 629-633.

Zhou, M., Zhang, J., Ji, L., Wang, Y., Wang, J., Yu, F., 2014. Phase transition and piezoelectric, ferromagnetic response of B-site (Co, Nb) modified BaTiO₃ ceramics. **Ceramics International**, 40: 853-857.



ÖZGEÇMİŞ

Yazar, 1984 yılında Rize'nin Pazar ilçesinde doğdu. İlkokul, Ortaokul ve Lise eğitimini Artvin'in Arhavi ilçesinde tamamladı. Ondokuz Mayıs Üniversitesi Eğitim Fakültesi Kimya Öğretmenliği bölümünü 2003 yılında kazandı ve 2008 yılında lisans eğitimini tamamladı. Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Kimya Anabilim Dalında Eylül 2008-Haziran 2010 tarihleri arasında Yüksek Lisans öğrenimine devam etti ve 2010 yılında Kimya Anabilim Dalından Yüksek Lisans derecesiyle mezun oldu. Eylül 2010 yılında Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Kimya Anabilim Dalında doktora eğitimine başladı. Mart 2011 tarihinde Mustafa Kemal Üniversitesi Teknoloji ve Ar-Ge Uygulama ve Araştırma Merkezi'nde Uzman olarak göreve başladı. Doktora eğitimini Eylül 2011 itibariyle Mustafa Kemal Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Kimya Anabilim Dalında devam ettirdi ve 2018 yılında Kimya Anabilim Dalından Doktora derecesiyle mezun oldu. Halen Mustafa Kemal Üniversitesi Teknoloji ve Ar-Ge Uygulama ve Araştırma Merkezi'nde Uzman olarak görev yapmaktadır.