

T.C.
BİTLİS EREN ÜNİVERSİTESİ
LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ

FİZİK ANABİLİM DALI
DOKTORA TEZİ

BAKIR AĞIRLIKLİ Pt, Pd ALAŞIMLARINDA POLYHEDRON TÜRÜ TOPAKSI
YAPILARIN KRİSTALLEŞME MEKANİZMASINA ETKİSİNİN MOLEKÜLER DİNAMİK
YÖNTEMLE İNCELENMESİ

Ebru TANBOĞA KORKMAZ

AĞUSTOS 2020

FİZİK ANABİLİM DALI

DOKTORA TEZİ

BAKIR AĞIRLIKLİ Pt, Pd ALAŞIMLARINDA POLYHEDRON TÜRÜ TOPAKSI
YAPILARIN KRİSTALLEŞME MEKANİZMASINA ETKİSİNİN MOLEKÜLER DİNAMİK
YÖNTEMLE İNCELENMESİ

Hazırlayan

Ebru TANBOĞA KORKMAZ

Danışman

Doç.Dr. Fatih Ahmet ÇELİK

Jüri Üyeleri

Prof. Dr. Yadigar GÜLSEVEN SİDİR

Doç. Dr. Doç. Dr. Serkan ÖZEL

Doç. Dr. Bayram GÜNDÜZ

Dr. Öğr. Üyesi Şerif RÜZGAR

Doç. Dr. Fatih Ahmet ÇELİK

AĞUSTOS 2020

ONAY

Ebru TANBOĞA KORKMAZ tarafından hazırlanan “**Bakır ağırlıklı Pt, Pd alaşımlarında polyhedron türü topaksı yapıların kristalleşme mekanizmasına etkisinin Moleküler Dinamik yöntemle incelenmesi**”adlı tez çalışması 14.8.2020 tarihinde yapılan sınavla aşağıdaki jüri tarafından oy birliği ile Bitlis Eren Üniversitesi Lisansüstü Eğitim Enstitüsü Fizik Ana Bilim Dalında DOKTORA TEZİ olarak kabul edilmiştir.

Jüri Üyeleri

İmza

Prof. Dr. Yadigar SIDIR GÜLSEVEN

.....

Doç. Dr. Fatih Ahmet ÇELİK

.....

Doç. Dr. Serkan ÖZEL

.....

Doç. Dr. Bayram GÜNDÜZ

.....

Dr. Öğr.Üyesi Şerif RÜZGAR

.....

Bu tezin kabulü, Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulu’ nun....../....../.... gün ve/..... Sayılı karar ile onaylanmıştır.

Prof. Dr. Zeki ARGUNHAN
Enstitüsü Müdürü

BİTLİS EREN ÜNİVERSİTESİ LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ
DOKTORA TEZ ÇALIŞMASI
ETİK BEYANI

Bitlis Eren Üniversitesi Lisansüstü Eğitim Enstitüsü tez yazım kılavuzuna göre hazırlamış olduğum “**Bakır ağırlıklı Pt, Pd alaşımlarında polyhedron türü topaksı yapıların kristalleşme mekanizmasına etkisinin Moleküler Dinamik yöntemle incelenmesi**” adlı tezimin özgün bir çalışma olduğunu, tez hazırlanırken tüm aşamalarda bilimsel etik ilkelerine uygun davrandığımı, tez kapsamında sunulan tüm verileri bilimsel etik ilkelerine uygun elde ettiğimi, tezde faydalandığım tüm eserlere atıf yaptığımı ve kaynaklar kısmında bu eserleri gösterdiğimi beyan ederim. 14/08/2020

EBRU TANBOĞA KORKMAZ

İmza



ÖZET

BAKIR AĞIRLIKLİ Pt, Pd ALAŞIMLARINDA POLYHEDRON TÜRÜ TOPAKSI YAPILARIN KRİSTALLEŞME MEKANİZMASINA ETKİSİNİN MOLEKÜLER DİNAMİK YÖNTEMLE İNCELENMESİ

Ebru TANBOĞA KORKMAZ

Doktora Tezi

Bitlis Eren Üniversitesi, Lisansüstü Eğitim Enstitüsü

Fizik Anabilim Dalı

Danışman: Doç. Dr. Fatih Ahmet ÇELİK

Ağustos 2020, 117 Sayfa

Sunulan çalışmada, Bakır (Cu) ağırlıklı Platin (Pd) ve Paladyum (Pd) ikili alaşım sistemleri (Cu-Pt ve Cu-Pd) ile üçlü alaşım sistemi (Cu-Pt-Pd) Moleküler Dinamik (MD) Benzetim yöntemi ile modellenmiştir. Moleküler dinamik hesaplamalarda Sutton-Chen (SC) Gömülmüş Atom Metodu (GAM) olan yarı-deneysel potansiyel enerji fonksiyonu kullanılmıştır. Model sistemlere amorf faza dönüşümünün gerçekleşmesi için sıvı fazdan itibaren hızlı soğutma işlemi uygulanmıştır. Model sistemlerin kristalleşme özelliklerini incelemek için bakırın farklı konsantrasyon değerlerinde amorf fazdan itibaren farklı tavlama sıcaklıklarında sistemler zamanla bekletilmiştir. Farklı tavlama sıcaklıklarında Avrami katsayıları MD yöntemle hesaplanarak model sistemlerin kristalleşme kinetikleri belirlenmiştir. Tüm bu süreçlerde model sistemlerin yapısal gelişimleri Radyal Dağılım Fonksiyonları (RDF) ile analiz edilmiştir. Ayrıca amorf fazdan kristal faza dönüşüm sürecinde model sistemler içinde meydana gelen polyhedron türü atomik topaklanmalar Honeycutt-Andersen (HA) metoduna dayalı cluster type index (CTIM) metodu kullanılarak elde edilmiştir. Hem ikili hem üçlü alaşım sistemlerinde, tavlama sıcaklığının artmasıyla tüm polyhedron türlerinde genelde artış meydana gelmiştir. Özellikle kristalleşmeye başlamadan önceki kristal türü polyhedronların varlığının , kristalleşme sürecini etkilediği gözlenmiştir. Cu-Pt-Pd model sistemleri için ise kristal türü polyhedron sayısı bakırın konsantrasyonu arttıkça düzenli bir artış eğilimi sergilemiştir

Anahtar kelimeler: Bakır-Platin-Paladyum (Cu-Pt-Pd), Moleküler Dinamik, Kristalleşme, Honeycutt-Andersen (HA) metodu, Cluster Type Index (CTIM) Metot.

ABSTRACT

INVESTIGATION OF EFFECT ON CRYSTALLIZATION MECHANISM OF THE POLYHEDRON TYPE CLUSTER STRUCTURES IN COPPER-BASED COPPER- PLATINIUM-PALLADIUM ALLOYS WITH MOLECULAR DYNAMICS METHOD

Ebru TANBOĞA KORKMAZ

PhD Thesis

Bitlis Eren University Graduate Education Institute

Department of Physics

Supervisor: Asst. Prof. Dr. Fatih Ahmet ÇELİK

August 2020, 117 pages

In this study, Copper (Cu)-based Platinum (Pt) and Palladium (Pd) binary alloy systems (Cu-Pt and Cu-Pd) and ternary alloy system (Cu-Pt-Pd) were modelled by Molecular Dynamic (MD) method. Sutton-Chen (SC) Embedded Atom Method (EAM) based on semi-empirical potential energy function was used for molecular dynamic calculations. The fast cooling rate process from liquid phase was applied to occur the amorphous phase for model systems. The systems were waited for investigating the crystallization properties of model systems at different annealing temperatures from amorphous phase for different copper concentrations. The crystallization kinetics of model systems was determined with Avrami coefficients by calculating MD method at different annealing temperatures. The structural developments of model systems were analysed with Radial Distribution Function (RDF). Also, the polyhedron-type atomic clusters which occur in the model systems were obtained by cluster type index (CTIM) method based on Honeycutt-Andersen method from amorphous phase to crystal phase. In both binary and ternary alloy systems, a general increase has occurred in all polyhedron types with the increase of annealing temperature. It has been observed that the presence of crystal type polyhedrons before crystallization in particular affects the crystallization process. For Cu-Pt-Pd model systems, the number of crystal type polyhedron tended to increase regularly as the concentration of copper increased.

Keywords: Copper-Platinum-Palladium (Cu-Pt-Pd), Molecular Dynamics, Crystallization, Honeycutt-Andersen (HA) method, Cluster Type Index (CTIM) Method.

TEŞEKKÜR

Doktora tez çalışmasının hazırlanmasında ve düzenlenmesinde yardımlarını esirgemeyen ve çalışmalarım boyunca değerli fikirlerinden ve tecrübelerinden yararlandığım, her aşamada yakın ilgi ve desteğini gördüğüm danışman hocam Sayın Doç. Dr. Fatih Ahmet ÇELİK hocama sonsuz teşekkürlerimi sunarım. Ayrıca, Tez İzleme Komitesi (TİK)'nin üyesi olan hocalarım Sayın Prof. Dr. Yadigar GÜLSEVEN SIDIR ve Sayın Doç. Dr. Serkan ÖZEL'e göstermiş oldukları ilgiden dolayı teşekkürlerimi sunarım.

Hayatım boyunca attığım her adımda büyük bir fedakârlıkla beni destekleyen, canım aileme, sevgili anneciğim Zehra TANBOĞA'ya, sevgili babacığım Mustafa TANBOĞA'ya, çok değerli kardeşim Oğuzhan TANBOĞA'ya teşekkürü bir borç bilirim.

Çalışmalarım boyunca, saygı ve sevgisiyle hep yanımda olan, bana çalışma konusunda her zaman desteğini hissettiren, sevgili eşim İshak KORKMAZ'a ve varlığıyla hayata bambaşka gözle bakmamızı sağlayarak mutluluğumuzu katlayan sevgili kızımız Melike KORKMAZ'a çok teşekkür ederim.

İÇİNDEKİLER DİZİNİ

	<u>Sayfa</u>
ÖZET	i
ABSTRACT	ii
TEŞEKKÜR.....	iii
İÇİNDEKİLER DİZİNİ.....	iv
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	v
ÇİZELGELER DİZİNİ.....	vii
SİMGE VE KISALTMALAR DİZİNİ	viii
1. GİRİŞ.....	1
2. MATERYAL ve YÖNTEM.....	4
2.1. Moleküler Dinamik Hesaplamalar.....	4
2.2. Gömülmüş Atom Metodu (GAM).....	6
2.3 Radyal Dağılım Fonksiyonları(RDF).....	7
2.4. Topak Tanımı.....	8
2.5.Honeycutt-Andersen (HA) Metodu.....	9
2.6. Cluster-Type Index Metot (CTIM).....	10
2.7. Süperörgü Türleri.....	13
2.8. Amorf Fazdan Kristalizasyon Mekanizması.....	13
2.9. Amorf Yapıların Kristalizasyonu.....	14
2.10. Johnson-Mehl-Avrami (JMA) Kristalleşme Kinetikleri.....	14
3.BULGULAR VE TARTIŞMA.....	16
3.1. Moleküler Dinamik Hesaplar.....	16
3.2. Model Sistemlerin Kurulumu... ..	16
3.2.1. İkili Alaşım Sistemlerin Kurulumu.....	16

3.2.2. Üçlü Alaşım Sistemlerin Kurulumu.....	20
3.3. İkili Model Alaşım Sistemlerinin İncelenmesi	26
3.3.1. Isıtma Sürecinde Termodinamik Ve Yapısal Özelliklerin İncelenmesi	26
3.3.2. Hızlı Soğutma Sürecinde Termodinamik Ve Yapısal Özelliklerin İncelenmesi.....	40
3.3.3. Tavlama Sürecinde Kristalleşme Mekanizmasının İncelenmesi.....	46
3.3.3.1. Avrami Katsayılarının Belirlenmesi.....	46
3.3.3.2. Polyhedron Türü Topakların Belirlenmesi.....	73
3.4. Üçlü Model Alaşım Sistemlerinin İncelenmesi.....	84
4. SONUÇ VE ÖNERİLER	105
5. KAYNAKLAR.....	111
ÖZGEÇMİŞ.....	117

ŞEKİLLER DİZİNİ

SEKİL

Sayfa

2.1. MD hücresinin Kartezyen koordinat sistemindeki üç boyutlu görüntüsü [58].....	6
2.2. Radyal dağılım fonksiyonunun iki boyutlu örgüde elde edilmesi [64].....	8
2.3. Gaz, sıvı, amorf katı ve kristal için radyal dağılım fonksiyonları [65].....	8
2.4. Farklı türde atomik topaklar [69].....	9
2.5. Honeycutt-Andersen metodunun gösterimi; [71].....	10
2.6. Bazı bağlı çiftlerin şematik gösterimi [21,72].....	11
2.7. Kristal türü polyhedronlar [74].....	12
2.8. Bir alaşım sisteminde hızlı soğutma ile sistem içinde meydana gelen farklı türde Polyhedron türleri[43].....	12
2.9. Bazı süper örgü türlerinin birim hücreleri a) L₁₀ b) L₁₂ c) DO₃ [71].....	12
2.10. Metallerde katılaşmanın ilerleyişinin şematik gösterimi [76].....	13
3.1. Cu-Pd alaşım sistemin faz diyagramı [88].....	16
3.2. Cu-Pt alaşım sistemin faz diyagramı [51].....	17
3.3. Cu-Pt model sistemi için FCC tabanlı L ₁₂ örgüsünün MD hücresi.....	19
3.4. Cu-Pt model sistemi için FCC tabanlı L ₁₂ örgüsünün MD hücresi.....	19
3.5 a) L ₁₁ ve b) B2 süper örgü yapıları.....	20
3.6. Cu-Pt-Pd model sistemin başlangıç olarak kurulan DO ₃ süper örgüye sahip MD hücresinin atomik dağılımı.....	21
3.7. 300K sıcaklıkta 6500 ve 7000 MD adımlarında elde edilen Cu ₇₀ Pt ₂₀ Pd ₁₀ sistemine ait toplam RDF eğrileri.....	22
3.8. 300K sıcaklıkta 7000 MD adımda elde edilen Cu ₇₀ Pt ₂₀ Pd ₁₀ sistemine ait kısmi RDF Eğrileri.....	23
3.9. 300K sıcaklıkta 7000 MD adımda elde edilen Cu ₇₀ Pt ₂₀ Pd ₁₀ sistemine ait kısmi RDF Eğrileri.....	24
3.10. 300K sıcaklıkta 7000 MD adımda elde edilen Cu ₇₀ Pt ₂₀ Pd ₁₀ model sistemine ait L ₁₁ örgüsü ile birlikte B2 örgüsünün gösterimi.....	25
3.11. 300K sıcaklıkta 7000 MD adımda elde edilen Cu ₅₀ Pt ₄₀ Pd ₁₀ model sistemine ait L ₁₁ ile birlikte B2 örgüsünün gösterimi.....	26
3.12. Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemleri için bazı termodinamik parametrelerin MD adımla değişimi.....	27

3.13. Isıtma sürecinde Cu-Pd sisteminin farklı Cu konsantrasyon değerleri için potansiyel enerjinin sıcaklıkla değişimi.....	28
3.14. Isıtma sürecinde Cu-Pt sisteminin farklı Cu konsantrasyon değerleri için potansiyel enerjinin sıcaklıkla değişimi.....	29
3.15. Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemleri için bakırın farklı konsantrasyon değerlerine karşılık erime noktaları.....	30
3.16. Model sistemler için erime sıcaklıklarında elde edilen MD hücresi içindeki atomik dağılım görüntüleri Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemleri.....	31
3.17. Cu %90 konsantrasyonu için Pd ve Pt katkılı model sistemlerin ısıtma sürecinde farklı sıcaklıklardaki RDF eğrileri.....	32
3.18. Cu %80 konsantrasyonu için Pd ve Pt katkılı model sistemlerin ısıtma sürecinde farklı sıcaklıklardaki RDF eğrileri.....	33
3.19. Cu %70 konsantrasyonu için Pd ve Pt katkılı model sistemlerin ısıtma sürecinde farklı sıcaklıklardaki RDF eğrileri.....	34
3.20. Cu %60 konsantrasyonu için Pd ve Pt katkılı model sistemlerin ısıtma sürecinde farklı sıcaklıklardaki RDF eğrileri.....	35
3.21. Isıtma sürecinde Cu-Pd alaşımı için kristal örgü yapısını temsil eden bağlı çiftlerin sıcaklıkla değişimi.....	36
3.22. Isıtma sürecinde Cu-Pt alaşımı için kristal örgü yapısını temsil eden bağlı çiftlerin sıcaklıkla değişimi.....	37
3.23. Isıtma sürecinde Cu-Pd alaşımı için amorf yapıda bulunan topakları temsil eden bağlı çiftlerin sıcaklıkla değişimi.....	38
3.24. Isıtma sürecinde Cu-Pt alaşımı için amorf yapıda bulunan topakları temsil eden bağlı çiftlerin sıcaklıkla değişimi.....	38
3.25. Hızlı soğutma sürecinde bakırın farklı konsantrasyon değerleri için Cu-Pd ve Cu-Pt sistemlerinin farklı sıcaklıklarda elde edilen RDF eğrileri.....	40
3.26. Hızlı soğutma sürecinde 300 K sıcaklıkta bakırın farklı konsantrasyon değerleri için Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemlerinin MD hücresi içindeki atomik dağılım görüntüleri.....	41
3.27. Hızlı soğutma sürecinde bakırın farklı konsantrasyonları için kristal türü bağlı çiftlerin sayısının sıcaklıkla değişimi.....	42
3.28. Hızlı soğutma sürecinde bakırın farklı konsantrasyon değerlerinde Cu-Pt alaşımı için kristal bağlı çiftlerin sayısının sıcaklıkla değişimi.....	43
3.29. Hızlı soğutma sürecinde bakırın farklı konsantrasyon değerlerinde Cu-Pd alaşımı için amorf bağlı çiftlerin sayısının sıcaklıkla değişimi.....	44

3.30. Hızlı soğutma sürecinde bakırın farklı konsantrasyon değerlerinde Cu-Pt alaşımı için amorf bağlı çiftlerin sayısının sıcaklıkla değişimi.....	45
3.31. Cu ₆₀ Pd ₄₀ ve Cu ₆₀ Pt ₄₀ model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 50000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri.....	47
3.32. Cu ₇₀ Pd ₃₀ ve Cu ₇₀ Pt ₃₀ model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 50000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri.....	48
3.33. Cu ₈₀ Pd ₂₀ ve Cu ₈₀ Pt ₂₀ model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 50000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri.....	49
3.34. Cu ₉₀ Pd ₁₀ ve Cu ₉₀ Pt ₁₀ model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 50000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri.....	50
3.35. Cu ₆₀ Pd ₄₀ ve Cu ₆₀ Pt ₄₀ model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 500000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri.....	51
3.36. Cu ₇₀ Pd ₃₀ ve Cu ₇₀ Pt ₃₀ model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 500000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri.....	53
3.37. Cu ₈₀ Pd ₂₀ ve Cu ₈₀ Pt ₂₀ model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 500000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri.....	55
3.38. Cu ₉₀ Pd ₁₀ ve Cu ₉₀ Pt ₁₀ model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 500000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri.....	56
3.39. Cu%60 ve Cu%90 konsantrasyonlu Pt katkılı model sistemler için 400 K tavlama sıcaklığında ve farklı zamanlarda RDF eğrileri.....	57
3.40. Cu%60 ve Cu%90 konsantrasyonlu Pd katkılı model sistemler için 400 K tavlama sıcaklığında ve farklı zamanlarda RDF eğrileri.....	58
3.41. Farklı Cu konsantrasyon değerlerinde Cu-Pd model sistemi için 400 K, 500 K ve 600 K tavlama sıcaklıklarında kristal bağlı çiftlerin toplam sayısının zamanla değişimi.....	60
3.42. Farklı Cu konsantrasyon değerlerinde Cu-Pt model sistemi için 400 K, 500 K ve 600 K tavlama sıcaklıklarında kristal bağlı çiftlerin toplam sayısının zamanla değişimi.....	61

3.43. Bakırın farklı konsantrasyonlarında Cu-Pd model sistemleri için hacim kesitinin (x) zamanla değişimi.....	62
3.44. Bakırın farklı konsantrasyonlarında Cu-Pt model sistemleri için hacim kesitinin (x) zamanla değişimi.....	63
3.45. Cu-Pd model sistemleri bakırın farklı konsantrasyonları için farklı tavlama sıcaklıklarında $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre değişimi.....	65
3.46. Cu-Pt model sisteminde bakırın farklı konsantrasyonları için farklı tavlama sıcaklıklarında $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre değişimi.....	66
3.47. Cu-Pd model sisteminde 400 K sıcaklığında Avrami katsayısı (n)'nin bakırın farklı konsantrasyonları için değişimi.....	68
3.48. Cu-Pd model sisteminde 500 K tavlama sıcaklığında Avrami katsayısı (n)'nin bakırın farklı konsantrasyonları için değişimi.....	69
3.49. Cu ₇₀ Pt ₃₀ model sisteminin tavlama sürecinde 300K (0 ns) ve 400 K tavlama sıcaklığında n=4 Avrami katsayısına karşılık gelen atomik konfigürasyonlarının gösterimi.....	70
3.50. Cu ₈₀ Pt ₂₀ model sisteminin tavlama sürecinde 300K (0 ns) ve 400 K tavlama sıcaklığında n=1 Avrami katsayısına karşılık gelen atomik konfigürasyonlarının gösterimi.....	71
3.51. 600 K sıcaklıkta Cu ₉₀ Pd ₁₀ model sistemine ait tespit edilen polyhedron türleri.....	72
3.52. 600 K sıcaklıkta Cu ₉₀ Pd ₁₀ model sistemine ait tespit edilen bazı polyhedron türlerinin model sistem (MD hücre) içinde gösterimi.....	73
3.53. 600 K sıcaklıkta Cu ₉₀ Pt ₁₀ model sistemine ait tespit edilen polyhedron türleri.....	74
3.54. 600 K sıcaklıkta Cu ₉₀ Pt ₁₀ model sistemine ait tespit edilen polyhedron türlerinin model sistem içinde gösterimi.....	75
3.55. Cu-Pd model sistemine ait tespit edilen polyhedron türlerinin bakır konsantrasyonuna göre değişimi (400 K).....	75
3.56. Cu-Pd model sistemine ait tespit edilen polyhedron türlerinin bakır konsantrasyonuna göre değişimi (500 K).....	77
3.57. Cu-Pd model sistemine ait tespit edilen polyhedron türlerinin bakır konsantrasyonuna göre değişimi (600 K).....	78
3.58. Cu-Pt model sistemine ait tespit edilen polyhedron türlerinin bakır konsantrasyonuna göre değişimi (400 K).....	79
3.59. Cu-Pt model sistemine ait tespit edilen polyhedron türlerinin bakır konsantrasyonuna göre değişimi (500 K).....	80
3.60. Cu-Pt model sistemine ait tespit edilen polyhedron türlerinin bakır konsantrasyonuna	

göre değişimi (600 K).....	81
3.61. K1 (Cu ₅₀ Pt ₁₀ Pd ₄₀) model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 500000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri.....	82
3.62. K2 (Cu ₅₀ Pt ₄₀ Pd ₁₀) model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 500000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri.....	84
3.63. K3 (Cu ₇₀ Pt ₁₀ Pd ₂₀) model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 500000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri.....	85
3.64. K4 (Cu ₇₀ Pt ₂₀ Pd ₁₀) model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 500000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri.....	86
3.65. K5 (Cu ₉₀ Pt ₁₀ Pd ₁₀) model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 500000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri.....	87
3.66. Farklı Pt ve Pd konsantrasyon değerlerinde alaşım sistemleri için 400 K tavlama sıcaklığında kristal bağlı çiftlerin toplam sayısının zamanla değişimi.....	88
3.67. Farklı Pt ve Pd konsantrasyon değerlerinde alaşım sistemleri için 500 K tavlama sıcaklığında kristal bağlı çiftlerin toplam sayısının zamanla değişimi.....	89
3.68. Farklı Pt ve Pd konsantrasyon değerlerinde alaşım sistemleri için 600 K tavlama sıcaklığında kristal bağlı çiftlerin toplam sayısının zamanla değişimi.....	90
3.69. Farklı Pt ve Pd konsantrasyon değerlerinde alaşım sistemleri için 700 K tavlama sıcaklığında kristal bağlı çiftlerin toplam sayısının zamanla değişimi.....	92
3.70. Bakırın farklı konsantrasyonlarında 400 K tavlama sıcaklığında Cu-Pd-Pt model sistemleri için Hacim kesitinin (X) zamanla değişimi.....	93
3.71. Bakırın farklı konsantrasyonlarında 500 K tavlama sıcaklığında Cu-Pd-Pt model Sistemleri için Hacim kesitinin (X) zamanla değişimi.....	94
3.72. Bakırın farklı konsantrasyonlarında 600 K tavlama sıcaklığında Cu-Pd-Pt model sistemleri için Hacim kesitinin (X) zamanla değişimi.....	94
3.73. Bakırın farklı konsantrasyonlarında 700 K tavlama sıcaklığında Cu-Pd-Pt model sistemleri için Hacim kesitinin (X) zamanla değişimi.....	95
3.74. Cu-Pd-Pt model sistemleri bakırın farklı konsantrasyonları için 400 K tavlama sıcaklığında $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre değişimi.....	95

3.75. Cu-Pd-Pt model sistemleri bakırın farklı konsantrasyonları için 500 K tavlama sıcaklığında $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre değişimi.....	97
3.76. Cu-Pd-Pt model sistemleri bakırın farklı konsantrasyonları için 600 K tavlama sıcaklığında $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre değişimi.....	97
3.77. Cu-Pd-Pt model sistemleri bakırın farklı konsantrasyonları için 700 K tavlama sıcaklığında $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre değişimi.....	98
3.78. K4 model sistemine ait 700 K tavlama sıcaklığında $n=1$ Avrami katsayısına karşılık gelen yapının üç boyutla atomik dağılım gösterimleri.....	100
3.79. K4 model sistemine ait 700 K tavlama sıcaklığında $n=3$ Avrami katsayısına karşılık gelen yapının üç boyutla atomik dağılım gösterimleri.....	100
3.80. 500 K sıcaklıkta K4 sistemi içerisinde farklı bölgelerde meydana gelen polyhedronların atomik olarak gösterimi.....	103
3.81. K5 sisteminde bir araya gelen farklı türdeki polyhedronların oluşturduğu atomik topaklar.....	104

ÇİZELGE DİZİNİ

ÇİZELGE

Sayfa

3.1. Cu-Pd ve Cu-Pt alaşımları için ısıtma işlemi sonucu oluşan erime noktası tespiti.....	30
3.2. Bakırın farklı konsantrasyonlarında Cu-Pd model sisteminde için Hacim kesitinin (X) zamanla değişiminden elde edilen eğim (Avrami katsayısı) değerleri.....	68
3.3. Bakırın farklı konsantrasyonlarında Cu-Pt model sisteminde için Hacim kesitinin (X) zamanla değişiminden elde edilen eğim (Avrami katsayısı) değerleri.....	68
3.4. Cu-Pd-Pt alaşımı için ısıtma işlemi sonucu oluşan erime noktası tespiti.....	83
3.5. Bakırın farklı konsantrasyonlarında Cu-Pd-Pt model sistemleri için Hacim kesitinin (X) zamanla değişiminden elde edilen eğim (Avrami katsayısı) değerleri.....	98
3.6. Bakırın farklı konsantrasyonlarında Cu-Pd-Pt model sistemleri için Polyhedron türü topakların sayısının tavlama sıcaklıklarına göre değişimi.....	100

SİMGELER DİZİNİ

A, B, C	Moleküler dinamik hücre vektörler
H	Moleküler dinamik hücre şeklini tanımlayan matris
r_{ij}	i ve j atomları arası uzaklık
S_i	i atomunun konum vektörleri
G	Metrik tensör
$g(r)$	Radyal dağılım fonksiyonu
Δt	İntegrasyon adım büyüklüğü
N	Avrami üsteli/katsayısı
X	Hacim kesiti (volume fraction)
r^*	Kritik yarıçap
K	Kelvin sıcaklık birimi

KISALTMALAR DİZİNİ

MD	Moleküler dinamik
PEF	Potansiyel enerji fonksiyonu
GAM	Gömülü atom metodu
SC-GAM	Sutton-Chen Gömülü atom metodu
ICOS	Ikosahedral
RDF	Radyal dağılım fonksiyonu
FCC	Yüzey Merkezli Kübik
HCP	Hegzagonal Yapı
BCC	Cisim Merkezli Kübik

1. GİRİŞ

Malzeme bilimi ve endüstrisinde yaşanan gelişmelerle birlikte fonksiyonel özelliklere sahip alaşımların teknolojik alanlarda kullanımı oldukça arttığı görülmektedir [1-5]. Bu özellikler nano-boyutta farklı fiziksel özellikler göstermesiyle çeşitlilik göstermiş ve teknolojinin birçok alanında hayatımızı kolaylaştıran ürünlerin oluşumunu sağlamıştır [6-8]. Hemen hemen bütün alanlarda kendini gösteren malzeme bilimindeki bu devrim metallerin, alaşımların, kompozit malzemelerin yanı sıra; nano-malzemeler, biyo-malzemeler, seramik ve cam türü malzemeler ile polimerler türü malzemelerin de birçok sanayi ve teknoloji sektöründe kullanımı arttığı gözlenmektedir [8-10]. Disiplinlerarası araştırmalarda ön planda yer almasıyla birlikte, bu malzemelerin fizik, kimya gibi alanlarda da oldukça sık kullanımı kendini göstermektedir. Son yıllarda daha çok geçiş metallerin oluşturduğu metalik alaşımların ve katı çözeltilerin içinde bulunduğu çalışmalar özellikle bu tür malzemelerin mekanik, elektronik ve optik gibi fiziksel özelliklerinin belirlenmesinde önemli rol oynamıştır [11-13]. Bu metallerin en önemlilerinden sayılan Platin (Pt) ve Paladyum (Pd) metallerinin keşfedilmemiş birçok fiziksel özelliklerinin olduğu bilinmektedir. Teknolojik açıdan büyük öneme sahip olmasından dolayı Pt-Pd, Pt-Ni, Pt-Rh alaşımları üzerine oldukça fazla çalışma yapıldığı görülmektedir. Eşsiz fiziksel özelliklerinin yanı sıra bu metallerin doğada diğer metallere göre daha az bulunması ve bundan dolayı da maliyetinin fazla olması saf olarak Pt-Pd alaşımların yerine Pt ve Pd katkılı alaşımlarının kullanımı tercih edilmiştir [14-16].

Tüm bu avantajlarına rağmen Pt ve Pd katkılı alaşımlarının birçok fiziksel özellikleri hala bilinmemektedir [17]. Bunun en büyük nedenlerinden biri özellikle nano-boyutta bu malzemelerin fiziksel davranışlarının deneysel olarak incelenmesinin zorluğudur [18]. Nano-boyuta doğru gidildikçe malzemenin bulk (hacimli) yapıdaki özellikleri değişmekte ve malzemelerin içyapısında meydana gelen atomik topakların (cluster) veya grupların fiziksel özellikleri ön plana çıkmaktadır [19-21]. Bu tür küçük gruplar çok kısa süre içerisinde yapısal olarak farklı gruplara veya topaklara dönüşüm özelliği gösterdiğinden deneysel araştırmalarda bu tür grupların fiziksel süreçlerini belirlemede yetersiz kalmaktadır [22, 23]. Bilgisayar teknolojisinin gelişmesiyle birlikte bu alanlarda karşılaşılan zorluklar benzetim (simülasyon) çalışmalarını gerekli kılmakta ve araştırmalarda hesaplamalı malzeme bilimi kendini göstermektedir [24-28]. Özellikle, Moleküler Dinamik (MD) benzetim yöntemleri bilgisayar hesaplamalı yöntemlerden biri olmakla beraber, malzemelerin termodinamik, elektronik, optik gibi özelliklerini incelemekte oldukça yaygın biçimde kullanılmaktadır [29-31]. Klasik etkileşimleri dikkate alarak hesaplama yapılan benzetim yöntemleri kullanılmaya başlanmış ve

kuantum kimyasal hesaplamalı yöntemlerinin de oldukça fazla kullanıldığı görülmüştür [32]. Son yıllarda ise bilgisayar destekli paralel işlemcilerin üretilmesi ile birlikte çok fazla sayıda atom ile çalışılmasına olanak veren ve kuantum mekaniksel yaklaşımları mevcut kılabilen bilgisayar paket programları da geliştirilmiştir [33]. Bu sayısal hesaplamalı yöntemlerin malzeme içinde kendini gösteren atomik topakların fiziksel özelliklerini belirlemede daha etkili olduğu anlaşılmaktadır [34]. Halıcıoğlu ve Bauschlicher [35] atomik topaklar üzerine benzetim çalışmalarına dayalı değişik araştırma tekniklerinin sınırlamalarını tartışmışlardır. Honeycutt ve Andersen [36] metodu olarak bilinen çift analiz (pair-analysis) metodu ile atomik topakları meydana getiren bağlı çiftler analiz edilmiş ve bu bağlı çiftlerin geometrik yapılarına bakılarak atomik topakların hangi tür yapıda olduğu belirlenmiştir. Qi and Wang ise cluster index metodu (CTIM) metodunu üzerine çalışmalar yaparak modellenen yapılar içindeki farklı tür polyhedron türü topaklanmaları analiz etmişlerdir [37]. Son yıllarda ise, moleküler dinamik yöntemi farklı malzemelerin farklı fiziksel özellikleri üzerine yapılan çalışmaların oldukça fazla olduğu görülmektedir. Bu çalışmalardan, Bang-yi Yu vd. bu tür topaklanmaları kullanarak Fe-Ni alaşımlarının kristalleşme mekanizmasını incelemişlerdir [38]. Yu Su vd. Zr metalinin sıcaklığa bağlı viskozitesini ve süper-soğutulmuş sıvı Zr'nin fiziksel özelliklerini MD yöntemle araştırmışlardır [39]. Hafız Ghulam Abbas sıvı Te elementinin kısa-mesafe düzenini farklı sıcaklıklarda katılaşma sürecinde yapısal gelişimini klasik MD kullanarak incelemiştir [40]. Anh-Vu Pham vd. Ni atomik topakları üzerine Ni atomları ekleyerek tavlama sürecinde kristal büyüme olayını benzetim yapmışlardır [41]. Celik F.A vd. Ag metali için bu tür atomik topakların bağ yönelim düzeni parametreleri kullanarak faz dönüşüm özellikleri araştırmışlardır [42]. Aynı zamanda CTIM yöntemini kullanarak Cu-Ag alaşımında meydana gelen polyhedron türü topaklanmaları analiz etmiş ve bu tür yapıların faz geçişlerindeki etkileri incelenmiştir [43]. Ying Yang vd, belirli sıcaklıklarda Ni-Cu nano-parçacığın yüzey yeniden oluşum sürecini ve atomik hareket oluşumunu simülasyon yöntemiyle incelemişlerdir [44]. Zang vd, hesaplamalı benzetim metodu kullanarak Ti metali için farklı yönlerden uygulanan basınç ile deformasyon mekanizması üzerine araştırma yapmışlardır [45]. Sengül ve Celtek, Zr-Pt alaşımında hızlı katılaşma sürecinde farklı basınçlarda altında meydana gelen atomik topakların yapısal özelliklerini MD yöntemle incelemişlerdir [46].

Pt ve Pt katkılı ikili Cu-Pd ve Cu-Pt alaşımları üzerine yapılan deneysel çalışmalar literatürde mevcuttur [47-52]. Bununla birlikte, bu tür alaşımlar için hesaplamalı benzetim yöntemleri kullanılarak yapılan çalışmaların daha kısıtlı olduğu görülmektedir. Luyten vd, modifiye edilmiş gömülmüş atom metodu potansiyel fonksiyonu kullanarak Cu₃Pt alaşımı için yüzey segregasyon özelliklerini MD yöntemle incelemişlerdir [53]. Davoodi vd, farklı Pd

konsantrasyonları için $\text{Cu}_x\text{-Pd}_{1-x}$ alařımının ısı kapasitesi, örgü yapısı ve bazı termal özelliklerinin farklı basınçlar altında nasıl deęiřtięini üzerinde çalıřmıřlardır [54]. Özdemir Kart vd., ise Quantum Sutton-Chen (SC) potansiyel fonksiyonu kullanılarak düzenli intermetalik Cu-Pd alařımının termal ve mekanik özelliklerini MD yöntemle incelemiřlerdir [55]. Üçlü Cu-Pd-Pt alařımının atomik topakların ve kristalleřme mekanizmasının atomik topakların yapısal özelliklerine göre deęiřimini MD yöntem ile incelendięi bir çalıřmaya literatürde rastlanılmamıřtır.

Bu tez çalıřmasında farklı Pd ve Pt konsantrasyonları oluřturularak Cu-Pd ve Cu-Pt ikili alařımları ile Cu-Pd-Pt üçlü alařımı moleküler dinamik yöntem kullanılarak modellenmiřtir. Atomik etkileřimler Gömülmüř Atom Metodu (GAM) ile hesaplanmıř ve model sistemler faz uzayında dengelenmesi saęlanmıřtır. Modellenmenin doęruluęunu görmek amacıyla modelleme sonucu elde edilen bazı fiziksel sonuçların deneysel veriler ile uyumlu olduęu belirlenmiřtir. Daha sonra model sistemler belirli bir ısıtma hızı uygulanarak ısıtılmıř ve erime sıcaklıkları belirlenmiřtir. Belirlenen erime sıcaklıklarından itibaren hızlı soęutma iřlemi uygulanmıř ve model sistemlerin sıvı fazdan amorf faza dönüşümü saęlanmıřtır. Amorf fazdan itibaren ise farklı tavlama sıcaklıkları uygulanarak kristal faza dönüşümü gerçekteřtirilmiřtir. Tüm bu süreçlerde meydana gelen faz dönüşümleri Radyal Daęılım Fonksiyonu (RDF) ile incelenmiřtir. Ayrıca, Honeycutt-Andersen (HA) yöntemi ile kristal yapıları ve amorf fazda meydana gelen baęlı çiftler elde edilmiřtir. Her bir model sistem için tüm tavlama sıcaklıklarında kristal yapıları temsil eden baęlı çiftlerin sayısı elde edilerek hacim kesiti (volume fraction) hesaplanmıřtır. Hacim kesitleri kullanılarak Avrami katsayıları hesaplanmıř ve model sistemlerin kristalleřme mekanizması hakkında bilgiler elde edilmiřtir. Yine bu baęlı çiftler kullanılarak Cluster-Type Index (CTIM) metodu ile farklı türde polyhedron topakların yapısal analizi incelenmiř ve bu tür topakların kristalleřme mekanizmasına etkileri arařtırılmıřtır.

2. MATERYAL ve YÖNTEM

2.1. Moleküler Dinamik Hesaplamalar

Moleküler dinamik (MD) yöntemi bir hesaplama hücresi ya da MD hücresi içerisine yerleştirilen parçacıkların klasik mekanik yasalarını temel alarak faz uzayında hareket denklemlerinin hesaplanması ile modellenen sistemin mikroskobik veya makroskobik yapısı hakkında bilgiler veren bir benzetim yöntemidir [56, 57]. Klasik MD yönetiminde temel olarak parçacıkların ilk konumları model sistemi temsil eden örgü düzenine göre oluşturulur ve ilk hızlar tanımlanarak başlangıç aşaması hazırlanır. İkinci aşamada ise sayısal integrasyon algoritmaları kullanılarak model sistemin faz uzayında dengelenmesi sağlanır. Son aşamada denge halinde olan model sistem üzerinde ölçümler yapılması ile sonuçlar elde edilir [58]. Atomik parçacıkların konumlarının MD hücre doğrultularına bağlı olarak değiştiği şekilce ve hacimsel olarak değişen MD yöntemi ilk defa Parrinello-Rahman tarafından tanımlanmıştır. Kübik MD hücresi içindeki bir i parçacığının konumu [59]

$$\mathbf{r}_i = L\mathbf{s}_i = \Omega^{1/3}\mathbf{s}_i \quad (2.1)$$

şeklinde hücre kenarlarına lineer bağımlı olarak tanımlanmıştır. Burada Ω , MD hücresinin hacmi ve $L = \Omega^{1/3}$ olup MD hücre kenarıdır. $\mathbf{s}_i$, elemanları 0 ile 1 aralığında birimsiz sayılardan meydana gelen bir vektördür [58].

Parrinello ve Rahman (PR) tarafından tanımlanan MD hücresinin şekilce ve hacimsel değişimi göz önünde bulundurulmuştur. Bu değişim için MD hücresi eksenleri zamana bağlı üç vektörle tanımlanmıştır [30]. MD hücresi içindeki bir parçacığın konumu;

$$\mathbf{r}_i = \mathbf{A}(t)\xi_i + \mathbf{B}(t)\eta_i + \mathbf{C}(t)\zeta_i \quad (2.2)$$

bağıntısı ile belirlenir. Burada $\mathbf{A}(t)$, $\mathbf{B}(t)$ ve $\mathbf{C}(t)$ vektörlerinin kartezyen koordinatlardaki bileşenleri $\mathbf{h} = (\mathbf{A}, \mathbf{B}, \mathbf{C})$ şeklinde ifade edilen bir matrisle tanımlanır ve

$$\mathbf{h} = \begin{pmatrix} A_x B_x C_x \\ A_y B_y C_y \\ A_z B_z C_z \end{pmatrix} \quad (2.3)$$

olarak yazılır. Sütun vektörleri $\mathbf{s}_i = (\xi_i, \eta_i, \zeta_i)$ olmak üzere $\mathbf{h}$ matrisi

$$\mathbf{r}_i = \mathbf{h} \mathbf{s}_i \quad (2.4)$$

dir. i ve j parçacıkları arasındaki uzaklığın karesi

$$r_{ij}^2 = (\mathbf{s}_i - \mathbf{s}_j)^t \mathbf{G} (\mathbf{s}_i - \mathbf{s}_j) \quad (2.5)$$

ifadesi ile verilmektedir. Burada $\mathbf{G}$ metrik tensör olarak adlandırılır ve

$$\mathbf{G} = \mathbf{h}^t \mathbf{h} \quad (2.6)$$

olarak verilir. t vektör veya tensör transpozunu göstermektedir. MD hücresinin hacmi

$$\Omega = \|\mathbf{h}\| = \mathbf{A} (\mathbf{B} \wedge \mathbf{C}) \quad (2.7)$$

ile verilir. MD hücresinin yüzey büyüklükleri ve yönelimleri $\sigma = (\mathbf{B} \wedge \mathbf{C}, \mathbf{C} \wedge \mathbf{A}, \mathbf{A} \wedge \mathbf{B})$ şeklinde bir matris ile tanımlanır.

Şekil ve hacimce değişebilen (NPH) topluluğunun Lagranjyeni

$$L_{PR} = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N m_i (\dot{\mathbf{s}}_i^t \mathbf{G} \dot{\mathbf{s}}_i) - \Phi(\mathbf{r}) + \frac{1}{2} W \text{Tr}(\dot{\mathbf{h}}^t \dot{\mathbf{h}}) - p_{\text{dış}} \Omega \quad (2.8)$$

şeklinde yazılabilir [58]. Burada $\text{Tr}(\dots)$ tensör izi olarak kullanılmıştır. W kütle boyutunda keyfi bir sabittir. Sistemin hareket denklemleri

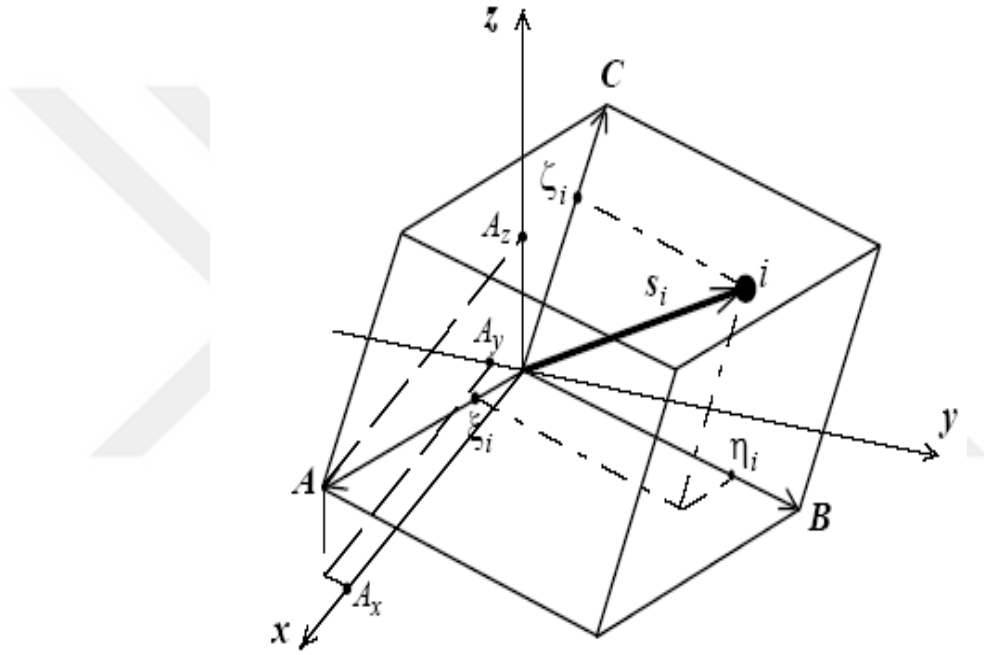
$$\ddot{\mathbf{s}}_i = - \sum_{j \neq i}^N m_i^{-1} \frac{d\phi(r_{ij})}{dr_{ij}} (\mathbf{s}_i - \mathbf{s}_j) - \mathbf{G}^{-1} \dot{\mathbf{G}} \dot{\mathbf{s}}_i \quad \text{ve} \quad \ddot{\mathbf{h}} = W^{-1} (\Pi - P) \sigma \quad (2.9)$$

olarak bulunur. Burada Π mikroskobik zor tensörü olarak adlandırılır ve diyadik formda,

$$\Pi = \Omega^{-1} \left[\sum_{i=1}^N m_i \mathbf{v}_i \mathbf{v}_i - \sum_{i=1}^N \sum_{j>i}^N \frac{d\phi(r_{ij})}{r_{ij}} d\mathbf{r}_{ij} \mathbf{r}_i \mathbf{r}_j \right] \quad (2.10)$$

şeklinde verilir [58].

Şekil 2.1 PR yönteminde düşünülen MD hücresinin kartezyen koordinat sistemindeki üç boyutlu görüntüsünü göstermektedir.



Şekil 2.1. MD hücresinin kartezyen koordinat sistemindeki üç boyutlu görüntüsü [58]

2.2. Gömülmüş Atom Metodu (GAM)

Atomlar arası etkileşimleri tanımlamak için model sisteme uygun bir potansiyel fonksiyonu geliştirilmelidir. Metalik sistemleri ve alaşımların atomik etkileşimlerine uygun çok cisim etkileşimli potansiyel enerji fonksiyonu olan Gömülmüş Atom Metodunda (GAM) bir toplam enerji ifadesi [60, 61],

$$E_{top} = \frac{1}{2} \sum_{i,j} \phi_{ij}(R_{ij}) + \sum_i F_i[\rho_i] \quad (2.11)$$

şeklinde verilir [61]. Burada, iki atom arasındaki (i ve j) etkileşim potansiyeli ϕ_{ij} olarak verilir. $F_i[\rho_i]$, ρ_i yük yoğunluğuna bağlı gömme fonksiyoneldir [61].

$$\rho_i = \sum_{j=(\neq i)}^N \rho_j(r_{ij}) \quad (2.12)$$

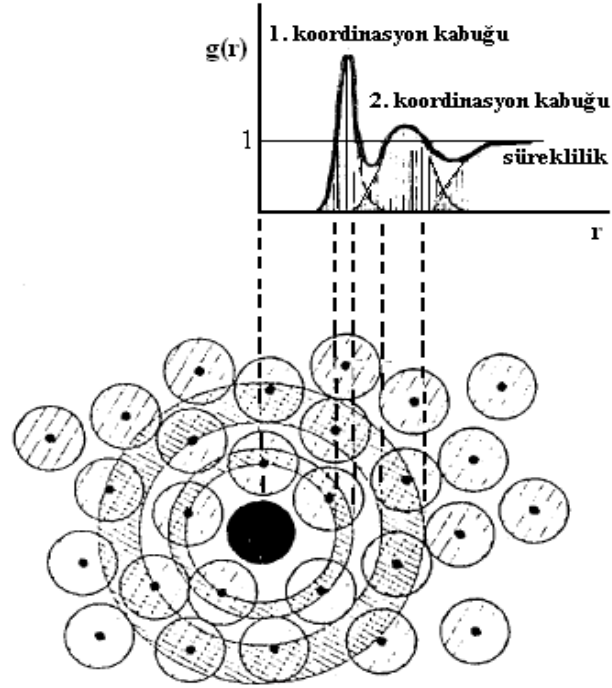
Farklı türde GAM yapıları olmakla beraber son yıllarda Sutton-Chen [62] tarafından farklı bir gömme enerji fonksiyonu tanımlanmış ve benzetim çalışmalarında yaygın bir şekilde kullanılmıştır.

2.3. Radyal Dağılım Fonsiyonları (RDF)

Faz dönüşümleri sırasında atomların uzayda dizilişlerine bağlı olarak model bir sistemin yapısal özelliklerini belirlemek mümkündür. Radyal Dağılım Fonksiyonu (RDF) ile faz dönüşümlerinde sistemin hangi fazda olduğu hakkında bilgi sahibi olunabilir [61]. Referans olarak seçilen bir atomdan $r + dr$ kadar uzaklıkta bulunan Δr kalınlığında ve r yarıçaplı bir hacim elemanı (çember) içinde kalan atomların sayısına bakılır. Bu durumda, $n(r)$, bu hacim elemanı içinde kalan atom sayısıdır [63]. RDF,

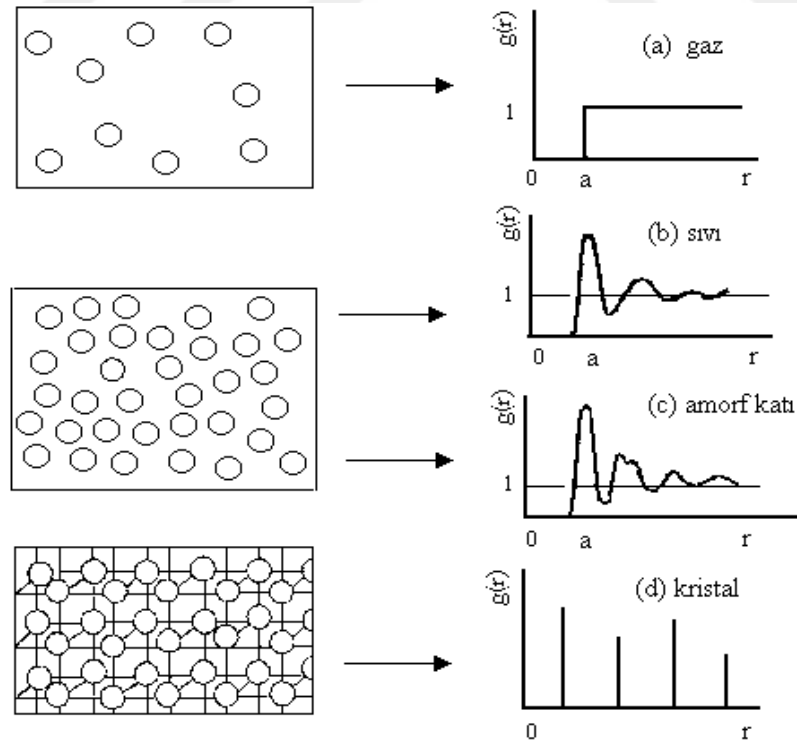
$$g(r) = \frac{\Omega}{N^2} \left\langle \frac{\sum_i n_i(r)}{4\pi r^2 \Delta r} \right\rangle \quad (2.13)$$

şeklinde tanımlanır. Şekil 2.2’de 1., 2.,... n_i . komşu uzaklıklarına karşılık gelen radyal dağılım fonksiyonu eğrisi görülmektedir. İdeal bir kristal sisteminde belirli atomik uzaklıklara karşılık gelen RDF eğrilerinin pik şiddetleri daha keskindir ve uzun mesafe düzeninden dolayı daha fazla pik görülmektedir. Sıvı ve amorf gibi atomik dağılımların daha düzensiz olduğu kısa-mesafe düzenine sahip fazlarda ise en yakın komşu uzaklığında bir pik mevcut olup bu pik bu uzaklıkta atomların bulunma olasılığının yüksek olduğunu gösterir. Daha sonraki piklerin, r uzaklığı arttıkça, ikinci, üçüncü, komşu uzaklıklara bağlı olarak şiddetlerinde azalma olur ve sonunda ortalama yoğunluk bir noktada sabitleşir [58].



Şekil 2.2. Radyal dağılım fonksiyonunun iki boyutlu örgüde elde edilmesi [64]

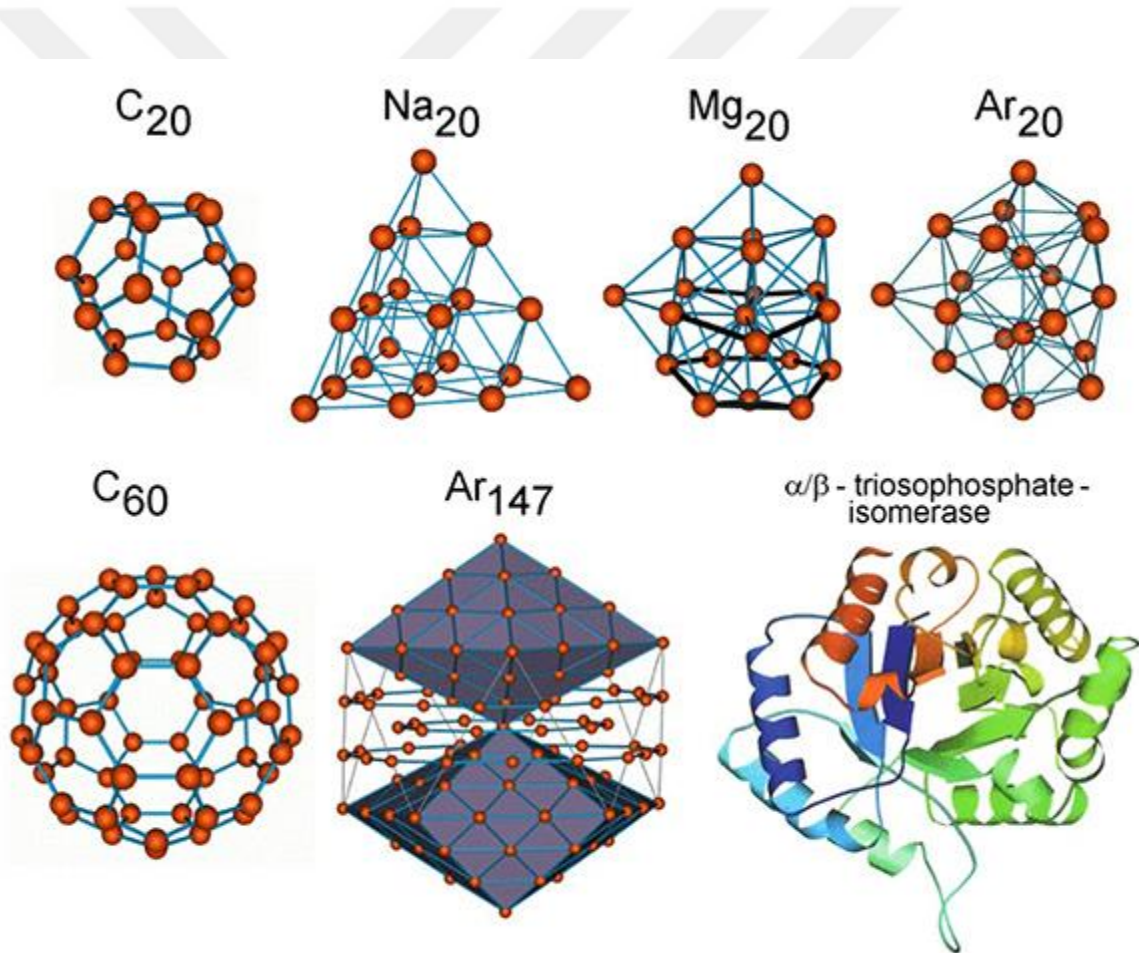
Şekil 2.3'te sıvı metallerin ve amorf katıların, kristal ve bir gazın atomik dağılım fonksiyonu verilmiştir.



Şekil 2.3. Gaz, sıvı, amorf katı ve kristal için radyal dağılım fonksiyonları [65]

2.4. Topak Tanımı

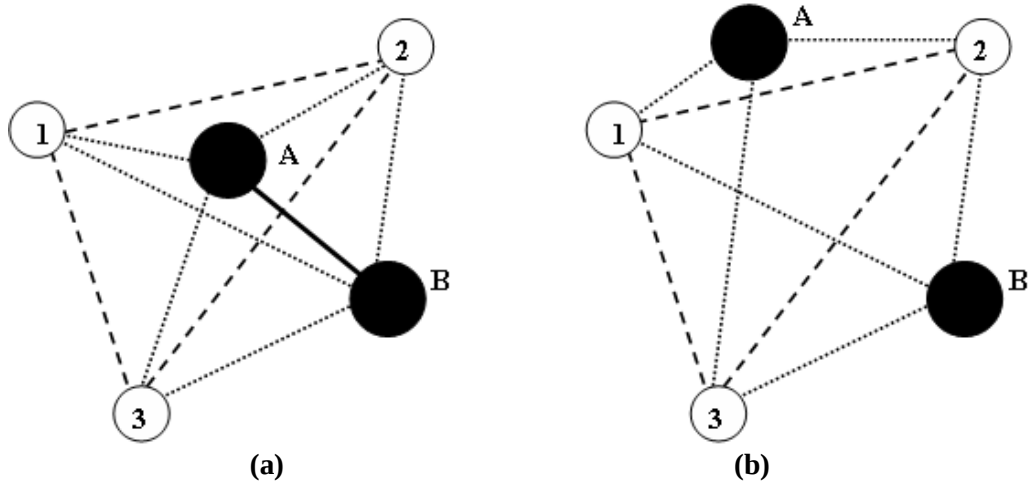
Topaklar farklı şartlar altında bir arada tutulan atom ya da molekül topluluğu olmakla beraber, bulk (hacimli) maddeler ve küçük moleküller arasında bir köprü görevi yapan atom grupları şeklinde tanımlanabilir [66, 67]. Son zamanlarda yapılan araştırmalar atomik topakların hacimli katı maddelerden ve moleküllerden daha farklı olan fiziksel özelliklerini ortaya koymuştur. Özellikle maddelerin iç dinamiklerini oluşturduğundan maddelerin elektronik, mekanik ve termodinamik özelliklerini belirlemede birinci dereceden rol oynadıkları düşünülmektedir [68]. Atomik topaklar kompozisyona bağlı topaklar, çevreye bağlı topaklar ve büyüklüğe bağlı topaklar olmak üzere üç temel kısımda incelenebilir. Şekil 2.4’de farklı türde atomik topakların görüntüsünü verilmektedir [69].



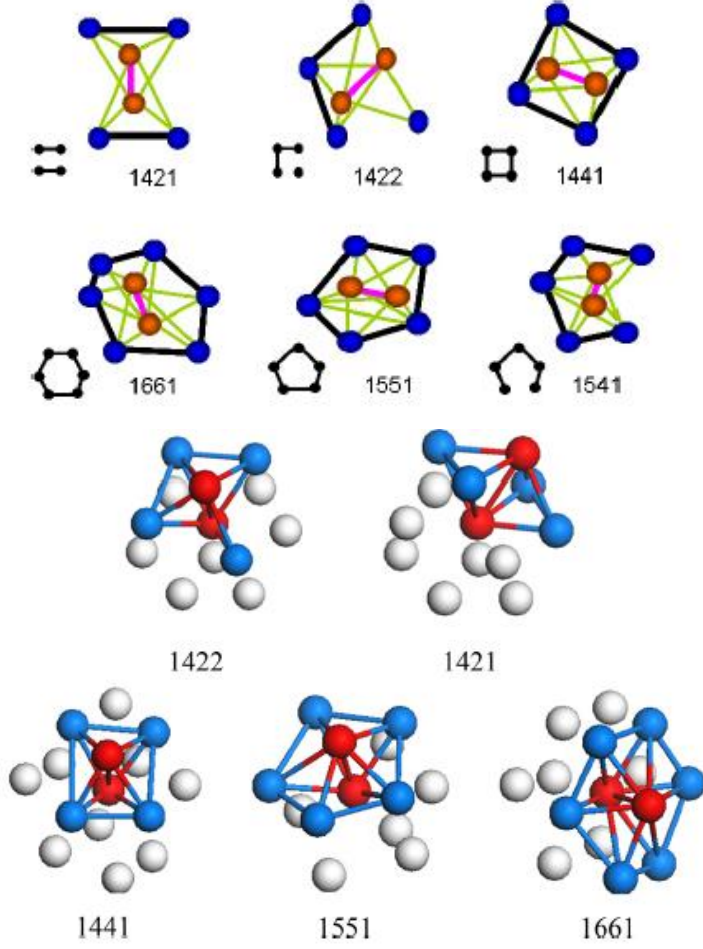
Şekil 2.4. Farklı türde atomik topaklar [69]

2.5. Honeycutt-Andersen (HA) Metodu

Honeycutt-Andersen atomik topakların temel yapısını oluşturan, çok az sayıda komşu atoma sahip, kristal ve amorf yapılarda meydana gelen veya kendisini gösteren çok küçük boyutta atomik grupları belirleyen bir yöntem geliştirmiştir [36]. Bir atomik topağın amorf yapıyı temsil eden bir topak mı yoksa kristal yapıyı temsil eden bir topak mı olduğunu tespit etmek için o topağı meydana getiren az sayıda atomun meydana getirdiği bağlı çiftlere bakılır. HA analizine göre bir atomik topağı temsil eden veya onun hangi yapılardan meydana geldiğini gösteren dört temel indis mevcuttur (Şekil 2.5). Belirlenen bir kesim (cut-off) uzaklığı ile iki atomun bağlı olup olmadığına bakılır ve böylece bir atom grubunun (bağlı çift) temel özellikleri belirlenir. Örnek olarak; 1331 bağlı çifti ideal bir icosahedral (icos) topağın temel bağlı çifti olup; 1 indisi bir atom çifti arasında bağlanma olduğunu gösterir, 3 indisi her iki atom çiftine bağlı en yakın komşu atomu sayısıdır, diğer 3 indisi bu en yakın komşular arasındaki yapılan bağ sayısını ifade etmektedir. Son indis ise, atomik topaklar arasında geometrik farklılığı belirtir [36]. Bu durumda, 1551 bağ çifti ideal (yapısal olarak kusursuz) icos topağını oluşturan temel bağlı çiftler iken, 1541 ve 1431 bağlı çiftler ise defekte olmuş (yapısal olarak kusurlu) icos topaklarının temel bağlı çiftleridir. 1421 yüzey merkezli kübik yapı (fcc), 1422 bağ çifti ise Hegzagonal sıkı-paket (hcp) yapısını temsil eder. 1661 ve 1441 bağlı çiftler ise cisim merkezli kübik (bcc) yapısının temel yapısını oluşturur [70]. Bazı bağlı çiftlerin görüntüleri Şekil 2.6'da gösterilmektedir [71].



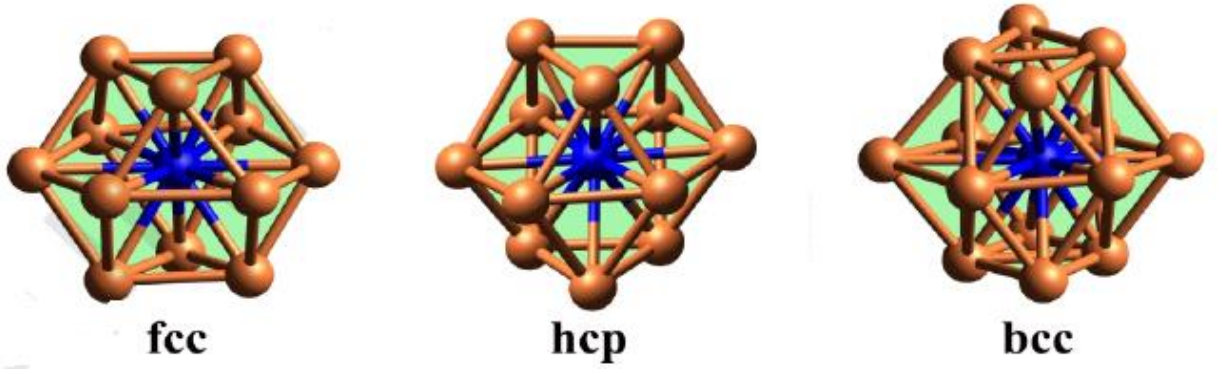
Şekil 2.5. Honeycutt-Andersen metodunun gösterimi; kalın düz çizgi birbiriyle bağ yapan kök (root) çiftini, noktalı çizgi kök çiftle bağ yapan komşu atomları ve kesikli çizgi komşu atomların kendi arasında yaptığı bağları temsil etmektedir. **a)** 1331 bağlı (bonded) çifti ve **b)** 2331 bağısız (non-bonded) çifti [71]



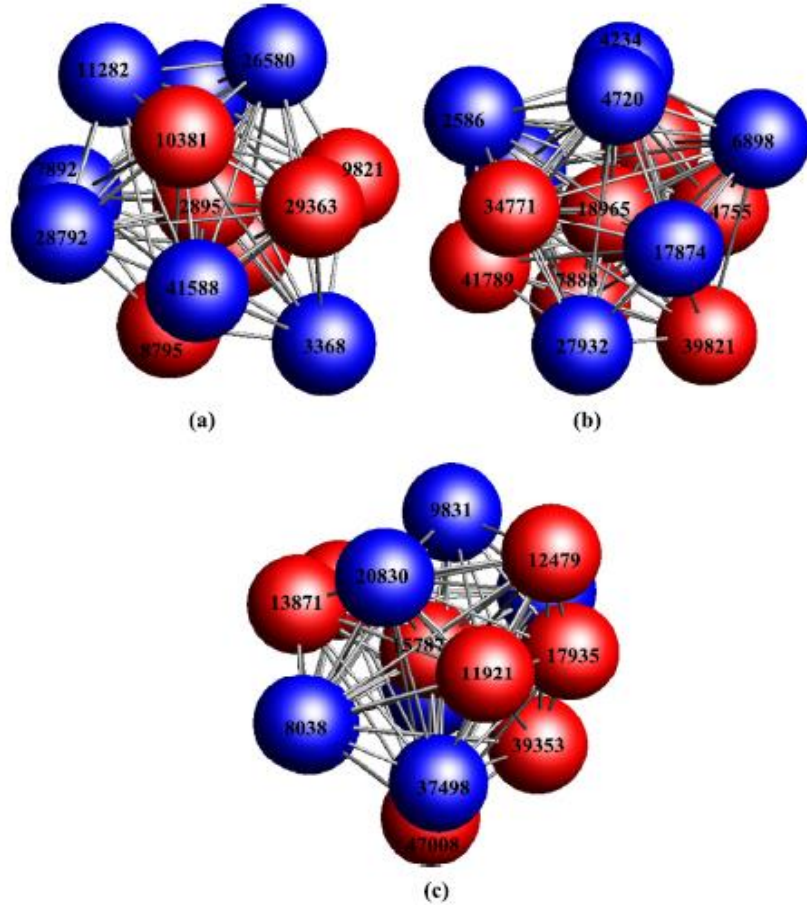
Şekil 2.6. Bazı bağlı çiftlerin gösterimi [21, 72]

2.6. Cluster-Type Index Metot (CTIM)

HA analizine göre belirlenen farklı yapıdaki bağlı çiftlerin oluşturduğu kombinasyonlar ile sistem içinde meydana gelen polyhedronların belirlemek mümkündür. Cluster-type index metot (CTIM) metoduna göre dört tam sayı ile farklı tür polyhedron türü yapılar incelenebilir [37, 73]. Örnek olarak; (12 0 12 0) olarak nitelendirilen ideal icosahedral polyhedron yapısında ilk sayı merkez atomun sahip olduğu komşu atom sayısını (12), ikinci sayı 1441 türü bağlı çiftlerin sayısı, üçüncü sayı 1551 türü bağlı çiftlerin sayısını, dördüncü sayı ise 1661 türü bağlı çiftlerin sayısını göstermektedir. (13 1 10 2) polyhedronu bir defekte olmuş (yapısal olarak bozulmuş) icosahedral yapıyı temsil etmektedir. Önemli olarak nitelendirilen polyhedron türlerinden biri Frank-Kasper (FK) polyhedronu (14 0 12 2), Bernal polyhedronu ise (10 2 8 0) ile temsil edilir [73]. Şekil 2.7’de kristal türü polyhedronların görüntüsü [74], Şekil 2.8’de ise amorf yapıda görülen farklı türdeki polyhedronların görüntüsü verilmiştir [43].



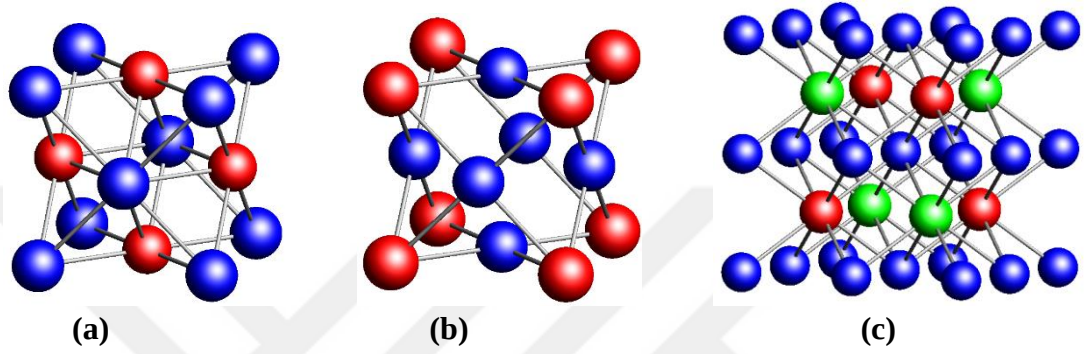
Şekil 2.7. Kristal türü polyhedronlar [74]



Şekil 2.8. Bir alaşım sisteminde hızlı soğutma ile sistem içinde meydana gelen farklı türde polyhedron türleri. a) ideal icosahedron b) defekte olmuş icosahedron c) FK türü polyhedron [43]

2.7. Süper Örgü Türleri

Katı çözeltiler veya alaşımlar düşük sıcaklıklarda atomların örgü noktalarına düzenli bir şekilde yerleşmesiyle birlikte düzenli yapıları meydana getirirler. Fakat kritik bir sıcaklıktan sonra atomların dizilişinde rastgelelik hakim olmaya başlar [61]. Bununla birlikte, örgünün temel kristal yapısına bağlı olarak $L1_0$, $L1_1$, $L1_2$ ve DO_3 türü süper örgü yapıları mevcuttur [75]. Bazı süper örgülerin üç boyutta gösterimi Şekil 2.9'da verilmiştir.

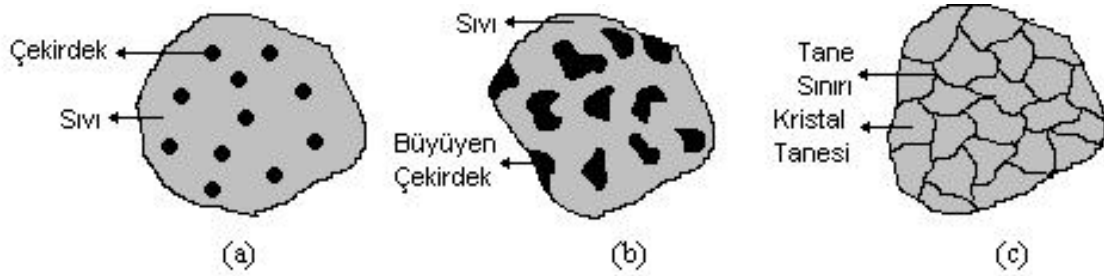


Şekil 2.9. Bazı süper örgü türlerinin birim hücreleri a) $L1_0$ b) $L1_2$ c) DO_3 [71]

2.8. Amorf Fazdan Kristalizasyon Mekanizması

Faz dönüşümlerinde başlangıç fazından fiziksel ve yapısal olarak özellikleri bakımından farklılık gösteren en az yeni bir faz oluşumu gerçekleşir [76]. Katılaşma süreci de atomik diziliş kısa mesafeli düzenden uzun mesafeli düzene bir başka deyişle kararlı kristal yapıyı oluşturma kadar devam eder. Sıvı fazdan kristal faza dönüşümün gerçekleşmesi çekirdeklenme ve büyüme olmak üzere iki aşamadan meydana gelir [77]. Çekirdeklenme homojen ve heterojen çekirdeklenme olarak ikiye ayrılır ve bu safhada yaklaşık olarak birkaç yüz atomdan oluşan ve büyüme yeteneği olan parçacıklar meydana gelir. Çekirdeklenme, küçük katı parçacıkların sıvıdan embriyolaşması ile olur [77] ve bu embriyonun etrafında büyüme meydana gelerek madde katılaşır. Çekirdek kararlı olmadan önce minimum kritik yarıçapa gelmelidir. Eğer atom grubunun yarıçapı kritik bir yarıçapa ulaşırsa parçacıkların bir araya gelip büyümesi devam eder. Yarıçap kritik bir değeri aşamaz ise atom grupları dağılmaya başlayarak sıvı içerisinde çekirdeklenme olayını tamamlayamaz. Bu kritik yarıçapa sahip parçacıklara embriyo, bu boyutun üzerindeki parçacıklara da çekirdek adı verilmektedir. Şekil 2.10'da sıvı içerisindeki

atomların çekirdeklenmesi sonucu son katının tane yapısının oluşumu şematik olarak gösterilmektedir [76, 77].



Şekil 2.10. Metallerde katılaşmanın ilerleyişinin şematik gösterimi [76]

2.9. Amorf Yapıların Kristalizasyonu

Amorf faz kararsız diyebileceğimiz yarı kararlı bir faz olduğundan enerjisini düşürerek daha kararlı bir faza dönüşme eğiliminde olur. Bununla beraber, mükemmel manyetik davranış ve yüksek korozyon direnci gibi amorf yapıların en önemli özelliklerinin, kristalleşme sürecinde kayboldukları gözlenmiştir [78, 79]. Nano-boyutta amorf katıların kristalleşmesi nano-kristalleşme olarak adlandırılır. Metalik camdaki nano-kristal oluşumu iki adımda meydana gelir. a) sıvı alaşımının soğutulması ile amorf yapının oluşumu b) tavlama (annealing) ile amorf yapının kristalleşme sürecinin tamamlanması. Amorf faz içinde gömülmüş olarak bulunan nano-kristallerin karışık bir yapıya sahip dört temel ölçütü mevcuttur [79]. Bu ölçütler sırasıyla; çok kademeli kristalleşme süreci, amorf fazda homojen çekirdeklerin varlığı, nano-kristal/amorf ara yüzeyinde düşük atomik difüzyonu ile çözünen elementin ayrışmasından kaynaklanan reaksiyon baskısı, geriye kalan amorf fazın yüksek termal kararlılığı şeklinde sıralanabilir. Amorf katıların kontrollü kristalleşmesinde çekirdeklenme kadar kristal büyüme de meydana gelir. Büyüme sürecinde düzensiz amorf yapıda gelişen ve kristal topakların yapısal özelliklerine bağlı olarak kurulan periyodik örgünün düzenlenme hızı ile amorf-kristal ara yüzey ısı akış hızı önemli faktörlerdir [79, 80].

2.10. Johnson-Mehl-Avrami (JMA) Kristalleşme Kinetikleri

Deneysel olarak elde edilen çeşitli ölçümlerin sonuçları kullanılarak herhangi bir malzemenin aktivasyon enerjisi, reaksiyon hızı ve Avrami katsayısı (üsteli) gibi parametrelerin hesaplanması ve bu hesaplanan parametrelere göre bir malzemenin kristalleşme kinetiklerine bağlı olan özellikleri belirlenebilir [81]. Bu kristalleşme kinetikleri JMA üçlüsü tarafından tasarlanmış ve daha sonra farklı araştırmacılar tarafından geliştirilmiştir [82]. Sabit sıcaklıkta kristalleşme kinetikleri JMA denklemi ile belirlenir,

$$-\ln(1-x) = (kt)^n \quad (2.14)$$

Burada x bir t süresinde dönüşüme uğrayan hacim kesiti (volume fraction), n Avrami katsayısı (üsteli) ve k ise çekirdeklenme ve büyüme sürecindeki reaksiyon hızıdır. Bu denklem logaritmik olarak,

$$\ln[-\ln(1-x)] = n \ln(k) + n \ln(t) \quad (2.15)$$

şeklinde yeniden yazılabilir [83]. Hacim kesitindeki değişim göz önüne alındığında, $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre grafiğinin eğimi alınır ve Avrami katsayısı ya da üsteli (n) hesaplanabilir. Deneysel olarak elde edilen sonuçlara göre, Avrami katsayısının alacağı değerler 1 ile 4 arasında olup, genel anlamda şu şekilde yorumlanmaktadır [84]. Eğer $n=1$ değerini alır ise; yüzeysel çekirdeklenme ve tek boyutta büyüme, $n=2$ değerini alır ise; hacimsel çekirdeklenme ve tek boyutta büyüme, $n=3$ değerini alır ise; hacimsel çekirdeklenme ve iki boyutta büyüme, $n=4$ değerini alır ise; hacimsel çekirdeklenme ve üç boyutta büyüme gerçekleşir [84, 85].

3. BULGULAR VE TARTIŞMA

3.1. Moleküler Dinamik Hesaplamalar

Benzetim çalışmasında, SC-GAM çok cisim etkileşmeli potansiyel enerji fonksiyonu (PEF) tabanlı MD yöntem kullanılarak ikili Cu-Pd, Cu-Pt ile üçlü Cu-Pd-Pt sistemler MD modellenmiştir. PEF güvenilirliğini tespit etmek amacıyla model sistemlerin deneysel olarak bilinen parametreleri kullanılarak faz uzayında dengeye getirilmiş ve geçerlilik sınırları test edilmiştir.

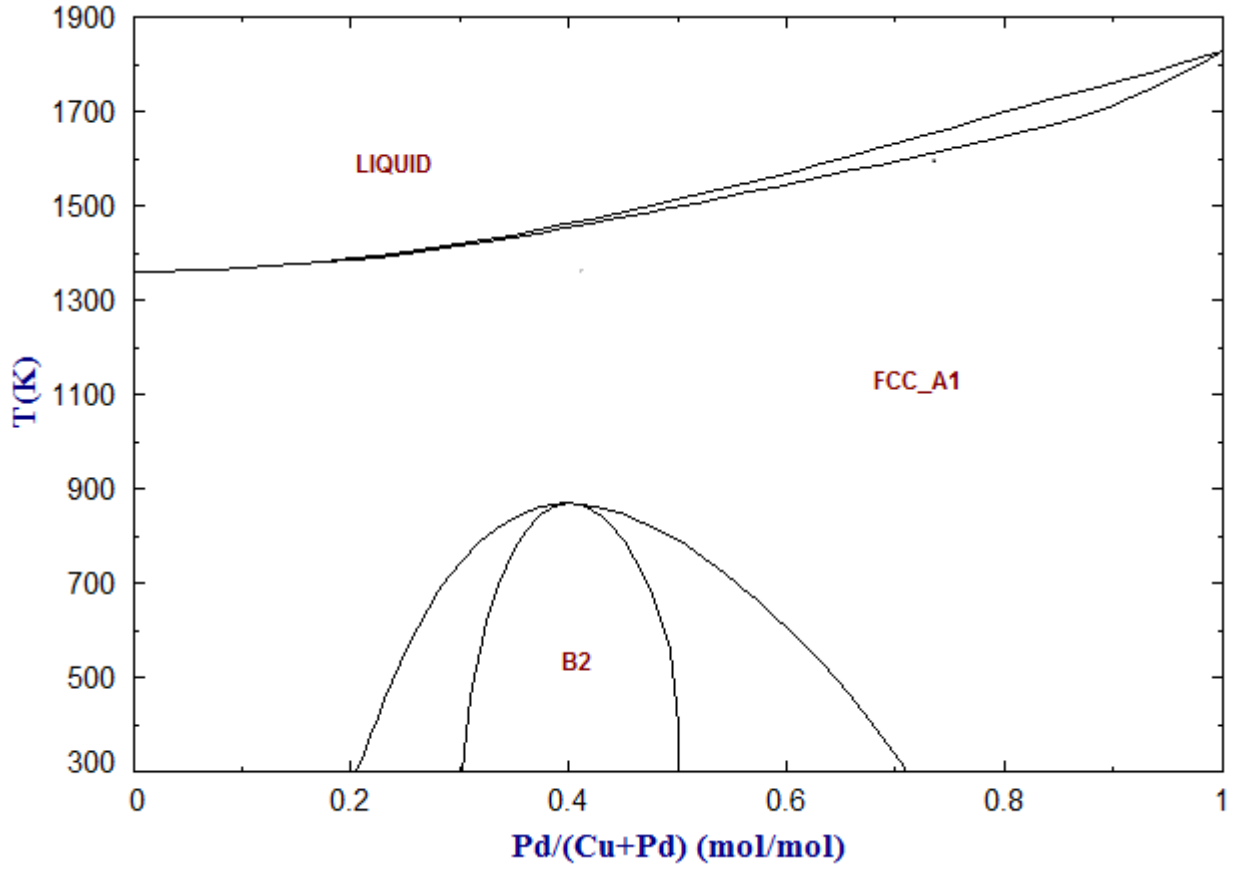
Model sistemleri tanımlayan PEF için gerekli parametreler yapılan çalışmalardan alınmış ve bu çalışmada kullanılmıştır [54, 86]. Konsantrasyon etkisini belirlemek amacıyla, Cu atomuna Pd ve Pt katkısı her iki ikili model alaşım sistemlerine $\text{Cu}_{90}\text{Pt}_{10}$, $\text{Cu}_{80}\text{Pt}_{20}$, $\text{Cu}_{70}\text{Pt}_{30}$, $\text{Cu}_{60}\text{Pt}_{40}$ ve $\text{Cu}_{90}\text{Pd}_{10}$, $\text{Cu}_{80}\text{Pd}_{20}$, $\text{Cu}_{70}\text{Pd}_{30}$, $\text{Cu}_{60}\text{Pd}_{40}$ olacak şekilde uygulanmıştır. Üçlü model alaşım sistemi kurgusunda ise, Pd ve Pt katkısı $\text{Cu}_{50}\text{Pt}_{20}\text{Pd}_{10}$ (K1), $\text{Cu}_{50}\text{Pt}_{40}\text{Pd}_{10}$ (K2), $\text{Cu}_{70}\text{Pt}_{10}\text{Pd}_{20}$ (K3), $\text{Cu}_{70}\text{Pt}_{20}\text{Pd}_{10}$ (K4), $\text{Cu}_{90}\text{Pt}_{05}\text{Pd}_{05}$ (K5) şeklinde oluşturulmuştur. MD hesaplama hücresi ikili model alaşım sistemleri için 4000 atomlu olacak üç boyutta periyodik sınır şartları uygulanarak oluşturulmuştur. Cu-%40Pd alaşım modeli için atomlar MD hücresine 2400 atom Cu, 1600 atom Pd olacak şekilde dağıtılmıştır. Üçlü model sistem için atom sayısı 4394 olacak şekilde belirlenmiştir. Atomik dağılımlar diğer model alaşım sistemlerine de atomik konsantrasyon oranlarına göre dağıtılmıştır. Başlangıç atom hızlarının belirlenmesinde istenilen sıcaklığa uygun Maxwell hız dağılımı kullanılmıştır. Δt integrasyon adımı $\Delta t = 0,002t$ olarak seçilmiştir. Burada t Einstein çarpışma periyodu olarak bilinmektedir [58]. Tüm model sistemler için birim MD adımı 3.324 fs olarak belirlenmiştir. Birim uzunluk 3.61 Å, birim enerji ise 1.238×10^{-2} eV olarak belirlenmiştir. Yapılan çalışmalarda kullandığımız 5. mertebeden öngörücü düzeltici Gear algoritması için bir integrasyon adım büyüklüğü seçilmiştir.

3.2. Model Sistemlerin Kurulumu

3.2.1. İkili Alaşım sistemlerinin Kurulumu

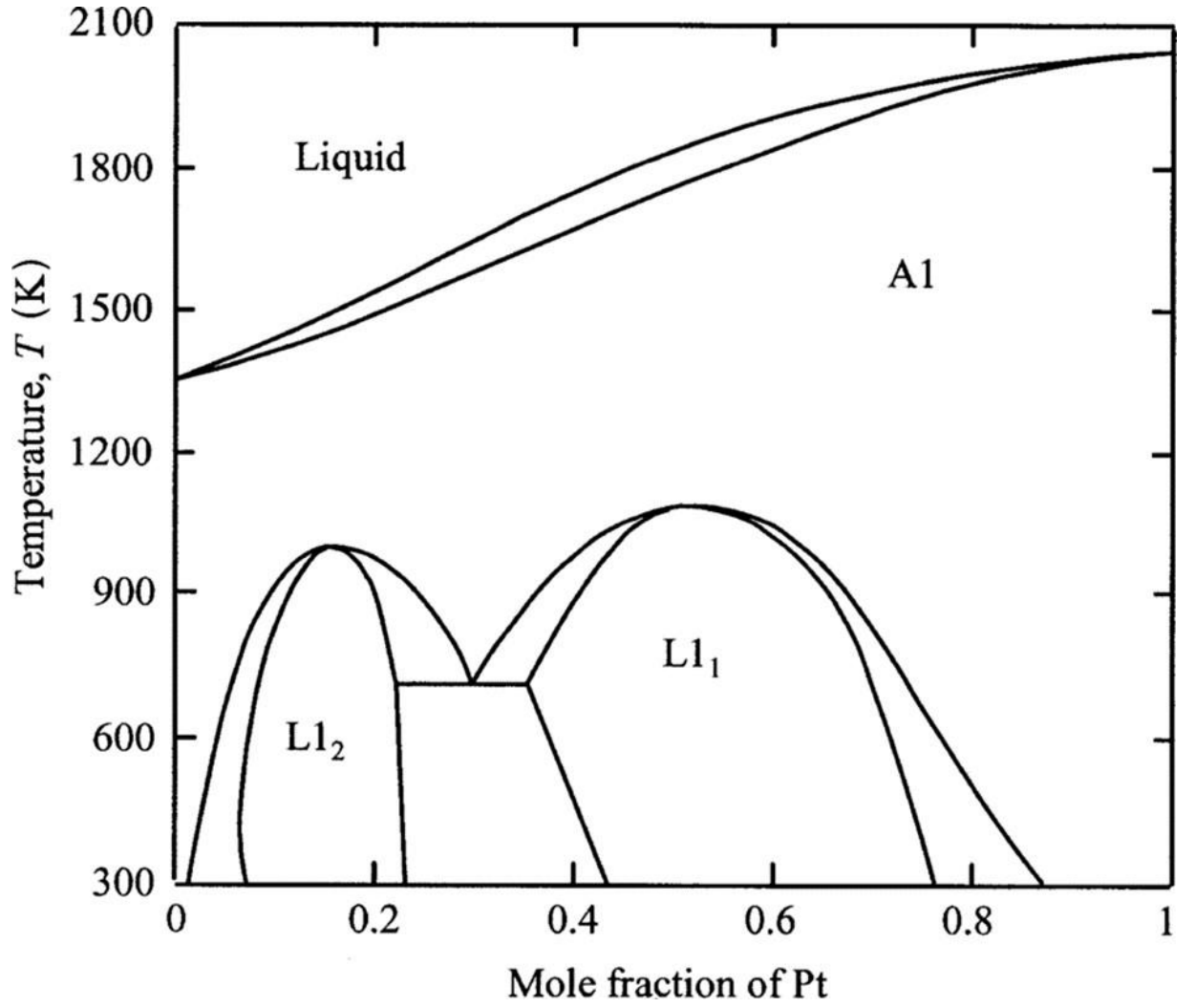
Cu-Pd model sistemi için atomların kristal örgü noktalarına yerleşimi deneysel olarak bilinen faz diyagramına uygun olarak oluşturulmuştur. Cu-Pd için faz diyagramı Şekil 3.1’de gösterilmektedir. Faz diyagramı incelendiğinde, yaklaşık 500 ile 871 K arasında Pd’nin farklı konsantrasyonlarına göre değişen faz geçişleri görülmektedir. Bunun dışındaki tüm sıcaklıklarda $\text{Cu}_{1-x}\text{Pd}_x$ yapısının düzensiz yüzey merkezli kübik (FCC) yapıya sahip katı çözelti olduğu

bilinmektedir [87]. Dolayısıyla başlangıç olarak Cu-Pd model sisteminin MD hücresi düzensiz FCC yapısında kurulmuştur.



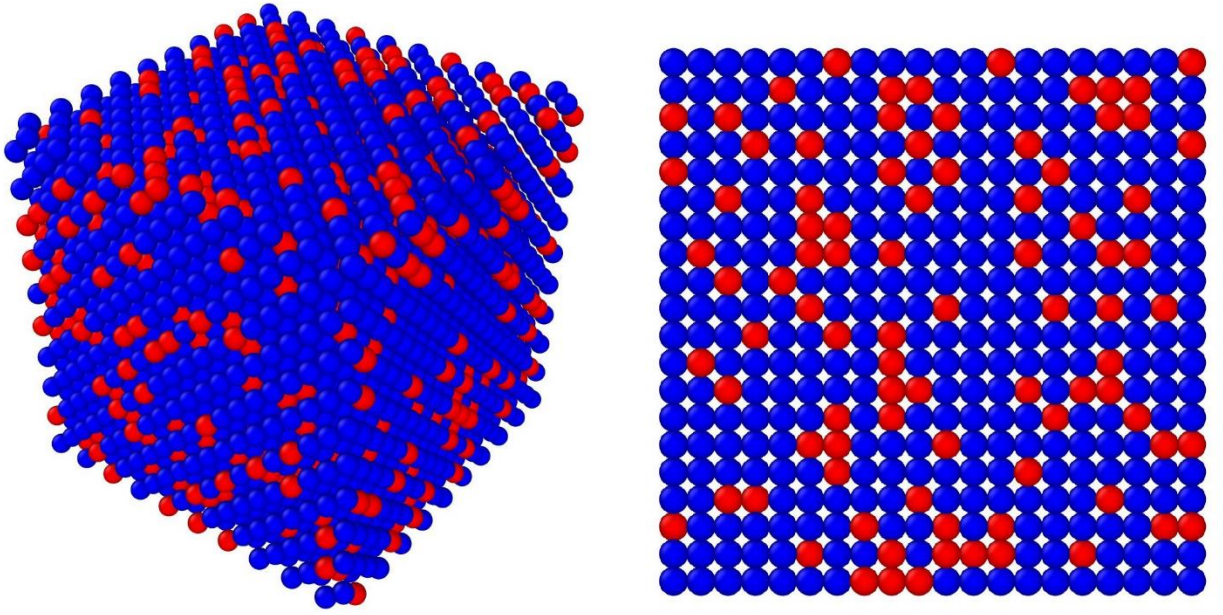
Şekil 3.1. Cu-Pd alaşımlar sisteminin faz diyagramı [88]

Cu-Pt yapısı için deneysel olarak bilinen faz diyagramı, Şekil 3.2’de verilmiştir. Bakır ağırlıklı konsantrasyon değerleri için kristal örgünün $L1_2$ süper örgü yapısında olduğu görülmektedir. Dolayısıyla başlangıç olarak Pt’nin belirlenen konsantrasyon değerleri için MD hücresi, başlangıç olarak $L1_2$ süper örgü yapısında kurulmuştur.

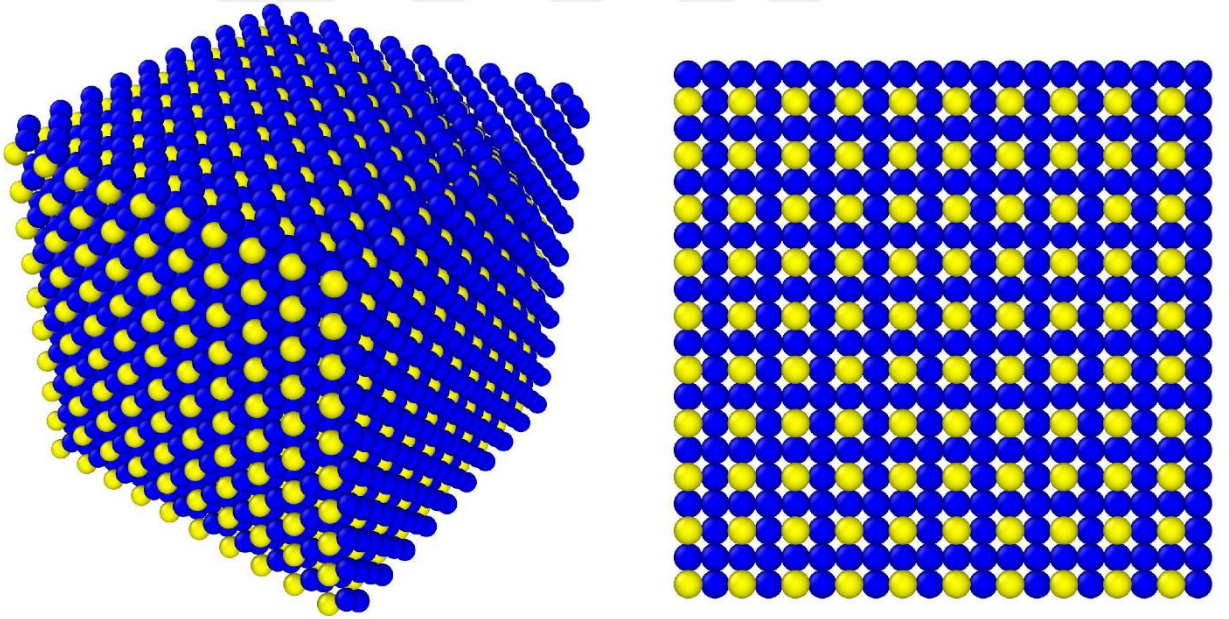


Şekil 3.2. Cu-Pt alaşım sistemin faz diyagramı [51]

Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemlerinin başlangıç örgü yapılarının üç boyutta gösterimleri, Şekil 3.3 ve Şekil 3.4’de verilmiştir. Cu-Pt model sistemi için bakırın konsantrasyon oranına göre atomik dağılımlar ilk önce süper örgü noktalarına yerleşmesi sağlanmıştır. Geriye kalan işgal atomları ise gelişigüzel olarak örgü noktalarına yerleştirilmiştir. Cu-Pd model sistemi için ise bakırın tüm konsantrasyon oranları için atomik dağılım örgü noktalarına düzensiz olarak yerleştirilmiştir.



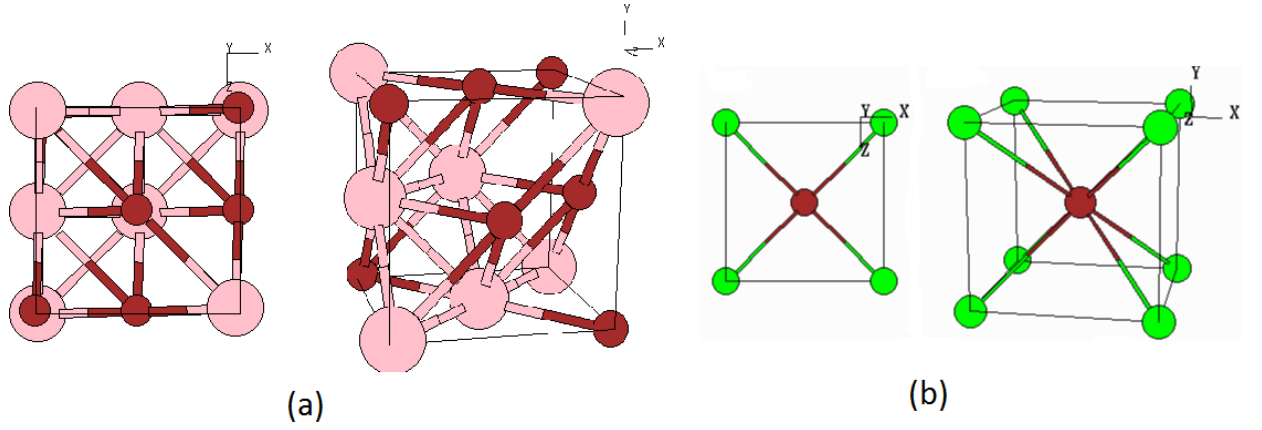
Şekil 3.3. Cu-Pd model sistemi için düzensiz FCC örgüsünün MD hücresi



Şekil 3.4. Cu-Pt model sistemi için FCC tabanlı L₁₂ örgüsünün MD hücresi

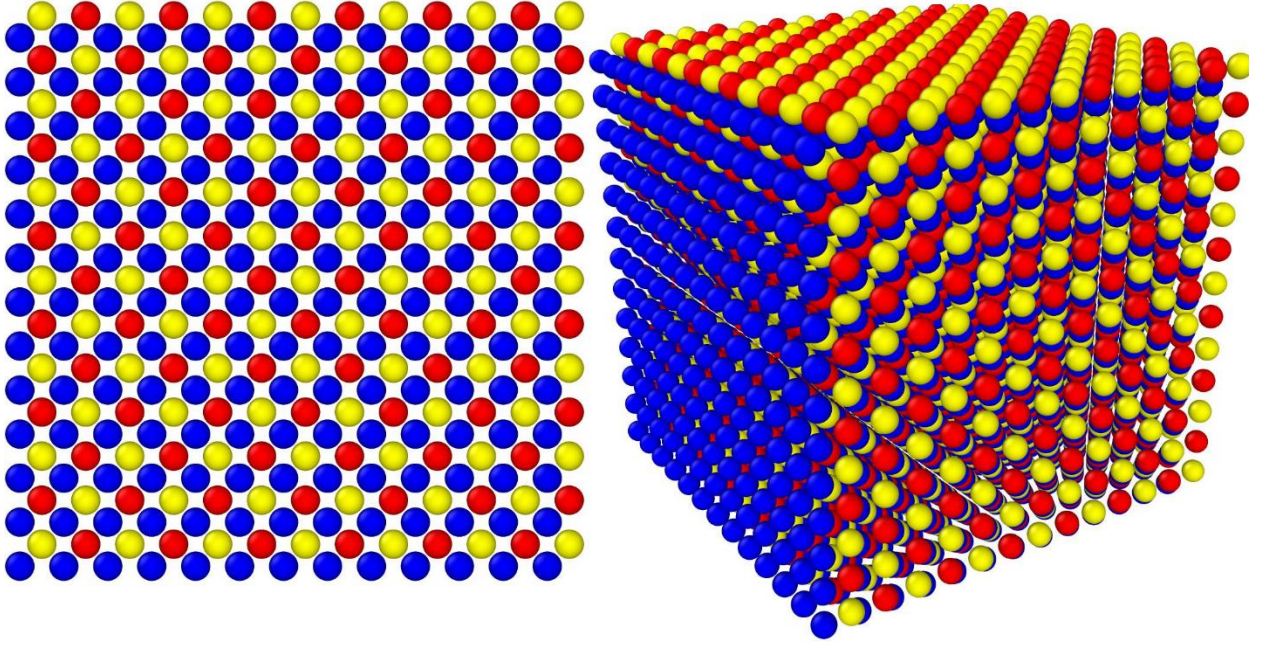
3.2.2. Üçlü Alaşım sistemlerinin Kurulumu

Cu-Pt-Pd üçlü alaşımının örgü yapısı, BCC tabanlı B2 süper örgüsü ile birlikte FCC tabanlı $L1_1$ süper örgüsünün oluşturduğu üçlü intermetalik bileşik şeklindedir [89, 90]. $L1_1$ ve B2 süper örgü yapıları, Şekil 3.5’de gösterilmiştir.



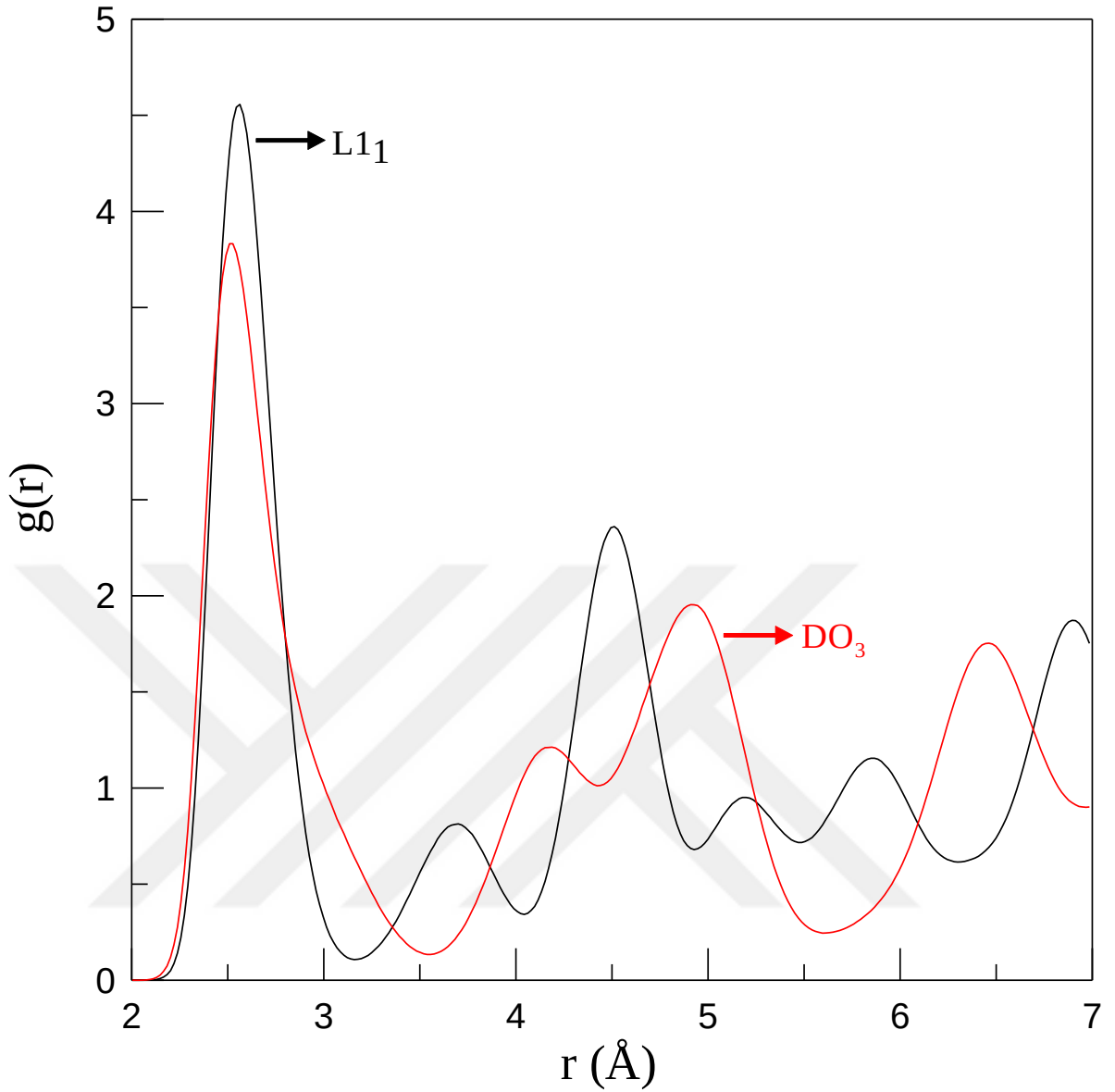
Şekil 3.5. a) $L1_1$ ve b) B2 süper örgü yapıları

Farklı Pt ve Pd katkılı Cu-Pt-Pd üçlü model alaşım sisteminin örgü yapısı başlangıç olarak Şekil 3.6’da görüldüğü üzere BCC tabanlı DO_3 süper örgü şeklinde kurulmuştur [61]. Benzetim hesaplamalarımızın doğruluğunu görmek için model sistem 300 K sıcaklıkta 10000 MD adımı bekletilmiştir. Daha sonra yaklaşık 7000 MD adımından sonra sistemin DO_3 örgü yapısından $L1_1$ ve B2 örgü yapısının birlikte oluşturduğu ya da iki fazın birleşimi olan üçlü bir alaşım yapısına dönüştüğü görülmüştür.



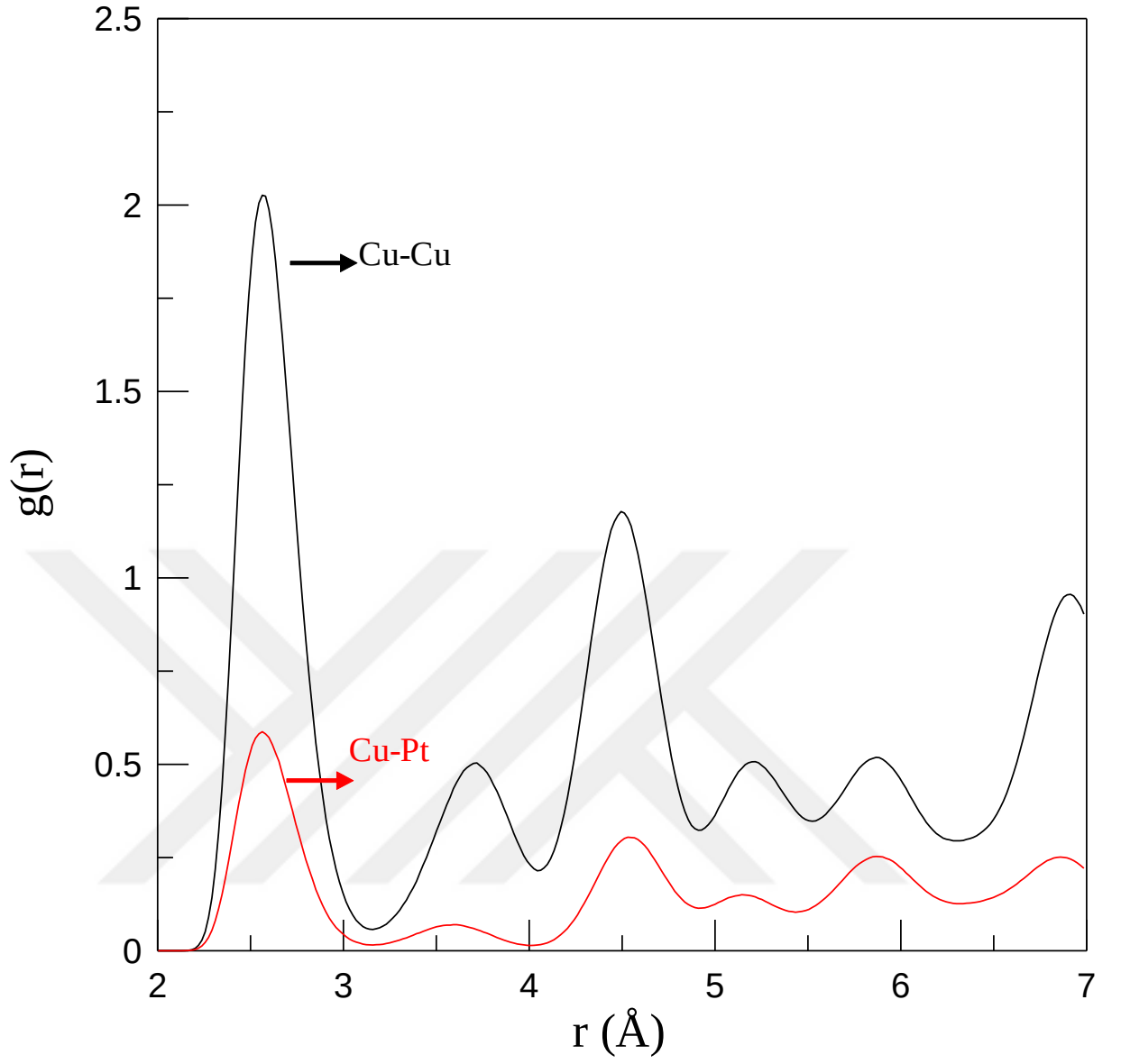
Şekil 3.6. Cu-Pt-Pd model sistemin başlangıç olarak kurulan DO₃ süper örgüye sahip MD hücresinin atomik dağılımı (mavi renk Cu, kırmızı renk Pd ve sarı renk Pt atomunu temsil etmektedir)

Şekil 3.7, Cu₇₀Pt₂₀Pd₁₀ sistemi için 300 K sıcaklıkta, 6500 ve 7000 MD adımlarımda elde edilen toplam RDF eğrilerini göstermektedir. RDF eğrileri BCC tabanlı DO₃ yapısını temsil etmektedir. Bu durum ilk kurulumun DO₃ yapısında olduğunun bir göstergesidir. Sistem 7000 MD adımdan sonra DO₃ yapısında kararlı kalmamış ve üçlü alaşımın bilinen FCC tabanlı L1₁ yapısı ile birlikte bulunan BCC tabanlı B2 örgü yapısına dönüşmüştür. RDF eğrilerinden örgünün yapısal olarak farklılığı atomik uzaklıklara karşılık gelen piklerin farklı olması ve BCC tabanlı örgüde ilk pikin sağ tarafa doğru hafifçe genişlemesi olarak açıklanabilir. Fakat Pd'nin sistem içinde sayısının az olması nedeniyle, Cu-Pd ve Pt-Pd etkileşimleri toplam RDF eğrilerinde gözükmemektedir. Bu nedenle, sistem içerisindeki B2 örgüsünün varlığını göstermek için Cu-Pd ve Pt-Pd etkileşimlerini gösteren kısmi RDF eğrilerine ihtiyaç duyulmaktadır. Bu amaçla kısmi RDF eğrileri sonuçları ise Şekil 3.8 ve Şekil 3.9'da verilmiştir.

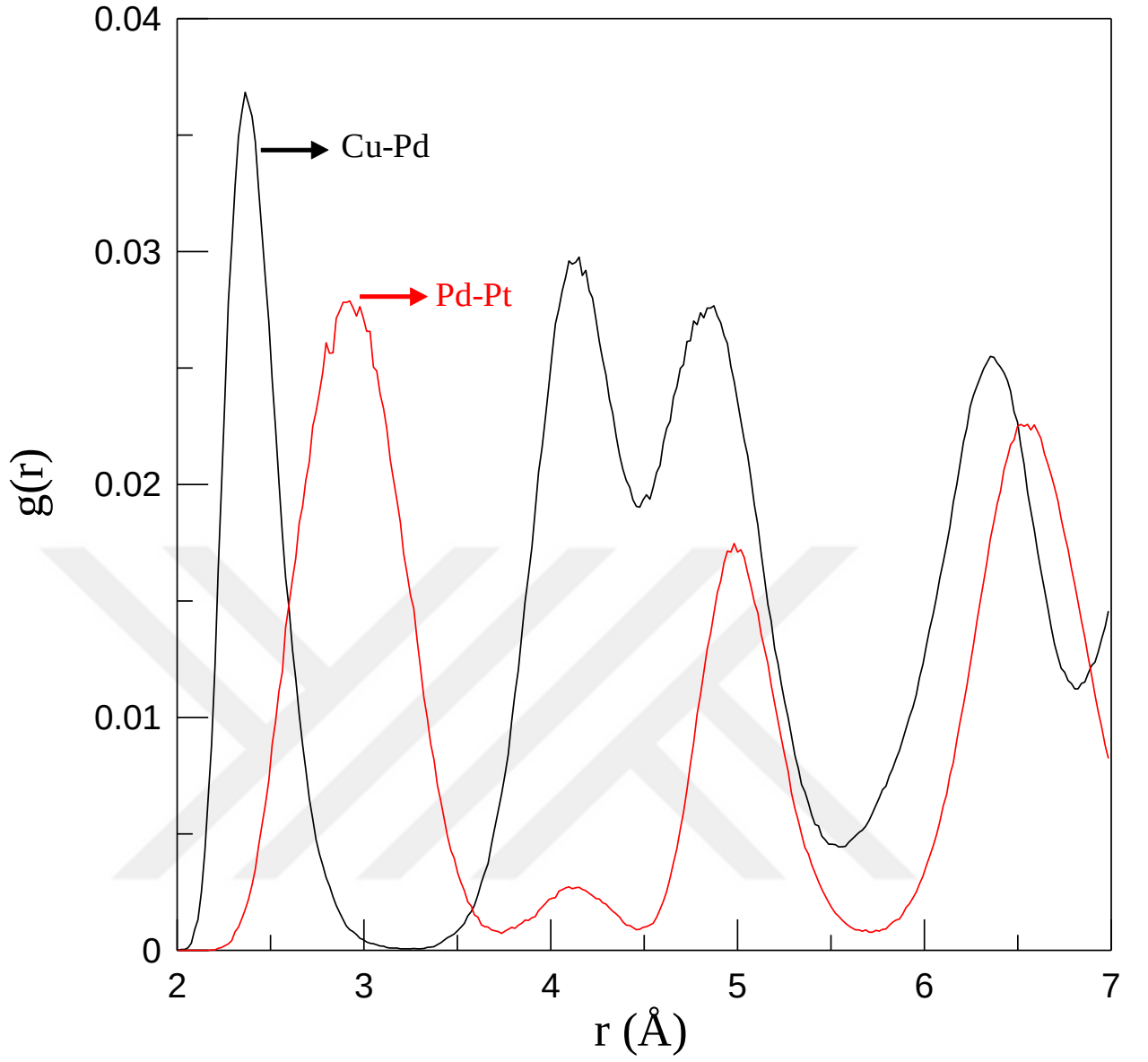


Şekil 3.7. 300 K sıcaklıkta 6500 ve 7000 MD adımlarında elde edilen $\text{Cu}_{70}\text{Pt}_{20}\text{Pd}_{10}$ sistemine ait toplam RDF eğrileri (kırmızı eğriler 6500 MD adımıdaki DO_3 yapısı, siyah eğriler 7000 MD adımıdaki L1_1 yapısı göstermektedir)

Tüm atomlar üzerinden aynı tür ve farklı tür atomlar arasındaki uzaklıklardan elde edilen kısmi RDF eğrileri incelendiğinde, Cu-Cu ve Cu-Pt ye ait RDF pik konumları ideal FCC tabanlı L1_1 pik konumlarına karşılık gelmektedir. Şekil incelendiğinde, Cu-Pd ve Pt-Pd etkileşimlerinin çok az olduğu RDF eğrilerinin değerlerinin daha az olması ile açıklanabilir. Ayrıca kısmi RDF pik konumları FCC örgü yapısını temsil etmemektedir. Bu RDF eğrilerinin B2 yapısını gösterdiği yorumlanabilir.

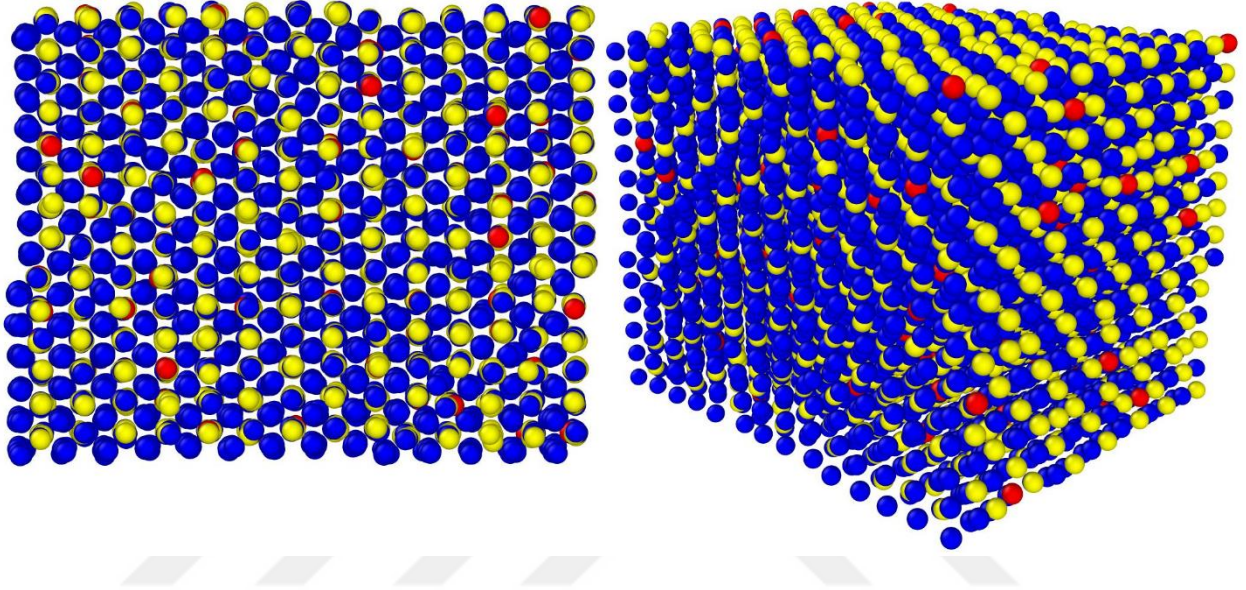


Şekil 3.8. 300 K sıcaklıkta 7000 MD adımda elde edilen Cu₇₀Pt₂₀Pd₁₀ sistemine ait kısmi RDF eğrileri (Cu-Cu ve Cu-Pt etkileşimleri)



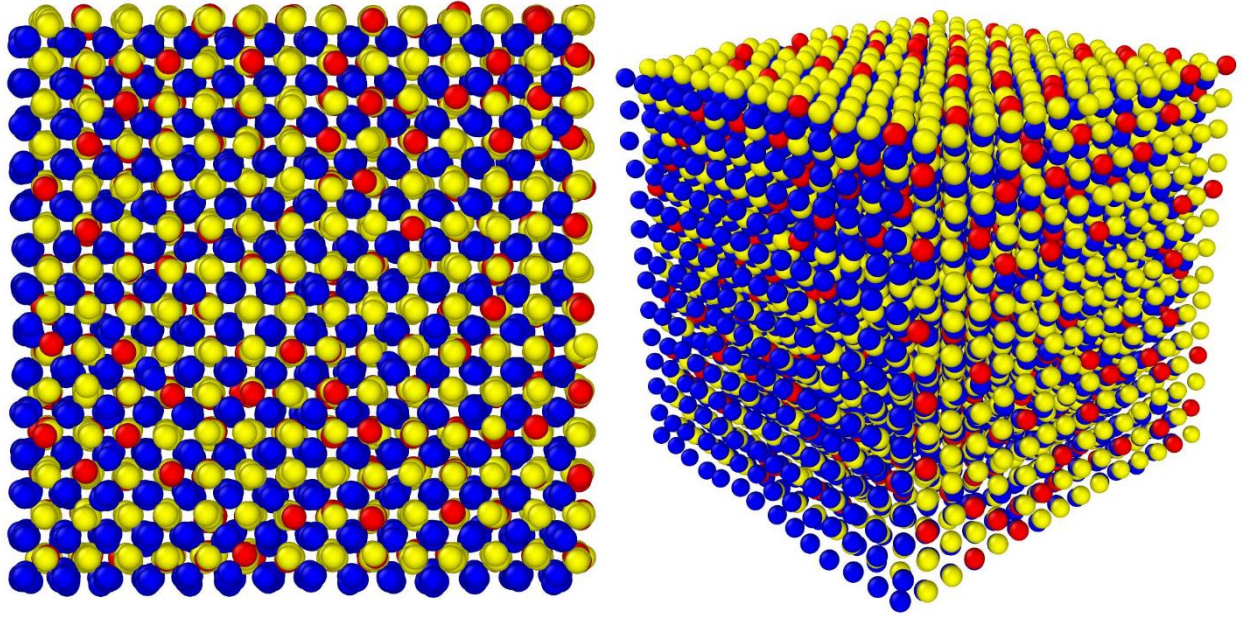
Şekil 3.9. 300 K sıcaklıkta 7000 MD adımında elde edilen $\text{Cu}_{70}\text{Pt}_{20}\text{Pd}_{10}$ sistemine ait kısmi RDF eğrileri (Cu-Pd ve Pt-Pd etkileşimleri)

Şekil 3.10, $\text{Cu}_{70}\text{Pt}_{20}\text{Pd}_{10}$ model sistemi için 300 K sıcaklıkta 7000 MD adımı sonunda elde edilen L1_1 ile birlikte B2 örgülü MD hücrelerinin üç boyutta gösterimini vermektedir. Şekil incelendiğinde Pd atomlarının (kırmızı atomlar) B2 örgü yapısına uygun olarak bakırın ya da platinin atomlarının oluşturduğu birim hücrenin orta noktasına yerleşme eğiliminde olduğunu ispat etmektedir.



Şekil 3.10. 300 K sıcaklıkta 7000 MD adımı elde edilen $\text{Cu}_{70}\text{Pt}_{20}\text{Pd}_{10}$ model sistemine ait L1_1 örgüsü ile birlikte B2 örgüsünün gösterimi (mavi renk Cu, Kırmızı renk Pd ve Sarı renk Pt atomunu temsil etmektedir)

Bakırın diğer konsantrasyon değerleri içinde pik şiddetleri haricinde aynı RDF eğrileri gözlenmiştir. Şekil 3.11, $\text{Cu}_{50}\text{Pt}_{40}\text{Pd}_{10}$ model sistemi için 300 K sıcaklıkta 7000 MD adımı sonunda elde edilen L1_1 ile birlikte B2 örgülü MD hücrelerinin üç boyutta gösterimini vermektedir. Şekil incelendiğinde Pd atomlarının (kırmızı atomlar) B2 örgü yapısına uygun olarak bakırın ya da platinin atomlarının oluşturduğu birim hücrenin orta noktasına yerleşme eğiliminde olduğunu ispat etmektedir. Model sistemlerin atomik konumlarına göre oluşan MD hücreleri üç boyutlu düzende OVITO [91] atomik gösterim programı kullanılarak görüntülenmiştir.

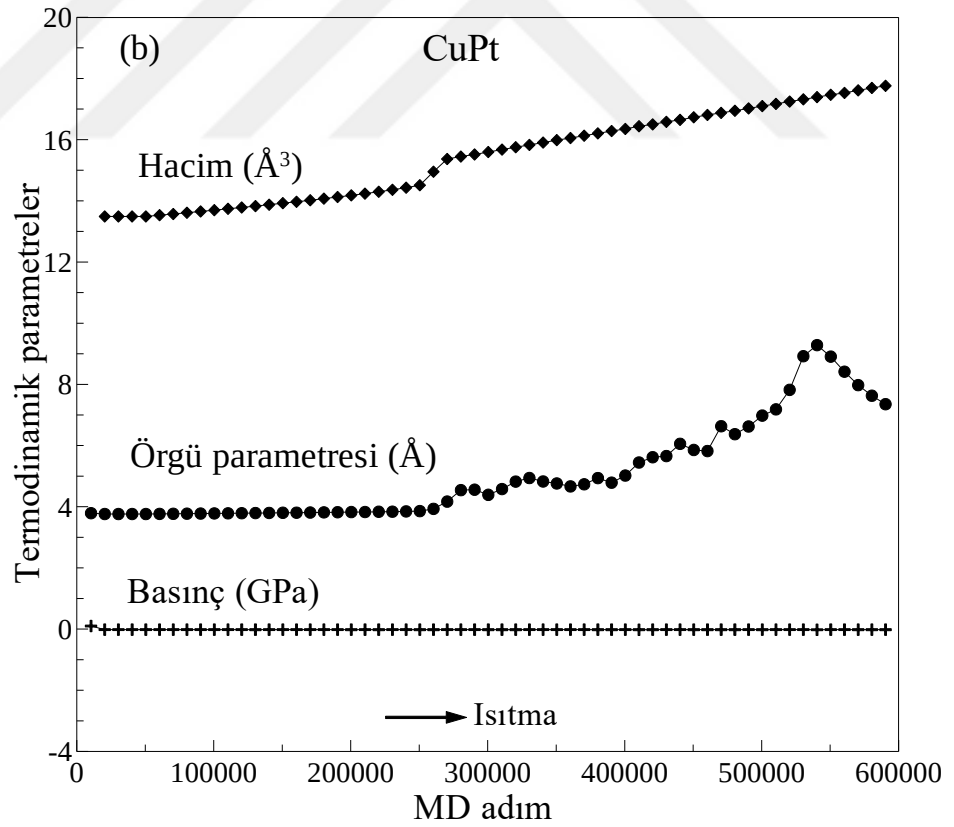
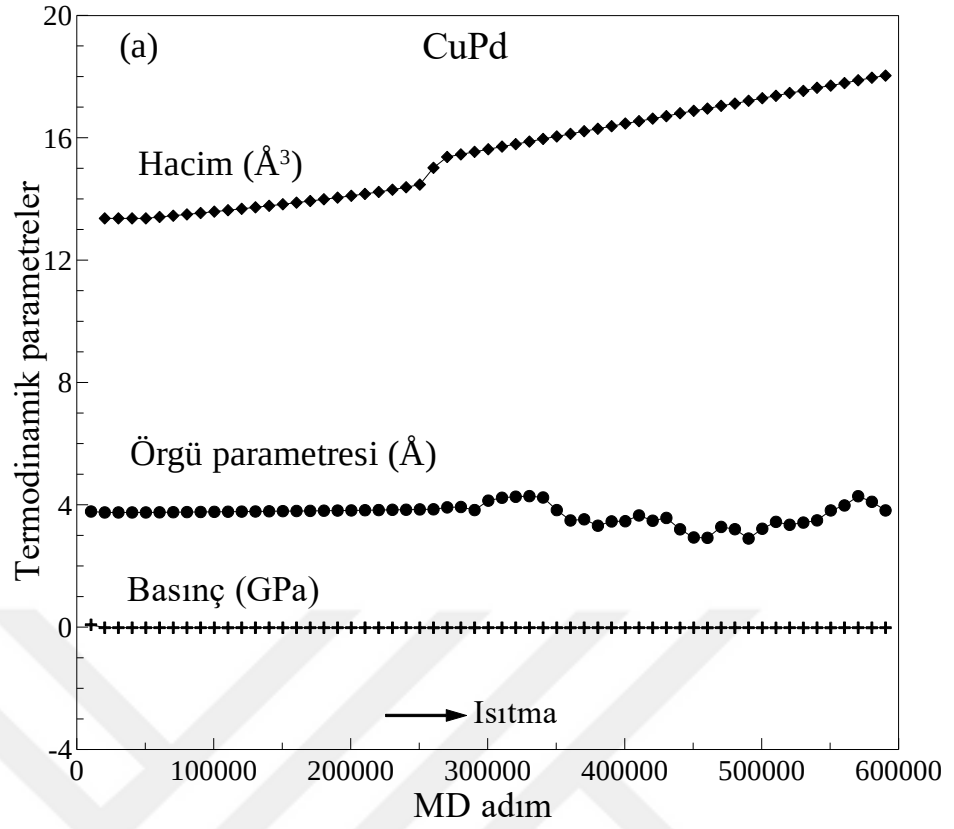


Şekil 3.11. 300 K sıcaklıkta 7000 MD adımıda elde edilen $\text{Cu}_{50}\text{Pt}_{40}\text{Pd}_{10}$ model sistemine ait L1_1 ile birlikte B2 örgüsünün gösterimi (mavi renk Cu, kırmızı renk Pd ve sarı renk Pt atomunu temsil etmektedir)

3.3. İkili Model Alaşım Sistemlerinin İncelenmesi

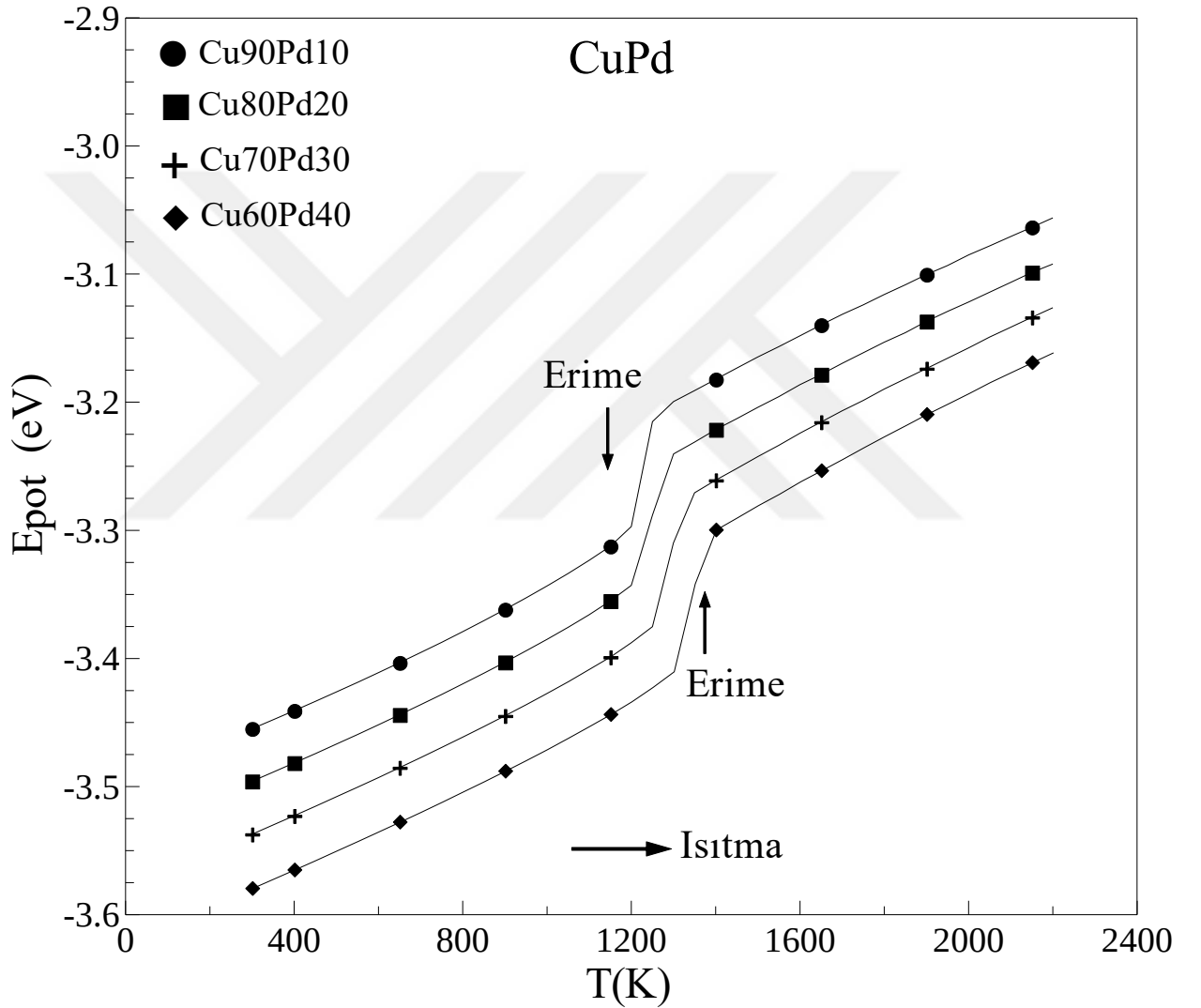
3.3.1. Isıtma Sürecinde Termodinamik ve Yapısal Özelliklerin İncelenmesi

Cu-Pd ve Cu-Pt için sıcaklık 300 K'den başlayarak 2000 K sıcaklığına kadar 50 K sıcaklık artışlarıyla yükseltilmiş ve her bir sıcaklık aralığında 10000 MD adımı bekletilmiştir. Şekil 4.1, 300 K sıcaklıkta Pd ve Pt'a ait bazı termodinamik değişkenlerin MD adım ile değişimi göstermektedir. Her iki model sistem için MD hücreleri FCC tabanlı kübik yapıda kurulmuştur. Sıcaklığın artmasıyla birlikte hacimde doğrusal bir artış meydana gelmektedir. Ayrıca, belirli bir MD adımından sonra ise ani bir değişimin olduğu görülmektedir. Bu durum sıvı faza dönüşümün gerçekleştiği şeklinde yorumlanabilir. Bununla birlikte, belirli bir sıcaklık değerine kadar örgü parametresinde çok fazla bir değişimin olmadığı belirlenmiştir. Sıvı faza dönüşüm ile birlikte sıcaklık artması hacimde dalgalanmalara neden olduğu için örgü parametresinde de dalgalanmalar meydana gelmiştir. Tüm ısıtma sürecinde basınç sabit tutulduğu için basınç değerlerinde herhangi bir değişme gözlenmemiştir.



Şekil 3.12. Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemleri için bazı termodinamik parametrelerin MD adımıyla değişimi

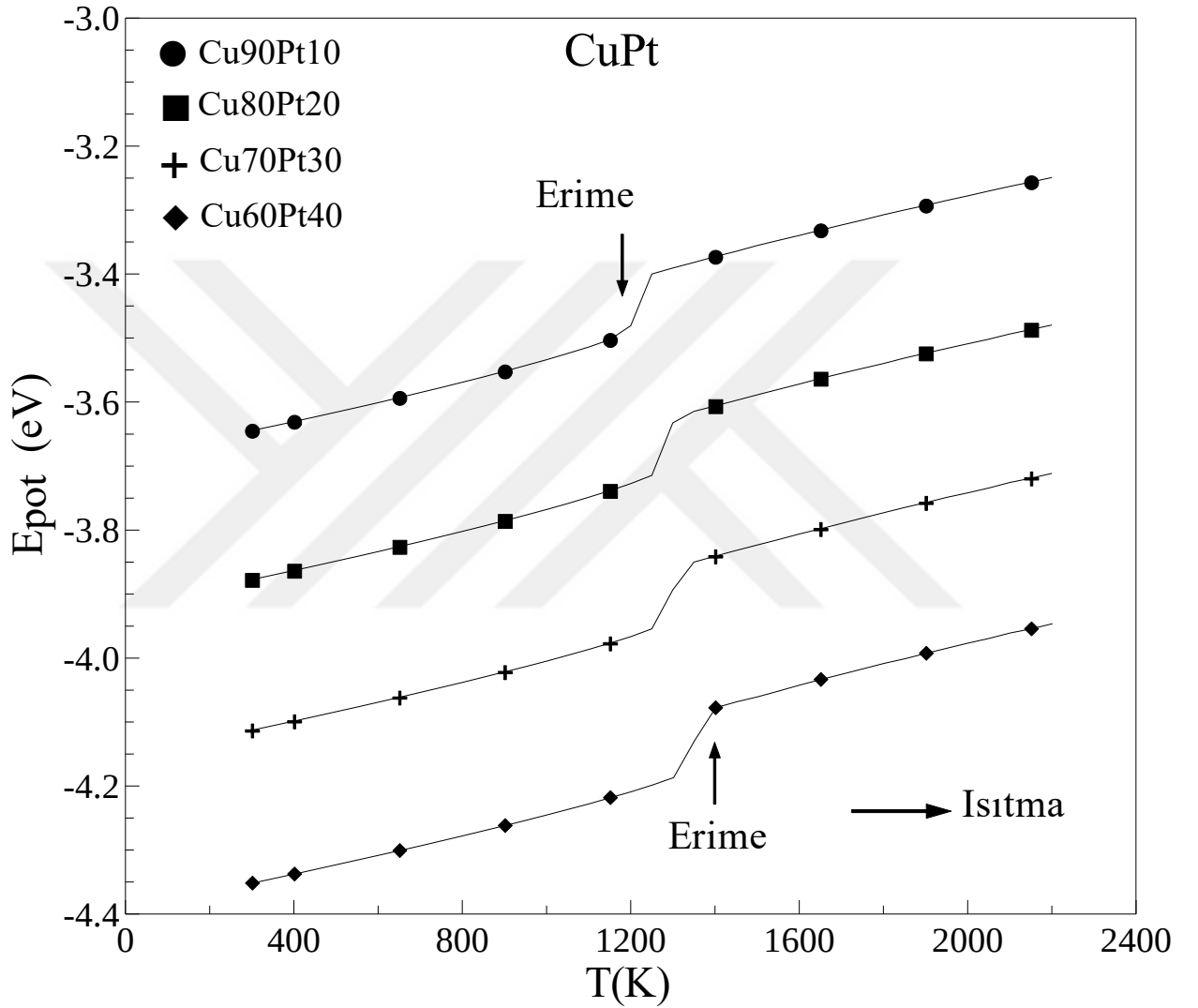
Şekil 3.12, ısıtma sürecinde Cu-Pd sisteminin farklı Cu konsantrasyon değerleri için potansiyel enerji fonksiyonu değerlerinin sıcaklıkla değişimini göstermektedir. Şekil incelendiğinde, sıcaklığın artmasıyla birlikte potansiyel enerji değeri belirli bir sıcaklık değerinden sonra ani artış veya değişim göstermektedir. Değişimin olduğu sıcaklık aralığı (süreksizlik) erime noktasına karşılık gelmektedir. Tüm sıcaklık değerlerinde Cu elementinin konsantrasyonu azaldıkça potansiyel enerji değeri azalmaktadır.



Şekil 3.13. Isıtma sürecinde Cu-Pd sisteminin farklı Cu konsantrasyon değerleri için potansiyel enerjinin sıcaklıkla değişimi

Şekil 3.13, ısıtma sürecinde Cu-Pt sisteminin farklı Cu konsantrasyon değerleri için potansiyel enerjinin sıcaklıkla değişimini göstermektedir. Cu-Pd model sistemi ile karşılaştırıldığında potansiyel enerji grafiği eğrileri ile benzer davranışlar sergilemektedir. Yine

benzer şekilde, potansiyel enerjide ani değişimin olduğu sıcaklık aralığı erime noktasını göstermektedir. Bakırın konsantrasyonu azaldıkça potansiyel enerji değeri azalmaktadır. Cu-Pt model sistemi için potansiyel enerji fonksiyonu değeri 300 K sıcaklıkta yaklaşık -3,6 eV değerini alırken, Cu-Pd model sistemi için potansiyel enerji fonksiyonu değeri yaklaşık -4,4 eV değerini almaktadır.



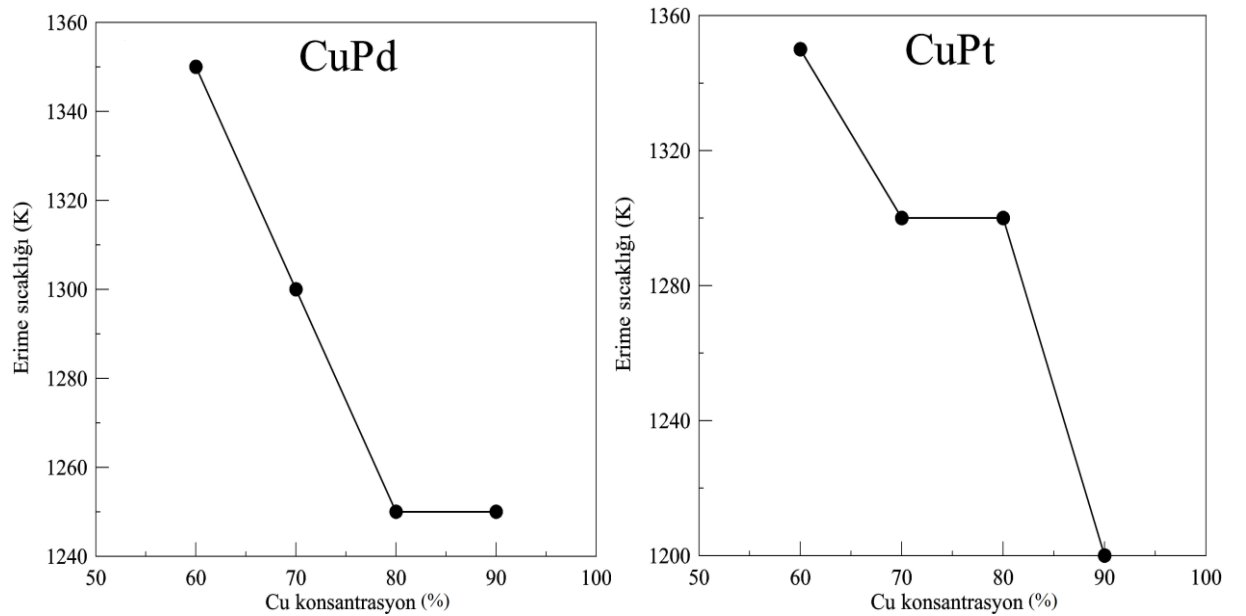
Şekil 3.14. Isıtma sürecinde Cu-Pt sisteminin farklı Cu konsantrasyon değerleri için potansiyel enerjinin sıcaklıkla değişimi

Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemleri için elde edilen erime sıcaklıklarının bakırın konsantrasyonuna göre değişimi, Çizelge 3.1’de verilmiştir. Her iki model sistem içinde bakırın konsantrasyonu azaldıkça erime noktalarının arttığı tespit edilmiştir. Elde edilen erime

sıcaklıklarının deneysel olarak bilinen erime sıcaklıkları değerleri ile uyumlu olduğu belirlenmiştir [51, 88]. Ayrıca, alaşım sistemlerinin deneysel verilerden elde edilmiş faz diyagramları incelendiğinde, farklı bakır konsantrasyonları için elde edilmiş erime sıcaklıkları ile benzetim metodu ile belirlenen erime sıcaklıkları arasında uyum olduğu görülmüştür [88]. Her iki model sistem için erime sıcaklıklarının bakırın konsantrasyonuna göre değişimi, Şekil 3.15’de gösterilmiştir.

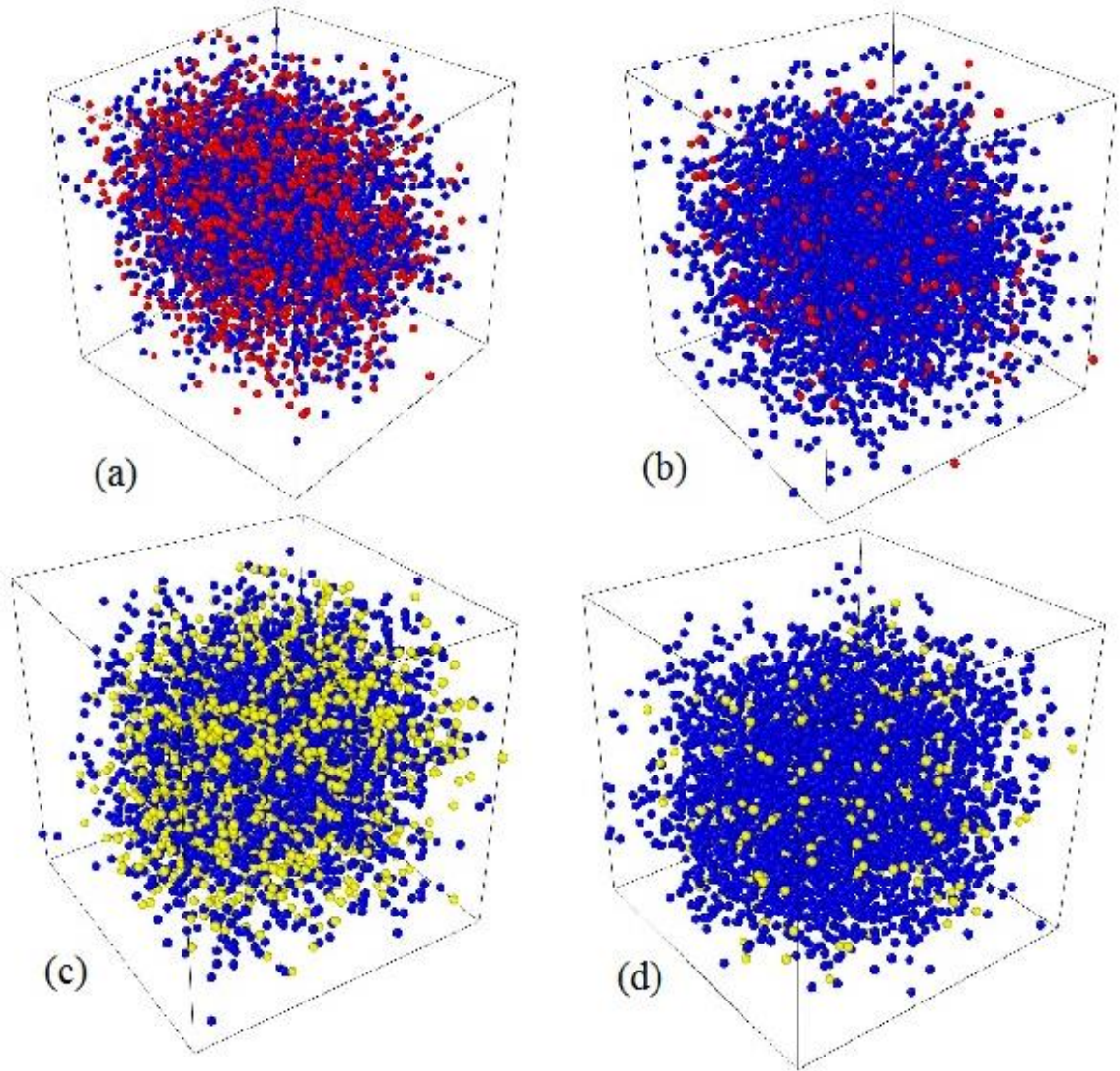
Çizelge 3.1. Cu-Pd ve Cu-Pt alaşımları için ısıtma işlemi sonucu oluşan erime noktası tespiti

Cu konsantrasyonu (%)	Erime Sıcaklığı (K) (Cu-Pd)	Erime Sıcaklığı (K) (Cu-Pt)
90	1250±25	1200±25
80	1250±25	1300±25
70	1300±25	1300±25
60	1350±25	1350±25



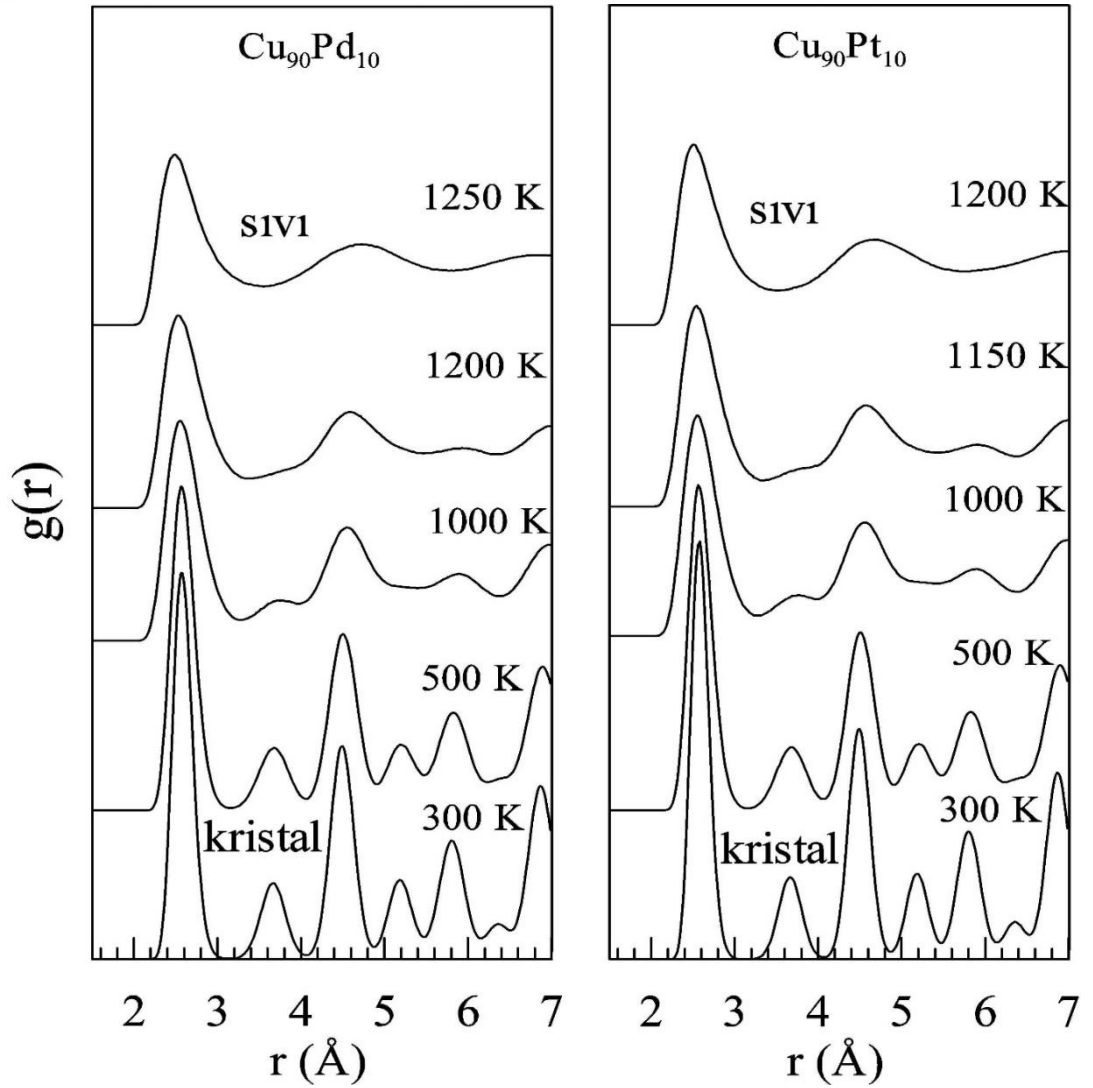
Şekil 3.15. Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemleri için bakırın farklı konsantrasyon değerlerine karşılık erime noktaları

Şekil 3.16, $\text{Cu}_{60}\text{Pd}_{40}$, $\text{Cu}_{60}\text{Pd}_{40}$, $\text{Cu}_{60}\text{Pd}_{40}$ ve $\text{Cu}_{60}\text{Pd}_{40}$ model sistemleri için erime sıcaklıklarında elde edilen MD hücresi içinde dağılım gösteren atomların görüntülerini göstermektedir. Atomların MD hücresi içinde düzenli yapıya ait kristal düzlemleri gözlenmemiş ve atomik dizilişler düzensiz bir şekilde gerçekleşmiştir. Yüksek sıcaklıklarda atomik hareketlilik artmış olup atomların gelişigüzel dağılım sergilediği bir düzene geçilmiştir.



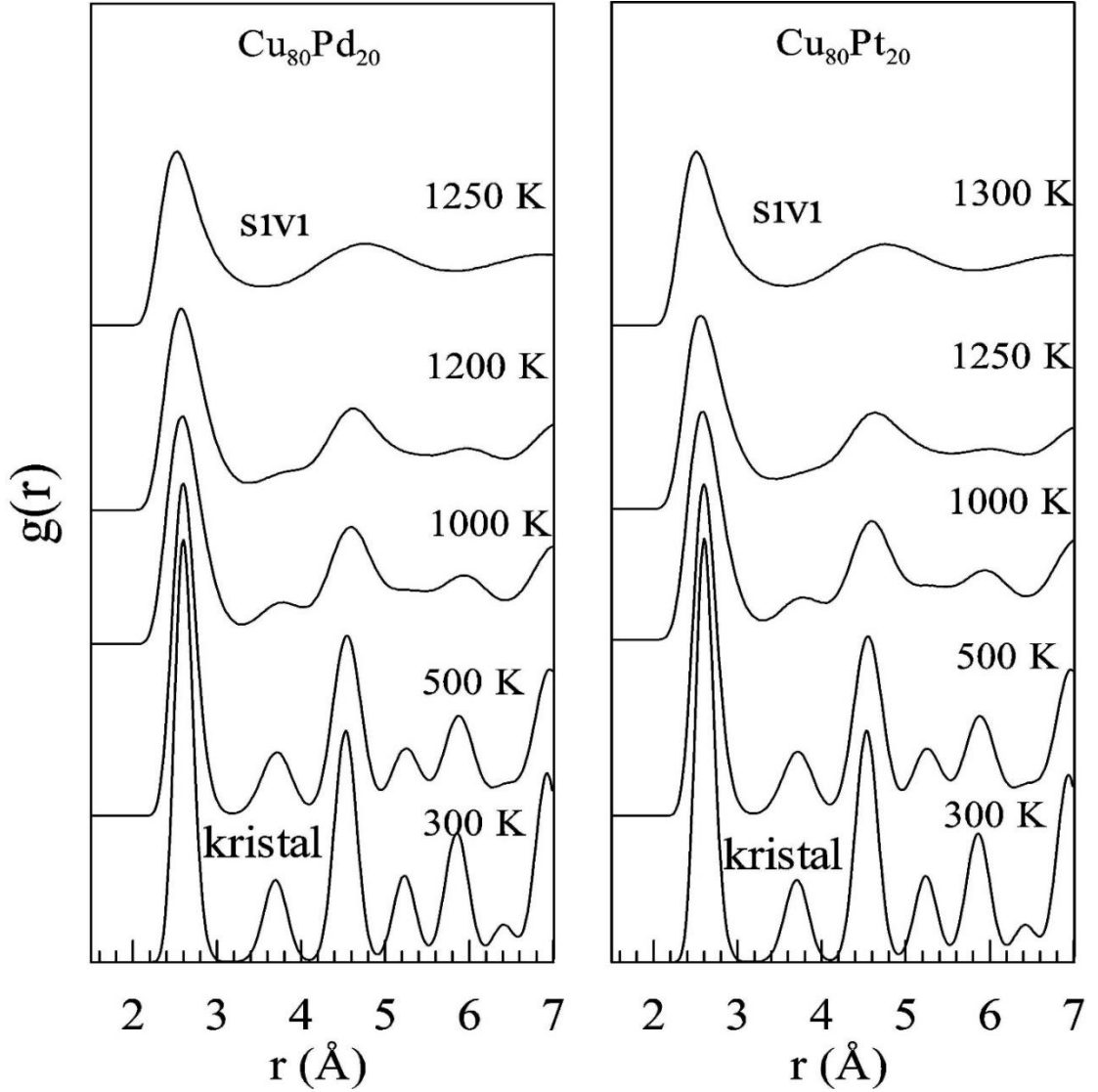
Şekil 3.16. Model sistemler için erime sıcaklıklarında elde edilen MD hücresi içindeki atomik dağılım görüntüleri Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemleri (mavi renk Cu, kırmızı renk Pd sarı renk Pt atomlarını temsil etmektedir) a) $\text{Cu}_{60}\text{Pd}_{40}$ b) $\text{Cu}_{90}\text{Pd}_{10}$ c) $\text{Cu}_{60}\text{Pt}_{40}$ d) $\text{Cu}_{90}\text{Pt}_{10}$

Cu %90 konsantrasyonu için Pd ve Pt katkılı model sistemlerin 300 K sıcaklıktan başlayarak MD yöntemle belirlenen erime sıcaklıklarına kadar ısıtma sürecindeki RDF eğrileri Şekil 3.17’de gösterilmiştir. Bakırın atomik yüzde olarak %90 ağırlıklı Pd ve Pt model sistemleri için RDF piklerine karşılık gelen atomik uzaklıklar ele alındığında, 300 K sıcaklıkta model alaşımların FCC tabanlı kristal örgü yapısında olduğu belirlenmiştir. Sıcaklığın artmasıyla birlikte, RDF eğrilerinin pik şiddetlerinde azalma gözlenmiştir. Bu durumun nedeni sıcaklığın artması ile birlikte iç enerjilerin ve atomik titreşimlerin artması olarak değerlendirilebilir. Pd katkılı $\text{Cu}_{90}\text{Pd}_{10}$ model sistemi $1250 \text{ K} \pm 25 \text{ K}$ sıcaklıkta sıvı faza dönüşürken, Pt katkılı $\text{Cu}_{90}\text{Pt}_{10}$ model sistemi ise $1200 \text{ K} \pm 25 \text{ K}$ sıcaklıkta sıvı faza dönüşmüştür.



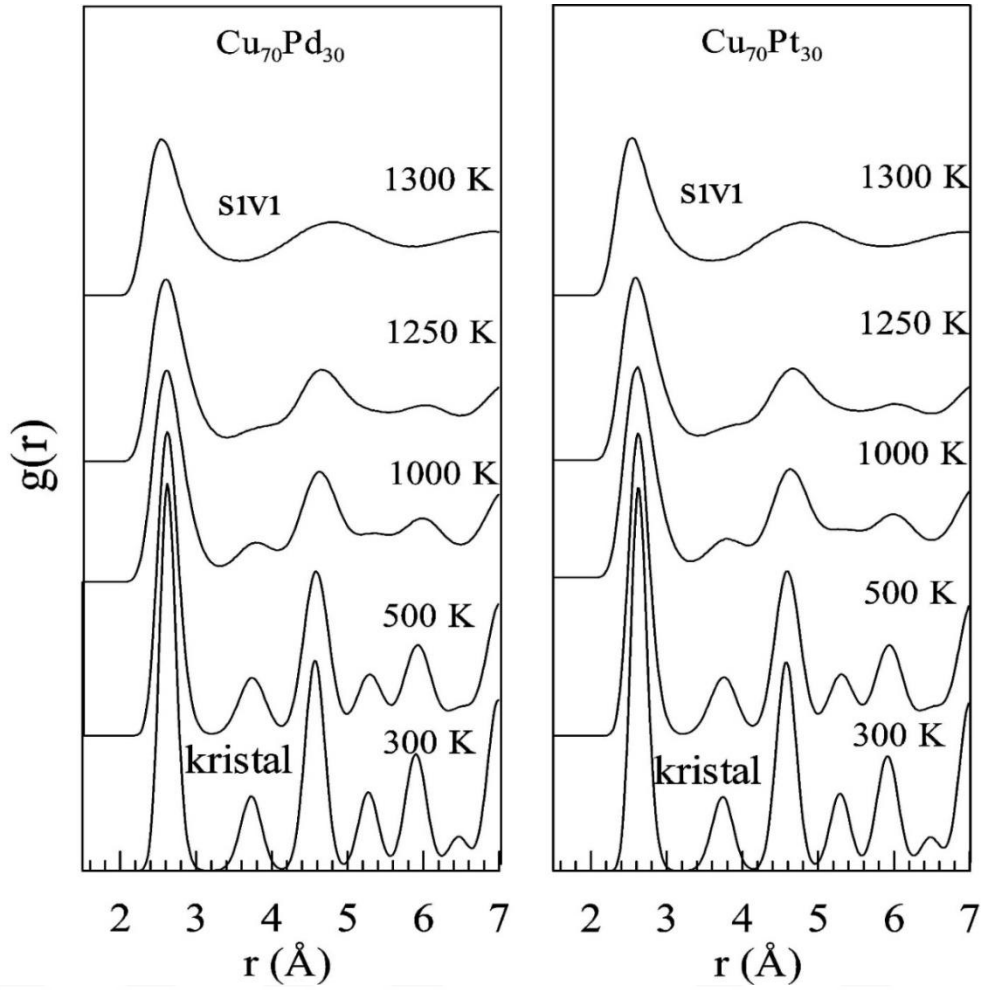
Şekil 3.17. Cu %90 konsantrasyonu için Pd ve Pt katkılı model sistemlerin ısıtma sürecinde farklı sıcaklıklardaki RDF eğrileri

Cu %80 konsantrasyonu için Pd ve Pt katkılı model sistemlerin 300 K sıcaklıktan başlayarak MD yöntemle belirlenen erime sıcaklıklarına kadar ısıtma sürecindeki RDF eğrileri, Şekil 3.18’de gösterilmiştir. $\text{Cu}_{80}\text{Pd}_{20}$ ve $\text{Cu}_{80}\text{Pt}_{20}$ model sistemleri sırasıyla $1250 \text{ K} \pm 25 \text{ K}$ ve $1300 \text{ K} \pm 25 \text{ K}$ sıcaklıklarında sıvı faza dönüşmüştür.



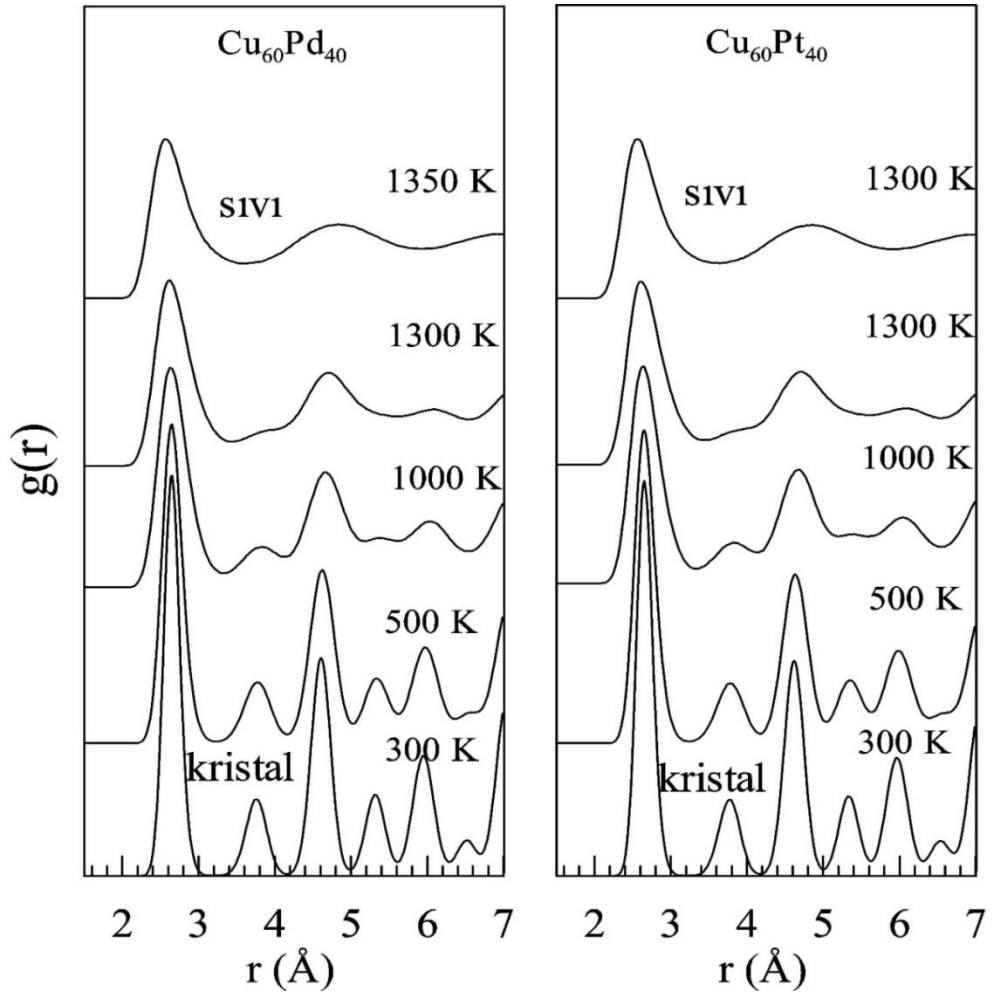
Şekil 3.18. Cu %80 konsantrasyonu için Pd ve Pt katkılı model sistemlerin ısıtma sürecinde farklı sıcaklıklardaki RDF eğrileri

Cu %70 konsantrasyonu için Pd ve Pt katkılı model sistemlerin 300 K sıcaklıktan başlayarak MD yöntemle belirlenen erime sıcaklıklarına kadar ısıtma sürecindeki RDF eğrileri, 3.19’da gösterilmiştir. $\text{Cu}_{70}\text{Pd}_{30}$ ve $\text{Cu}_{70}\text{Pt}_{30}$ model sistemlerin $1300 \text{ K} \pm 25 \text{ K}$ sıcaklığında sıvı faza dönüştüğü tespit edilmiştir.



Şekil 3.19. Cu %70 konsantrasyonu için Pd ve Pt katkılı model sistemlerin ısıtma sürecinde farklı sıcaklıklardaki RDF eğrileri

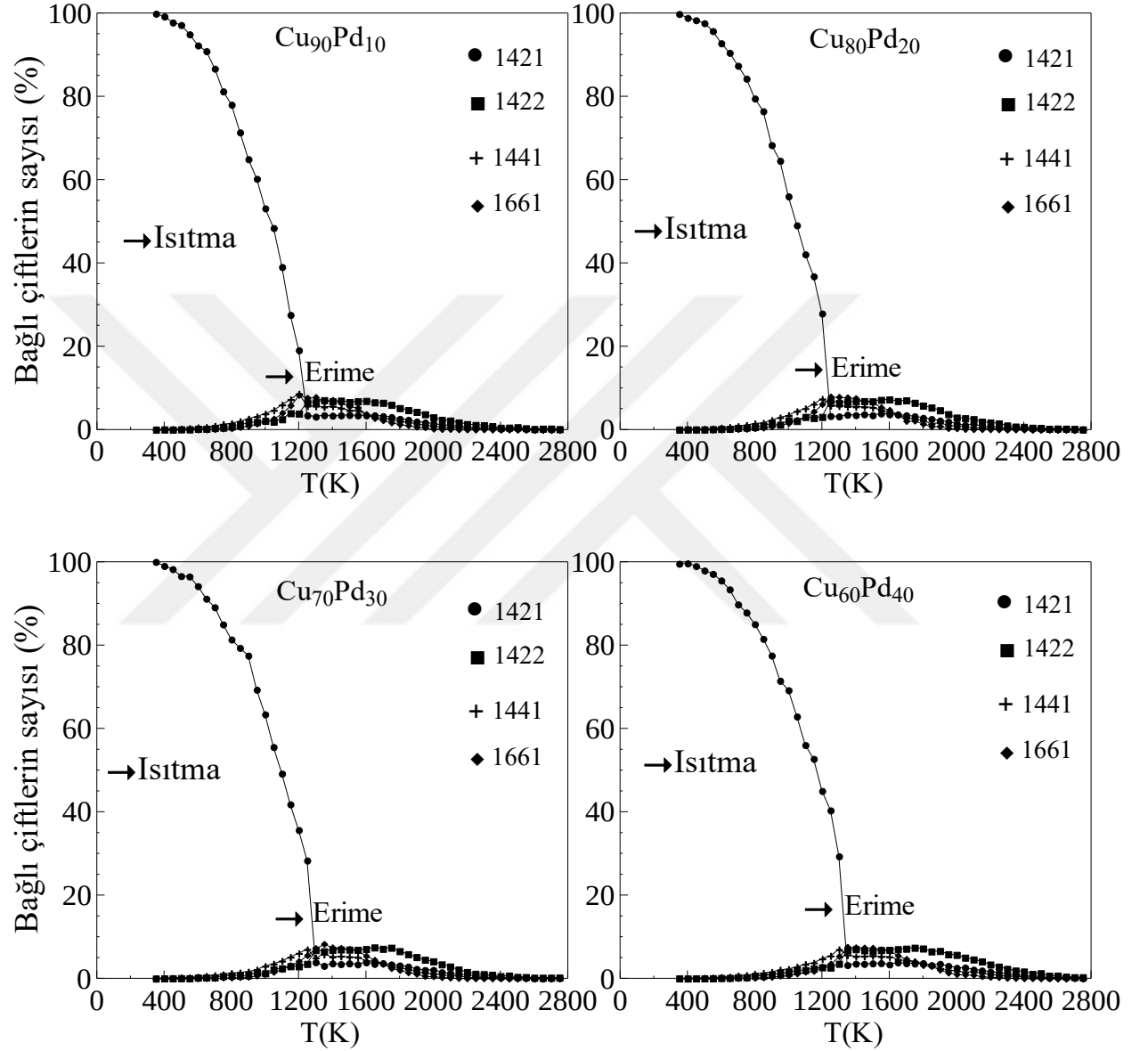
Cu %60 konsantrasyonu için Pd ve Pt katkılı model sistemlerin 300 K sıcaklıktan başlayarak MD yöntemle belirlenen erime sıcaklıklarına kadar ısıtma sürecindeki RDF eğrileri, Şekil 3.20’de gösterilmiştir. $\text{Cu}_{60}\text{Pd}_{40}$ ve $\text{Cu}_{60}\text{Pt}_{40}$ model sistemleri sırasıyla $1350 \text{ K} \pm 25 \text{ K}$ ve $1300 \text{ K} \pm 25 \text{ K}$ sıcaklıklarında sıvı faza dönüşüm gerçekleşmiştir. Bakırın konsantrasyonunun Pd ve Pt katkılı model sistemlerin erime sıcaklıkları üzerindeki etkisi, RDF eğrilerinden açıkça görülmektedir. $\text{Cu}_{90}\text{Pd}_{10}$ model sistemi $1250 \text{ K} \pm 25 \text{ K}$ sıcaklıkta sıvı faza dönüşürken $\text{Cu}_{60}\text{Pd}_{40}$ model sisteminin sıvı faza dönüşümü $1350 \text{ K} \pm 25 \text{ K}$ sıcaklıkta meydana gelmiştir. Benzer şekilde, $\text{Cu}_{90}\text{Pt}_{10}$ yapısı $1200 \text{ K} \pm 25 \text{ K}$ sıcaklıkta sıvı faza dönüşürken $\text{Cu}_{60}\text{Pt}_{40}$ model sisteminin sıvı faza dönüşümü $1350 \text{ K} \pm 25 \text{ K}$ sıcaklıkta gerçekleşmiştir. Sonuç olarak, Cu konsantrasyonu arttıkça model sistemlerin erime sıcaklıkların azaldığı RDF ile belirlenmiştir.



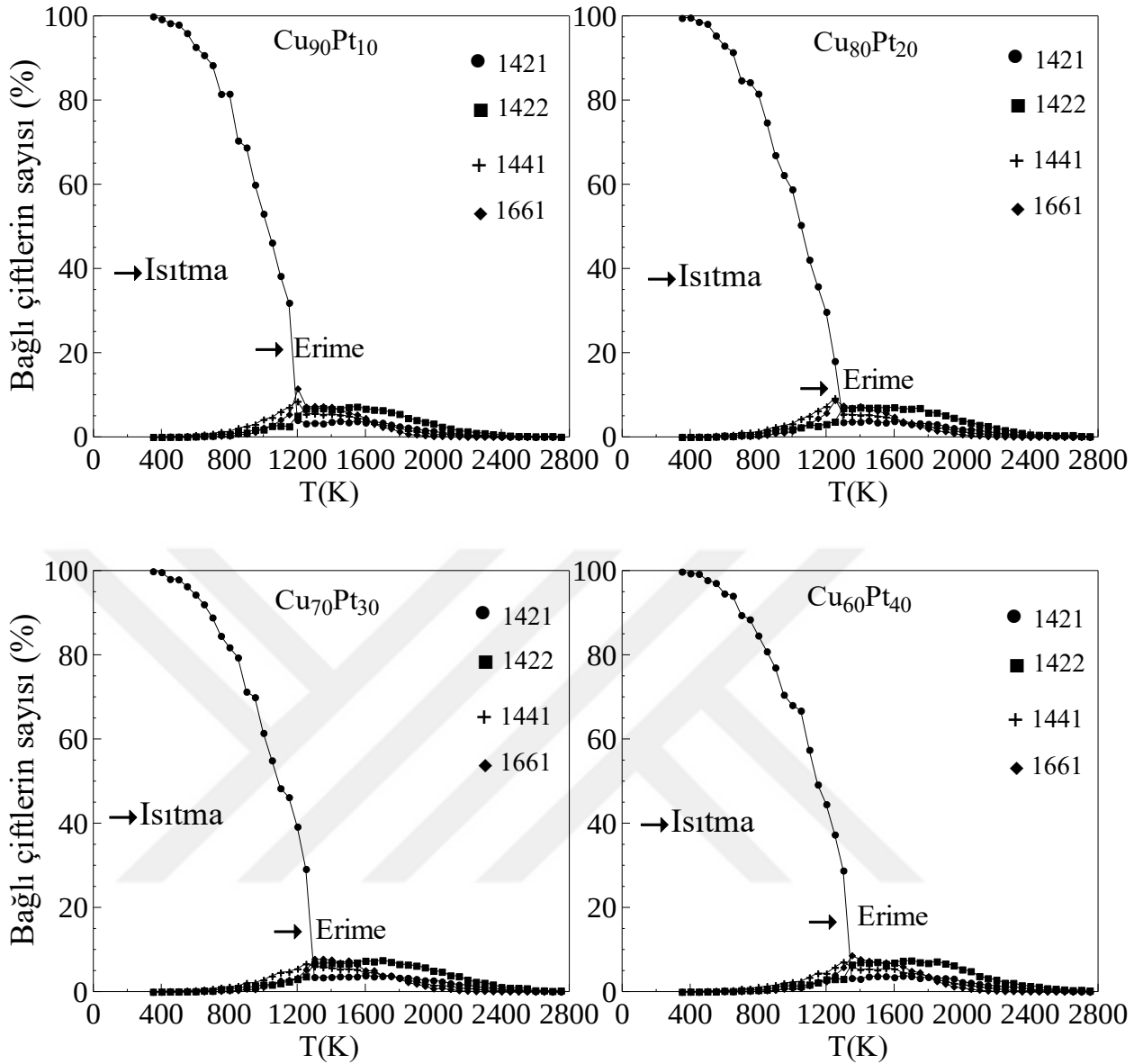
Şekil 3.20. Cu %60 konsantrasyonu için Pd ve Pt katkılı model sistemlerin ısıtma sürecinde farklı sıcaklıklardaki RDF eğrileri

Cu-Pd alaşım sistemi için ısıtma işlemi sürecinde bakırın farklı konsantrasyon değerleri için kristal yapıları temsil bağlı çiftlerin sayısal değerlerinin sıcaklıkla değişimi, Şekil 3.21’de gösterilmiştir. Şekil incelendiğinde, 300 K sıcaklıkta 1421 bağlı çiftlerinin sayısı %100 olarak elde edilmiştir. Bu sonuç sistemde yalnızca FCC kristal örgüleri temsil eden bağlı çiftlerinin oluştuğunun göstergesidir. Model alaşım ilk olarak FCC tabanlı örgü yapısında kurulduğundan, 1421 bağlı çiftlerinin maksimum sayıda elde edilmesi olağan bir durum olarak değerlendirilmiştir. Diğer kristal türü örgü yapıları temsil eden 1422, 1441 ve 1661 bağlı çiftlerin varlıkları ise görülmemektedir. Cu-Pd model sisteminin sıcaklığının artması ile birlikte erime sıcaklıklarına yakın sıcaklıklarda 1421 bağlı çiftlerinin sayısı azalırken, diğer kristal türü bağlı çiftlerin sayısı artış göstermiştir. Erime sıcaklığında 1421 bağlı çiftlerinin sayısında ani bir azalma gözlenmiştir. Bu durum model sistemlerin sıvı faza dönüşüme uğradığının göstergesidir.

Cu-Pt alařım sistemi iin ısıtma iřlemi srecinde bakırın farklı konsantrasyon deęerlerine karřılık olarak kristal yapıları temsil baęlı iftlerin sayısal deęerlerinin sıcaklıkla deęiřimi, řekil 3.22’de gsterilmiřtir. Benzer bir sre Cu-Pt model sistemi iinde sz konusu olup, erime sıcaklıęına gelindięinde 1421 baęlı iftlerinin sayısında ani bir azalma gzlenmiřtir.



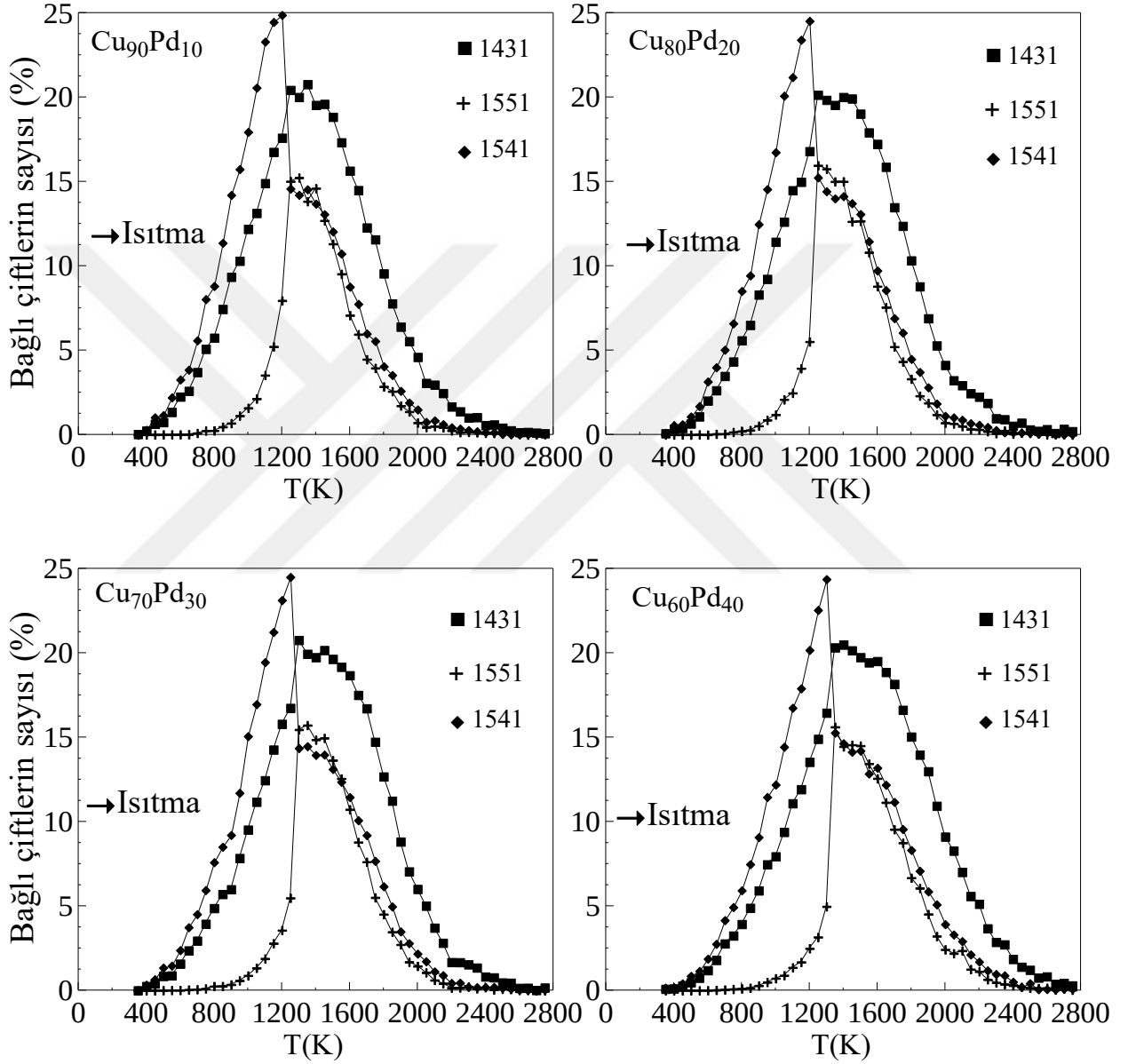
řekil 3.21. Isıtma srecinde Cu-Pd alařımı iin kristal rg yapısını temsil eden baęlı iftlerin sıcaklıkla deęiřimi



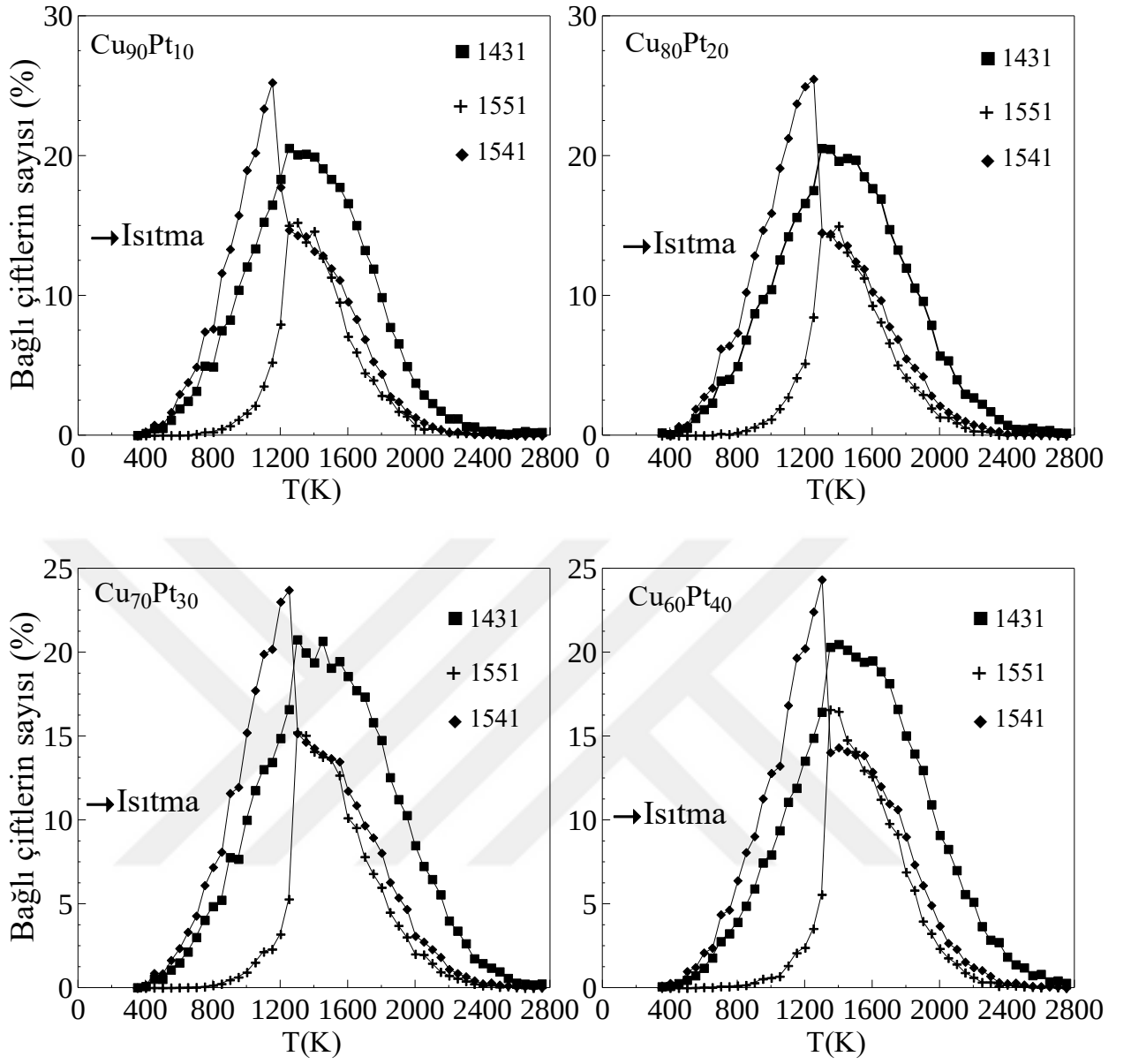
Şekil 3.22. Isıtma sürecinde Cu-Pt alaşımı için kristal örgü yapısını temsil eden bağlı çiftlerin sıcaklıkla değişimi

Şekil 3.23, ısıtma sürecinde Cu-Pd model sistemi için bakırın farklı konsantrasyon değerlerinde amorf fazda kendini gösteren atomik topakları temsil eden bağlı çiftlerin sıcaklık ile değişimini göstermektedir. 300 K sıcaklıkta, sistemin başlangıç örgü yapısı FCC tabanlı örgü yapısında kurulduğundan amorf fazda meydana gelen bu tür bağlı çiftler görülmemektedir. Sıcaklığın artması ile birlikte, bu tür bağlı çiftlerin sayısı artmakla beraber erime sıcaklığında değerleri maksimum sayıya ulaşmıştır. Bu tür bağlı çiftler amorf ve sıvı fazda olduğu gibi atomik dağılımların düzensiz olduğu yapılarda oldukça fazla görülmektedir [92]. Bu durum bakırın tüm konsantrasyonları için sıvı fazda bu tür bağlı çiftlerin sayısının fazla olması ile uyumlu bir

sonuçtur. Çok yüksek sıcaklıklarda atomik hareketliliğin artmasıyla birlikte yapı oldukça düzensiz bir dağılım sergilediğinden kesim uzaklığına giren atom sayısı azalmış ve bağlı çiftlerin sayısı sıfıra doğru gitmiştir. Benzer davranış Cu-Pt model sistemi içinde görülmekte olup ısıtma sürecinde amorf fazda kendini gösteren atomik topakları temsil eden bağlı çiftlerin sıcaklık ile değişimi, Şekil 3.24’de gösterilmektedir.



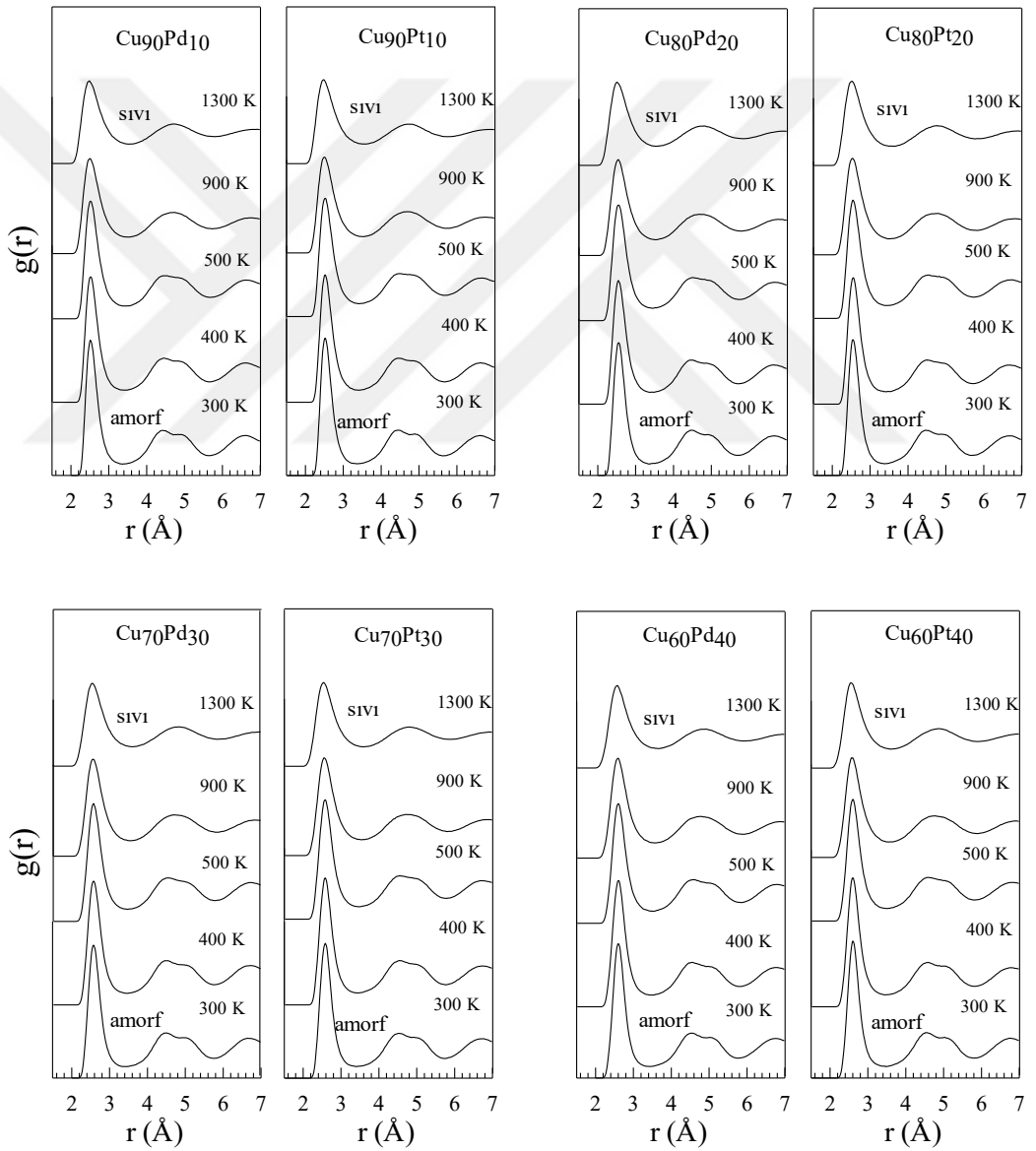
Şekil 3.23. Isıtma sürecinde Cu-Pd alaşımı için amorf yapıda bulunan topakları temsil eden bağlı çiftlerin sıcaklıkla değişimi



Şekil 3.24. Isıtma sürecinde Cu-Pt alaşımı için amorf yapıda bulunan topakları temsil eden bağlı çiftlerin sıcaklıkla değişimi

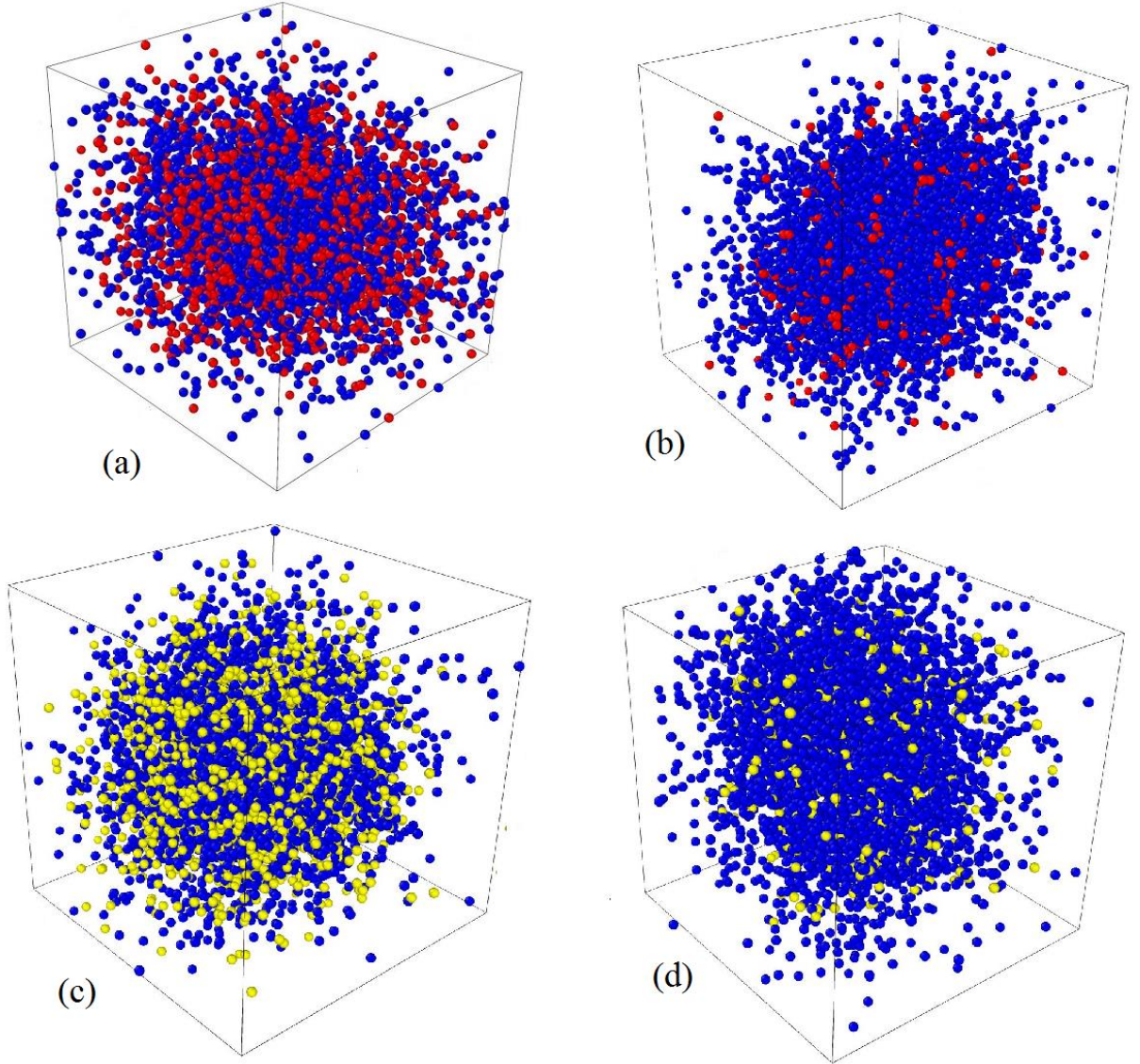
3.2.2. Hızlı Soğutma Sürecinde Termodinamik ve Yapısal Özelliklerin İncelenmesi

Model alaşım sistemlerinin sıcaklığı 1300 K sıcaklıktan başlayarak 100 K sıcaklık azaltılması ile 300 K'ne düşürülmüştür. Her bir sıcaklık azalışında ($T_2 - T_1 = \Delta T$) 1000 MD adımı bekletilmiştir. Buna göre soğutma hızı 3×10^{13} K/s olarak belirlenmiştir. Hızlı soğutma sürecinde bakırın farklı konsantrasyon değerleri için Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemlerinin farklı sıcaklıklarda elde edilen RDF eğrileri, Şekil 3.25'de gösterilmiştir. Hızlı soğutma işlemi sırasında kristal örgü noktalarına yerleşmek için yeterli zaman bulamayan atomlar düzenli kristal yapıyı oluşturamadığı için yapının amorf fazda kararlı kaldığı tespit edilmiştir.



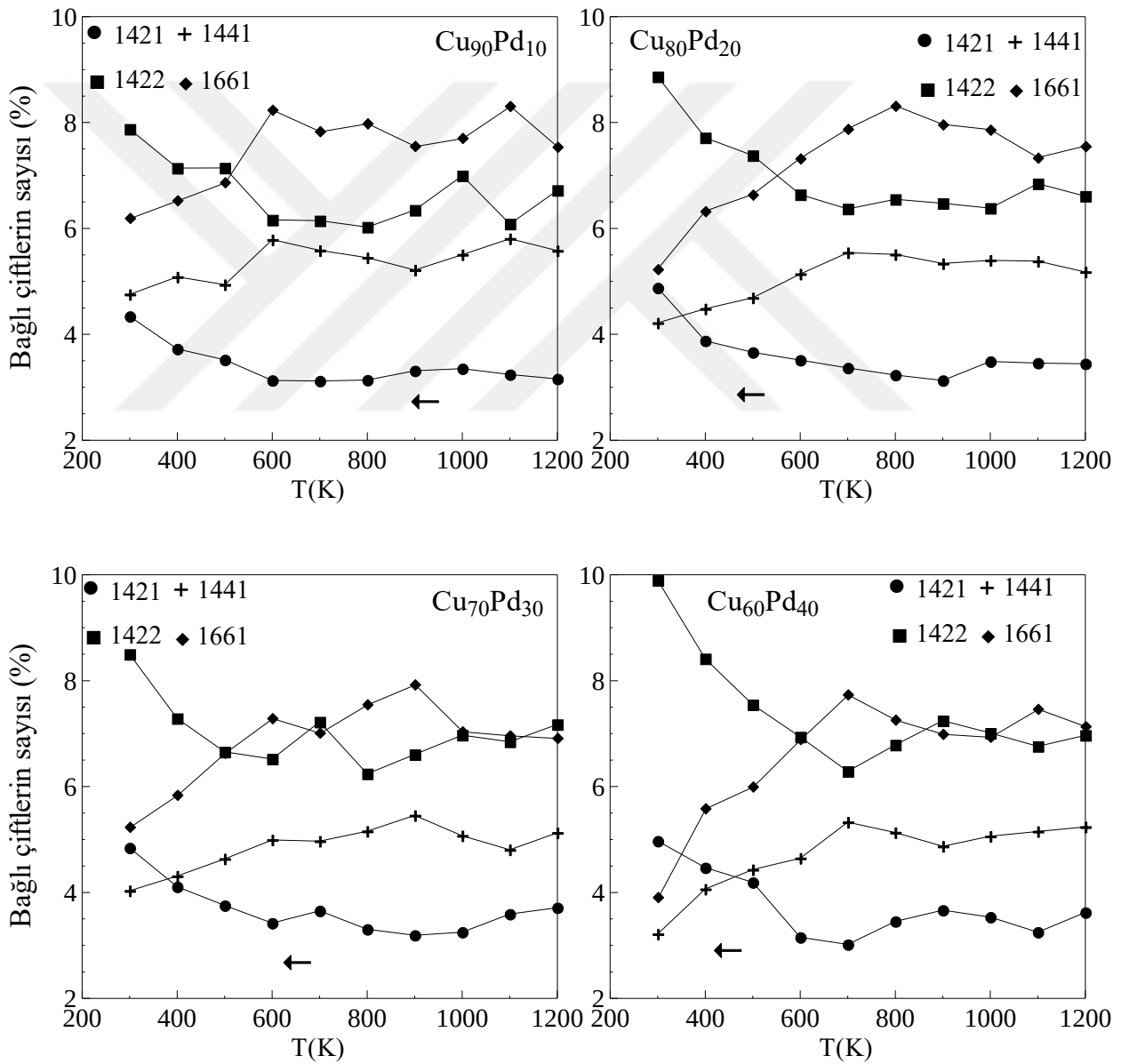
Şekil 3.25. Hızlı soğutma sürecinde bakırın farklı konsantrasyon değerleri için Cu-Pd ve Cu-Pt sistemlerinin farklı sıcaklıklarda elde edilen RDF eğrileri

Hızlı soğutma sürecinde 300 K sıcaklıkta bakırın farklı konsantrasyon (%60 ve %90) değerleri için Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemlerine ait MD hücresi içinde oluşan atomik dağılım görüntüsü, Şekil 3.26'da verilmiştir. Hızlı soğutma sürecinde model sistemleri meydana getiren atomlar kristal örgü noktalarına yerleşme imkânı bulamayarak kristal düzlemleri oluşturmamış ve atomlar düzensiz bir dağılım sergileyerek amorf fazda kararlı kalmışlardır.



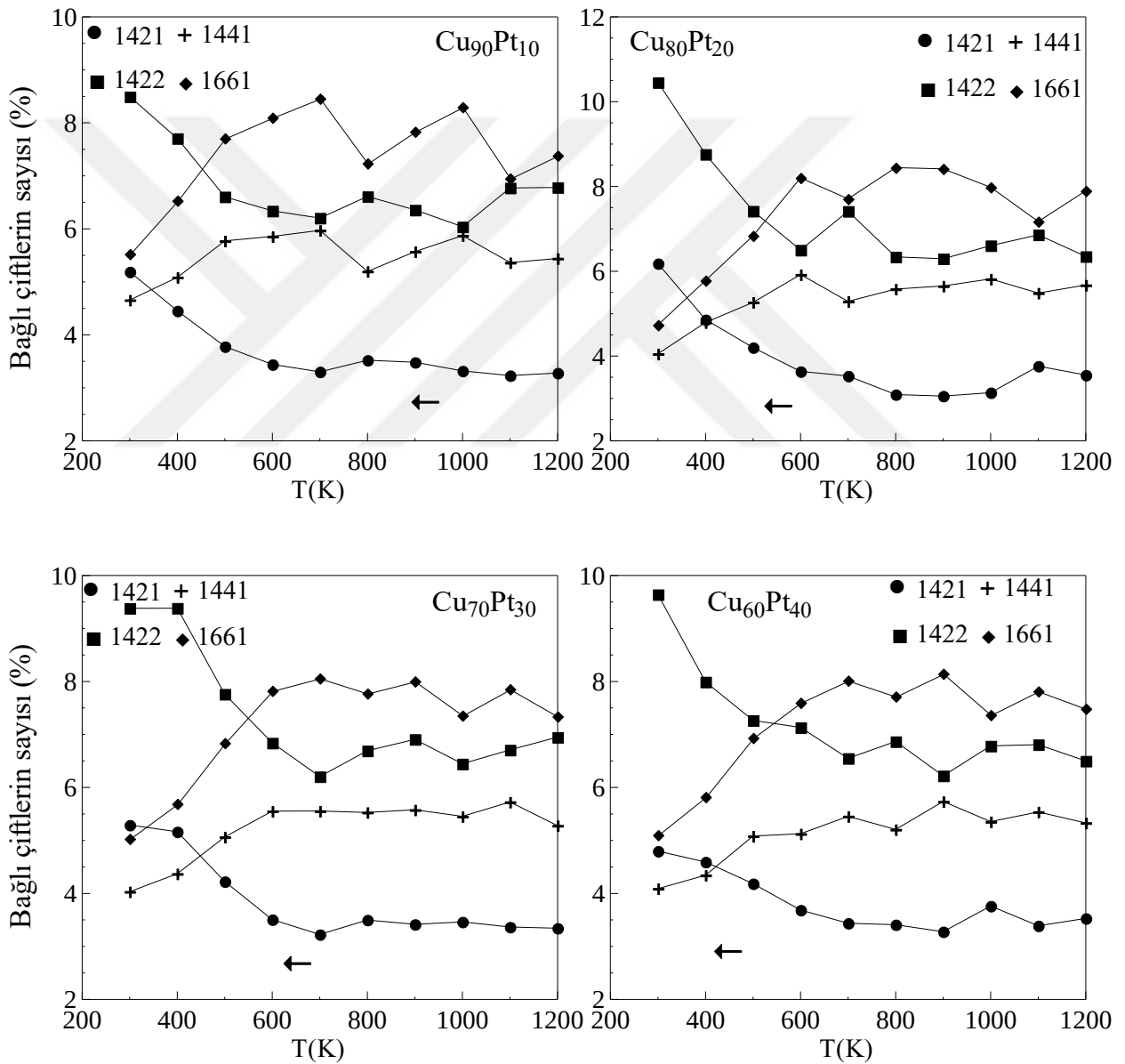
Şekil 3.26. Hızlı soğutma sürecinde 300 K sıcaklıkta bakırın farklı konsantrasyon değerleri için Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemlerinin MD hücresi içindeki atomik dağılım görüntüleri (mavi renk Cu, kırmızı renk Pd sarı renk Pt atomlarını temsil etmektedir) a) Cu₆₀Pd₄₀ b) Cu₉₀Pd₁₀ c) Cu₆₀Pt₄₀ d) Cu₉₀Pt₁₀

Hızlı soğutma sürecinde Cu-Pd için bakırın farklı konsantrasyonları alınarak elde edilen kristal türü bağlı çiftlerin sayısının sıcaklıkla değişimi, Şekil 3.27’de verilmiştir. Şekil incelendiğinde, sıcaklığın azalması ile birlikte bakırın tüm konsantrasyon değerleri için 1441 ve 1661 kristal bağlı çiftlerin sayısı belirli bir sıcaklıktan sonra azalırken, 1421 ve 1422 kristal bağlı çiftlerin sayısı artmıştır. Bu durum, BCC türü kristal örgülerin yapısal olarak bozularak daha çok FCC türü kristal yapılara dönüşümün göstergesi olarak değerlendirilebilir. 1422 bağlı çiftlerin değeri genel olarak tüm model sistemler için 700 K değerinden sonra artış göstermiştir. Ancak Cu₆₀Pd₄₀ konsantrasyonu için sayısı hızla artarak %10 maksimum değerine ulaşmıştır.



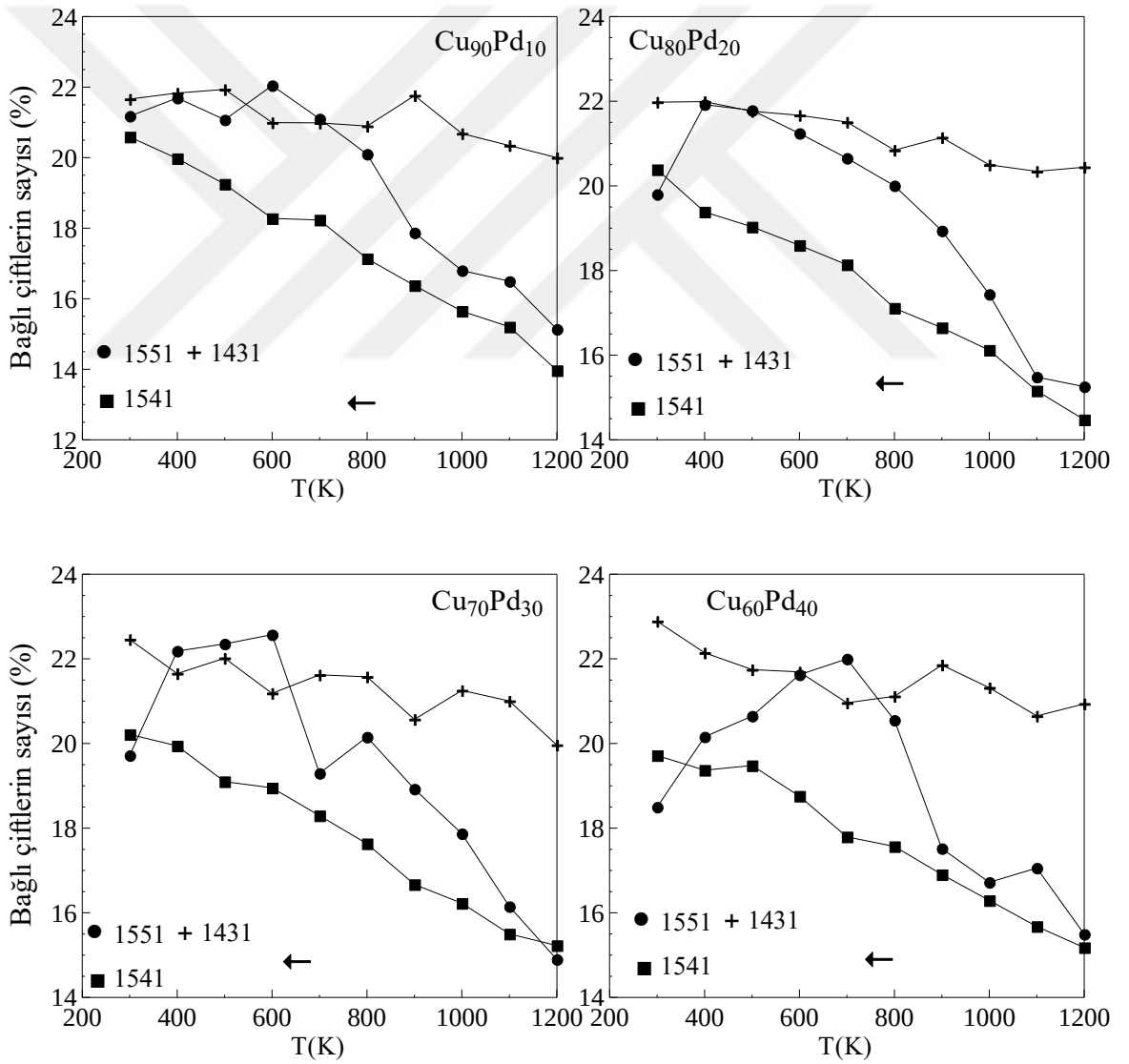
Şekil 3.27. Hızlı soğutma sürecinde bakırın farklı konsantrasyon değerlerinde Cu-Pd alaşımı için kristal türü bağlı çiftlerin sayısının sıcaklıkla değişimi

Hızlı soğutma sürecinde bakırın farklı konsantrasyon değerleri için Cu-Pt model sistemine ait kristal yapıları temsil eden bağlı çiftlerin sıcaklıkla değişimi Şekil 3.28’de gösterilmektedir. Cu-Pt alaşımı için kristal bağlı çiftlerin sayısal değişimi Cu-Pd model sisteminde olduğu gibi bir benzerlik göstermektedir. 1422 bağlı çiftlerin sayısı $\text{Cu}_{60}\text{Pt}_{40}$ maksimum değerinde olurken, aynı bağlı çiftlerin sayısının $\text{Cu}_{80}\text{Pt}_{20}$ model sistemi için maksimum değerini aldığı görülmektedir. 1422 bağlı çiftlerinin amorf fazda varlığının hegzagonal kristal örgülerinin kübik kristal örgülere göre daha fazla olduğu sonucunu doğurmaktadır.

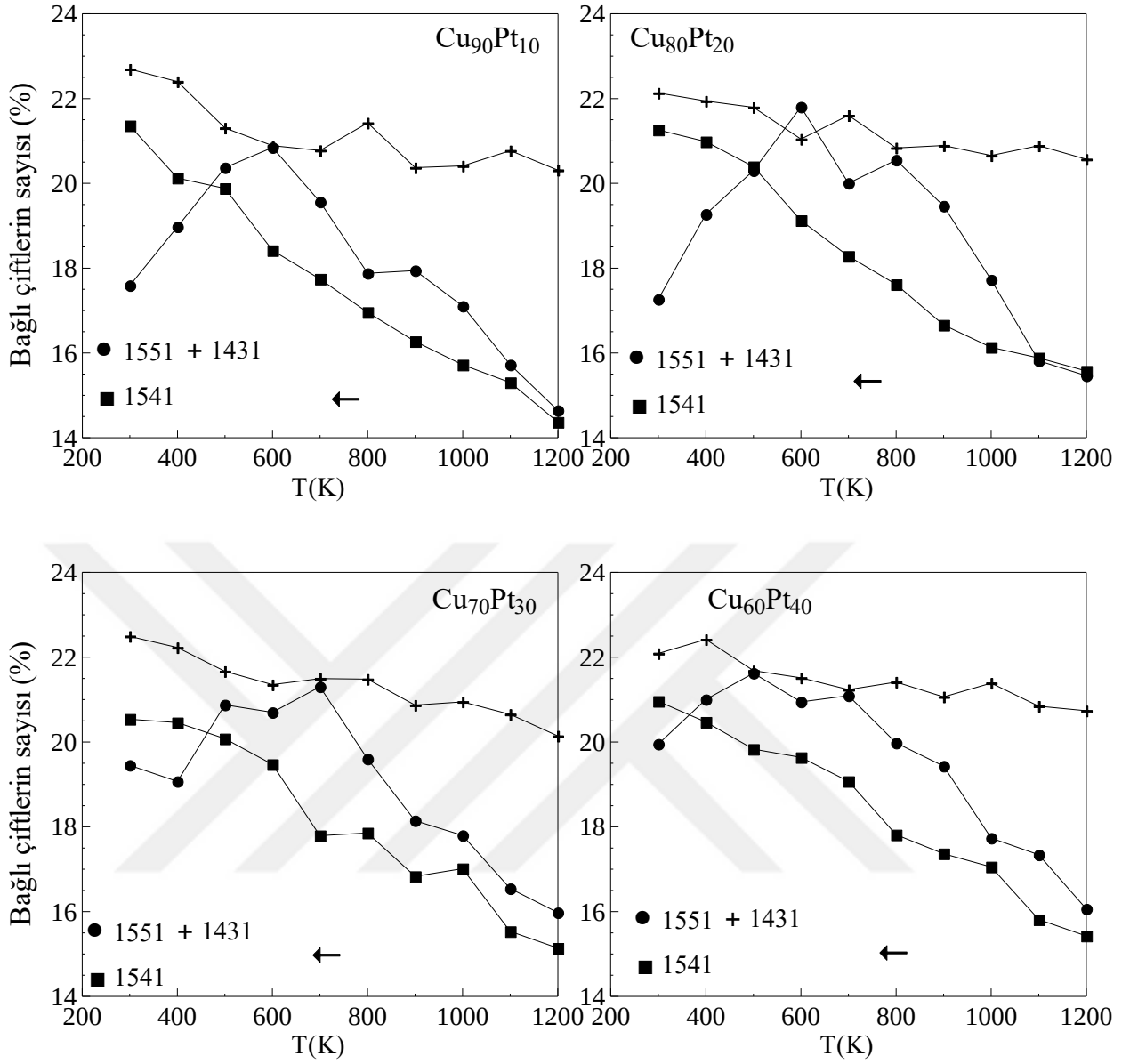


Şekil 3.28. Hızlı soğutma sürecinde bakırın farklı konsantrasyon değerlerinde Cu-Pt alaşımı için kristal bağlı çiftlerin sayısının sıcaklıkla değişimi

Hızlı soğutma sürecinde bakırın farklı konsantrasyon değerleri için Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemlerine ait amorf yapılar da görülen bağlı çiftlerin sayısının sıcaklıkla değişimi, Şekil 3.29 ve Şekil 3.30’da gösterilmektedir. Hızlı soğutma sürecinde amorf bağlı çiftlerin sayısı (1551, 1541, 1431) hızla artmıştır. 1551 bağlı çiftlerin değeri tüm konsantrasyon değerleri için 700 K civarına kadar hızla artmış bu sıcaklık sonrasında ise hızla azalmıştır. Platin konsantrasyonunun en fazla olduğu ($\text{Cu}_{60}\text{Pt}_{40}$) model sisteminde 1551 bağlı çiftlerin sayısı en yüksek (%20) değerini almıştır. 1431 bağlı çiftlerinin sayısı ise genel olarak %20 - %30 arasında değerler almıştır. 1541 amorf bağlı çiftlerinin sayısı tüm model sistemler için ise soğutma süreci boyunca hızla artarak %20 değerinin üzerine çıkmıştır. $\text{Cu}_{90}\text{Pt}_{10}$ için 1551 bağlı çiftlerinin sayısı %21 ‘den %17’ye bir azalma göstermiştir.



Şekil 3.29. Hızlı soğutma sürecinde bakırın farklı konsantrasyon değerlerinde Cu-Pd alaşımı için amorf bağlı çiftlerin sayısının sıcaklıkla değişimi



Şekil 3.30. Hızlı soğutma sürecinde bakırın farklı konsantrasyon değerlerinde Cu-Pt alaşımı için amorf bağı çiftlerin sayısının sıcaklıkla değişimi

Her iki sistem için amorf türü bağı çiftlerin sayısının sıcaklıkla değişimi incelendiğinde sıvı fazda ve yüksek sıcaklıklarda minimum değerde olduğu belirlenmiştir. Düşük sıcaklarda ise 1541 ve 1431 bağı çiftlerin sayısı maksimum değerlerine ulaşmıştır. Bu sonuç, defekte olmuş icos türü topakların amorf fazda daha çok hakim olduğunu göstermektedir. İdeal icos topakları oluşturan 1551 bağı çiftlerin değişimi daha farklıdır. 1551 bağı çiftlerinin sayısı 300 K sıcaklıkta, bakırın tüm konsantrasyon değerlerinde en düşük değerini almaktadır. Fakat Cu-Pd alaşımı için farklı bir durum söz konusudur. 1551 bağı çifti $\text{Cu}_{90}\text{Pd}_{10}$ alaşım sisteminde en yüksek değerini almıştır. Bu sonuç Cu-Pd alaşımı için bakır konsantrasyonun ideal ICOS türü

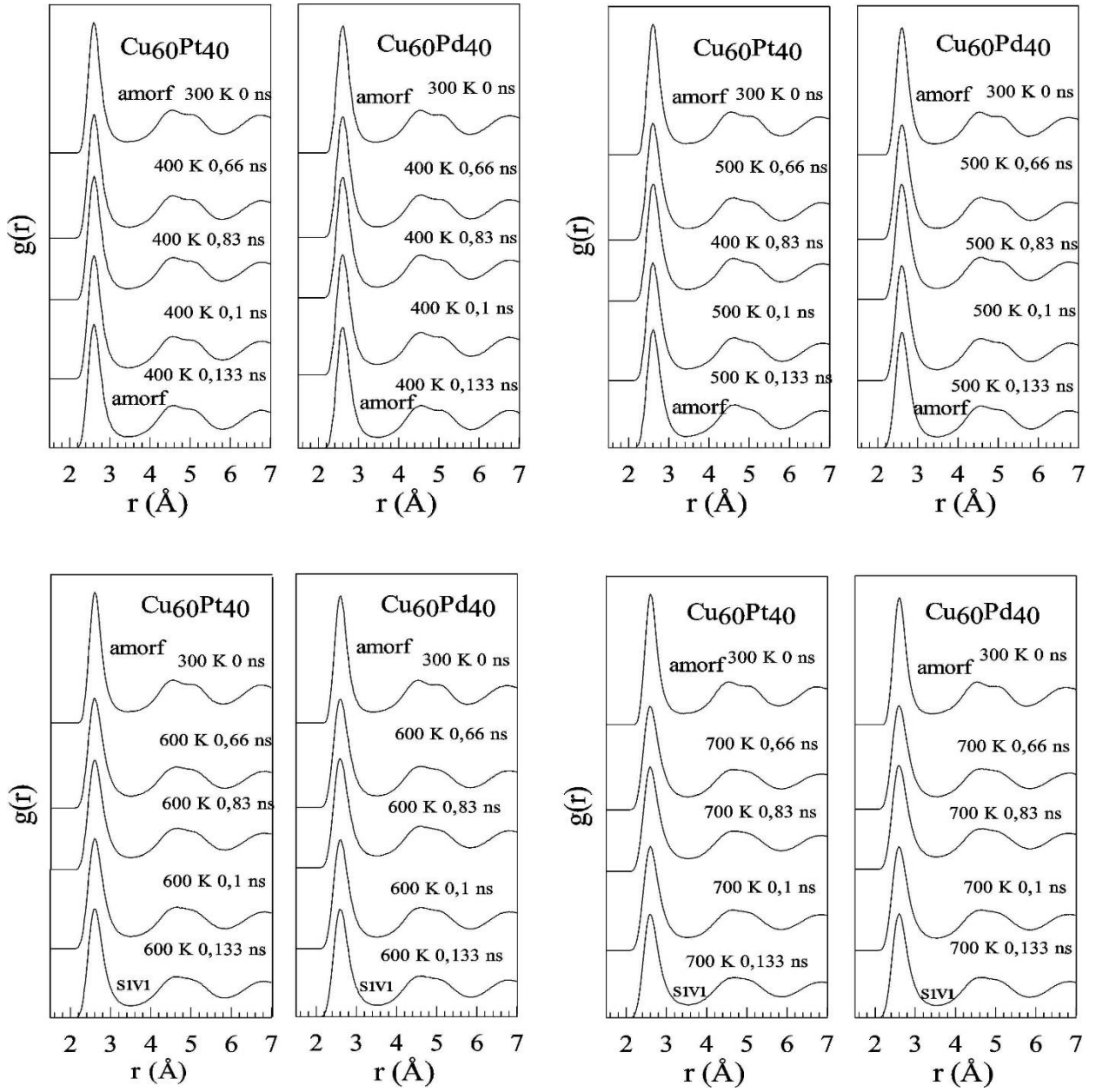
topakları oluşmasında önemli bir etkiye sahip olduğu sonucuna varılır. Amorf oluşturma eğilimi ideal ICOS türü ve buna bağlı olarak 1551 bağlı çiftlerin sayısı ile orantılıdır. Bu durum, amorf yapı oluşturma eğiliminin en fazla Cu₉₀Pd₁₀ model sisteminde meydana geldiği belirlenmiştir.

3.2.3. Tavlama Sürecinde Kristalleşme Mekanizmasının İncelenmesi

3.2.3.1. Avrami Katsayılarının Belirlenmesi

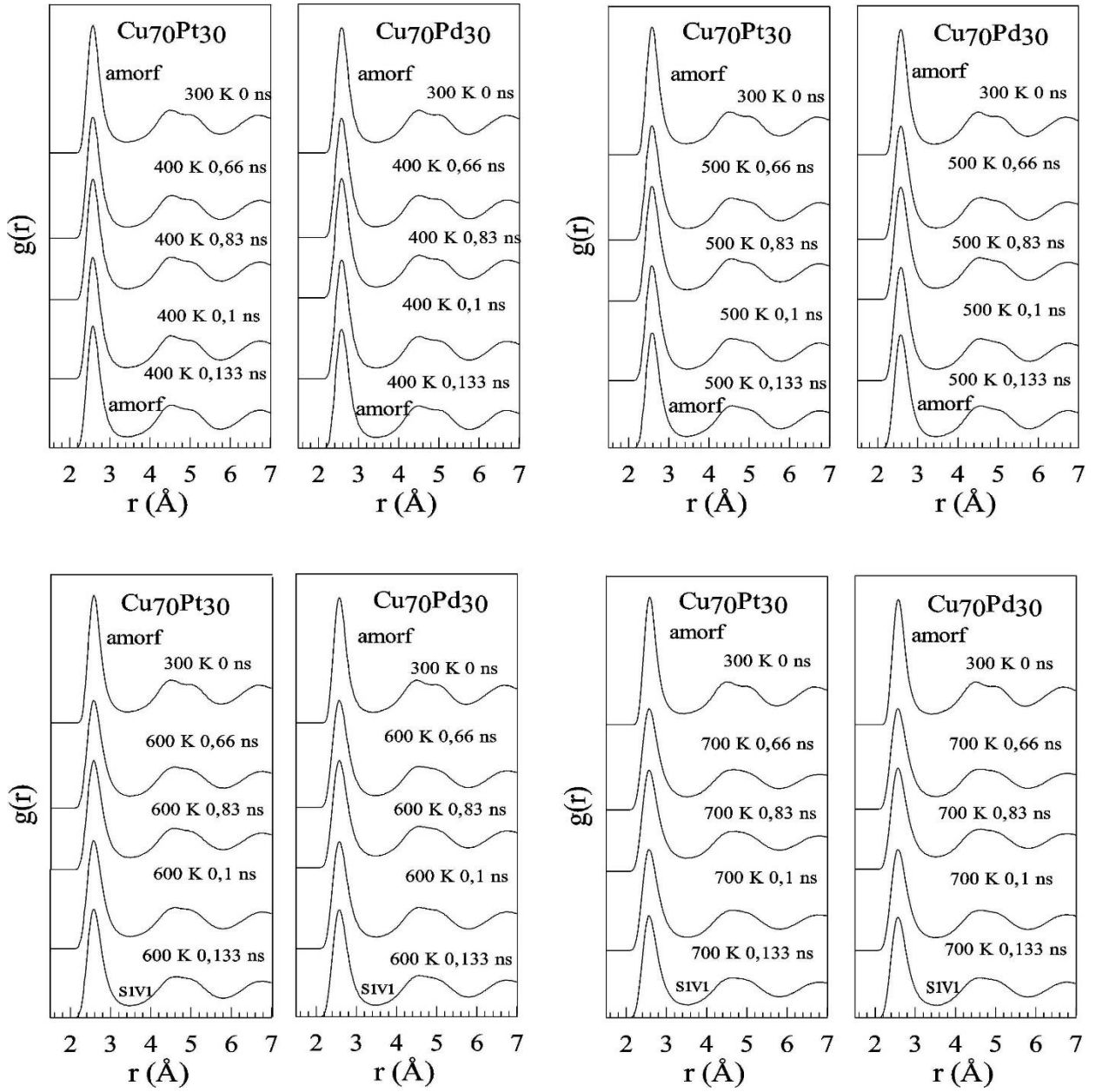
Model sistemler için tavlama süreci şu aşamalardan meydana gelmektedir. 1. aşamada, Sıvı fazdan itibaren 3×10^{13} K/s soğutma hızı uygulanarak model sistemlerin amorf faza dönüşümü gerçekleştirildi. Amorf fazdan itibaren sıcaklıklar sırasıyla 400 K, 500 K, 600 K ve 700 K sıcaklıklarına yükseltildi. 2. aşamada, amorf fazdan itibaren 50000 MD adımı bekletilerek kristalleşmenin olup olmadığı belirlenmeye çalışıldı. 3. aşamada, 50000 MD adımında kristalleşme olayı gözlenmediğinden bekletme süresi 500000 MD adımına çıkarılarak işlem tekrar edildi. 4. aşamada, 500000 MD adımında kristalleşme gözlendiğinden kristalleşmenin özelliklerini belirleyen Avrami katsayıları farklı tavlama sıcaklıklarında hesaplandı. Son adımda ise yine farklı tavlama sıcaklıklarında meydana gelen polyhedron türü topakların kristalleşme mekanizmasına etkisi araştırıldı.

Şekil 3.31, Cu₆₀Pd₄₀ ve Cu₆₀Pt₄₀ model sistemleri için farklı tavlama sıcaklıklarında 50000 MD adımı bekletilerek elde edilen RDF eğrilerinin değişimini göstermektedir. Tavlama sürecinde model alaşım sistemlerinin 300 K sıcaklık değerinden başlayarak (0 ns) farklı tavlama süreleri içinde yapısal özellikleri incelenmiştir. Şekil incelendiğinde, tavlama sürecinde hem Cu₆₀Pd₄₀ hem de Cu₆₀Pt₄₀ model sistemleri için 300 K sıcaklık değerinden 400 K sıcaklığına arttırıldığında bu süreç içerisinde herhangi bir kristal faza dönüşüm gerçekleşmemiş ve model sistemler amorf fazda kararlı kalmıştır. Aynı şekilde, 300 K sıcaklıktan 500 K, 600 K ve 700 K sıcaklık değerine çıkarılan tavlama sürecinde herhangi bir kristal örgü düzeni oluşmamıştır.



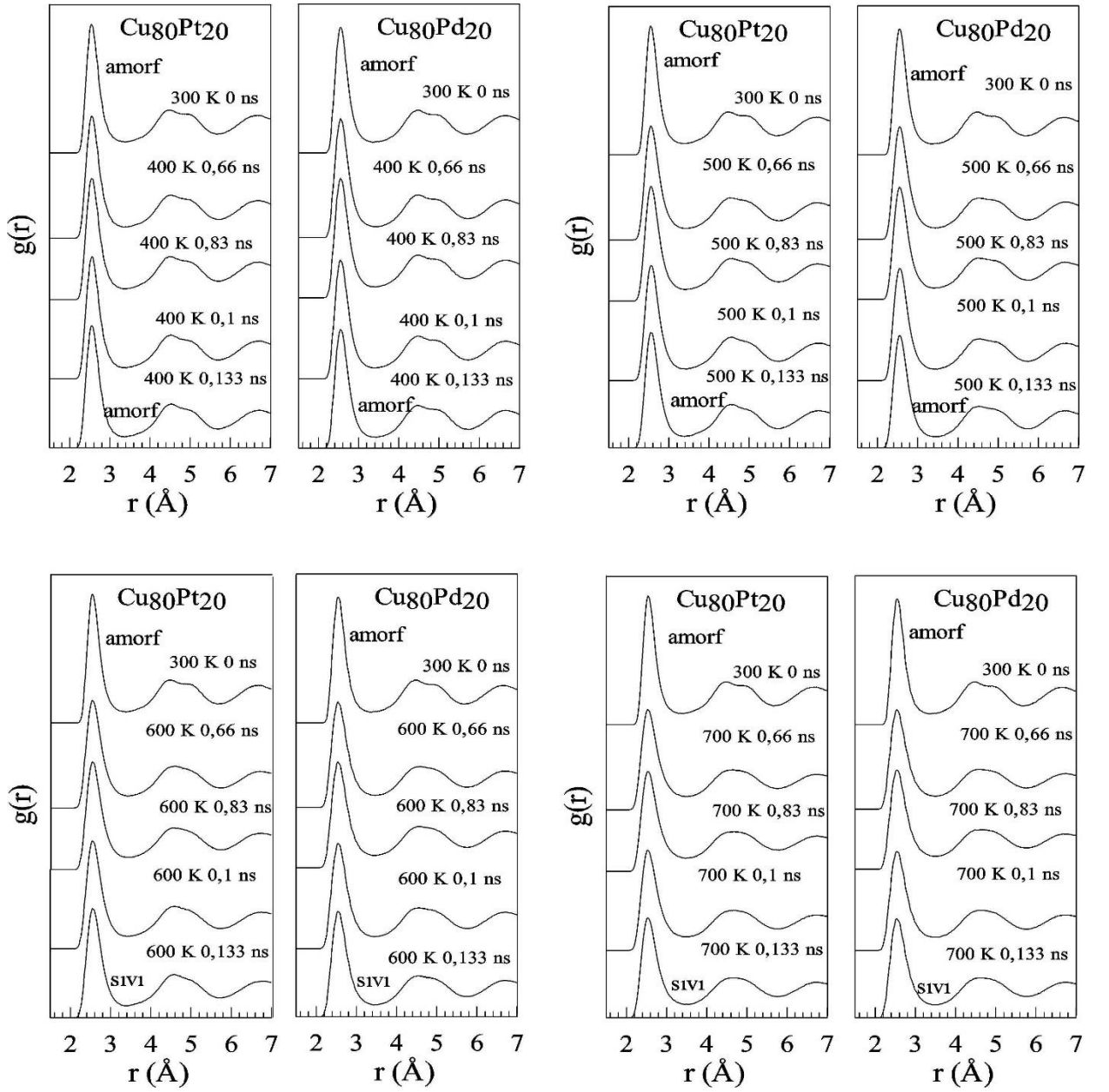
Şekil 3.31. Cu₆₀Pd₄₀ ve Cu₆₀Pt₄₀ model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 50000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri

Şekil 3.32, Cu₇₀Pd₃₀ ve Cu₇₀Pt₃₀ model sistemleri için farklı tavlama sıcaklıklarında 50000 MD adımı bekletilerek elde edilen RDF eğrilerinin değişimini göstermektedir. Sıcaklık 300 K değerinden 400 K ve 500 K sıcaklıklarına arttırıldığında amorf fazda yapı amorf fazda iken, 600 K ve 700 K sıcaklık değerlerine çıkılarak yapılan tavlama sürecinde Cu₇₀Pd₃₀ ve Cu₇₀Pt₃₀ model sistemlerin sıvı fazda olduğu tespit edilmiştir.



Şekil 3.32. Cu₇₀Pd₃₀ ve Cu₇₀Pt₃₀ model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 50000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri

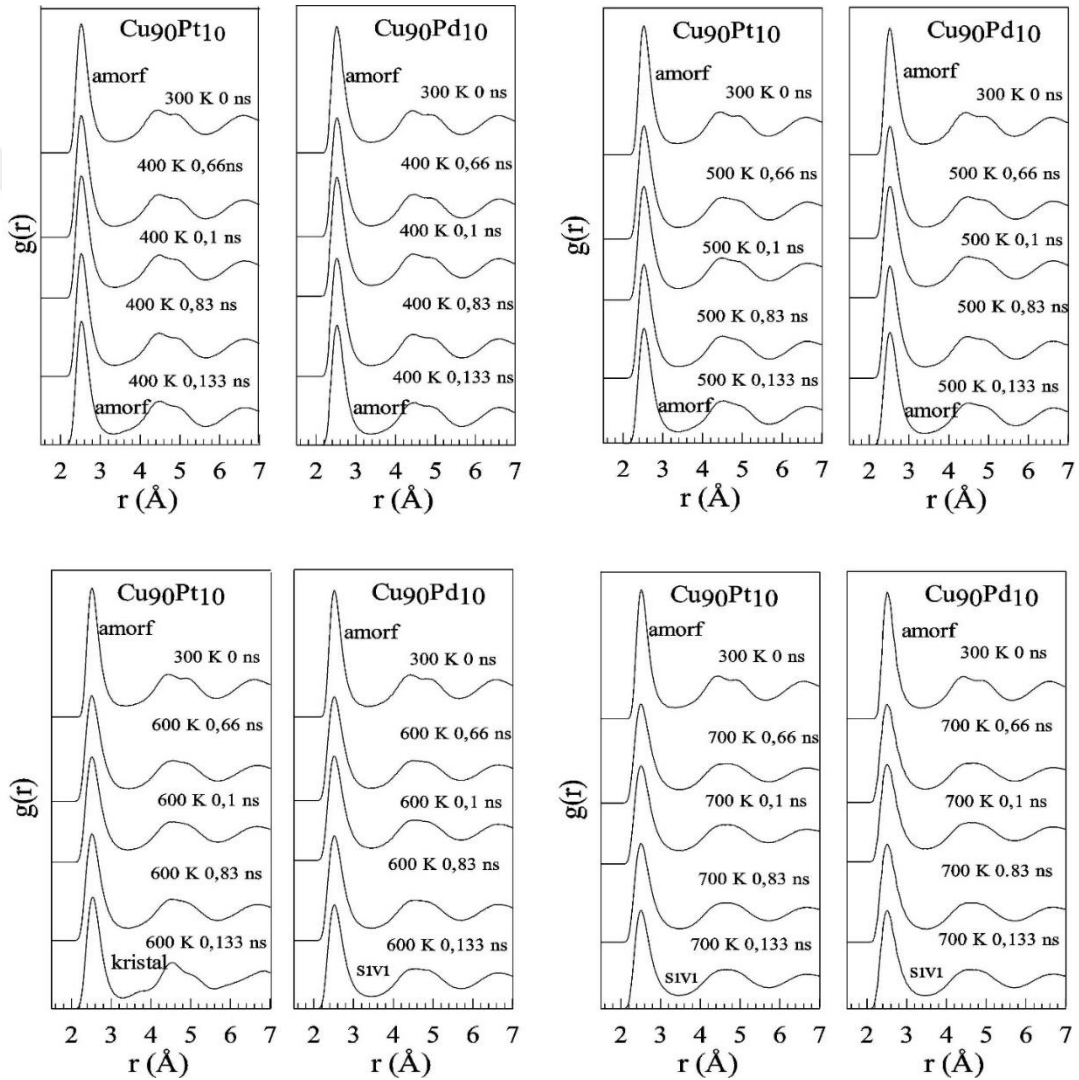
Şekil 3.33, Cu₈₀Pd₂₀ ve Cu₈₀Pt₂₀ model sistemleri için farklı tavlama sıcaklıklarında 50000 MD adımı bekletilerek elde edilen RDF eğrilerinin değişimini göstermektedir. Bu şekil ele alındığında, benzer şekilde dört farklı tavlama sıcaklığı sürecinde kristal örgü yapısı gözlenmemiştir.



Şekil 3.33. Cu₈₀Pd₂₀ ve Cu₈₀Pt₂₀ model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 50000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri

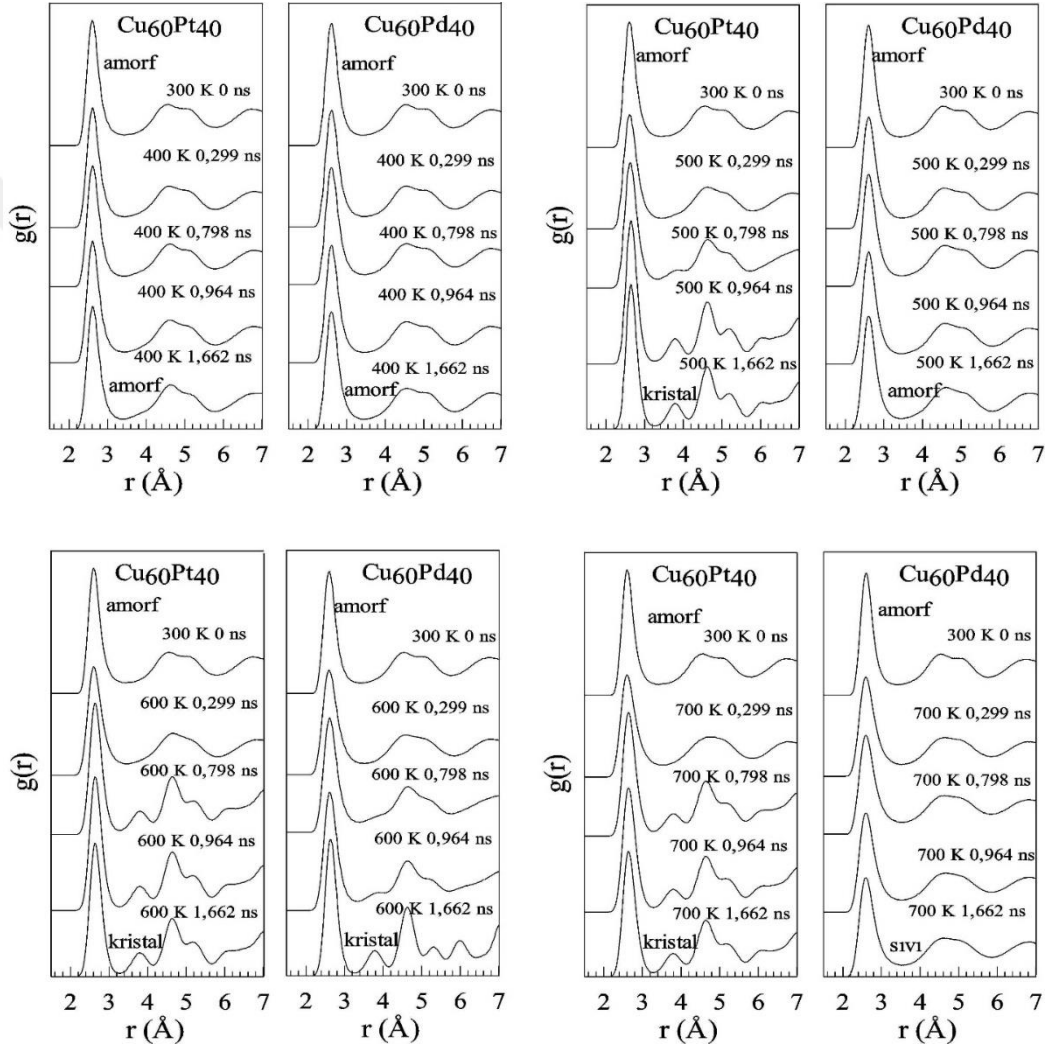
Şekil 3.34, Cu₉₀Pd₁₀ ve Cu₉₀Pt₁₀ model sistemleri için farklı tavlama sıcaklıklarında 50000 MD adımı bekletilerek elde edilen RDF eğrilerinin değişimini göstermektedir. Cu₉₀Pd₁₀ ve Cu₉₀Pt₁₀ model sistemleri karşılaştırıldığında, 300 K sıcaklık değerinden 600 K sıcaklık değerine sırasıyla farklı tavlama sürelerinde bekletilerek uygulanan tavlama işleminde Cu₉₀Pt₁₀

model sisteminin RDF eğrilerinin belirli atomik uzaklıklara karşılık gelen pik şiddetlerinin daha belirgin olmaya başladığı görülmektedir. Bu durum kristal örgü düzeni yapısına dönüşümün az da olsa gerçekleştiği şeklinde yorumlanmıştır. Pt katkılı Cu alaşım sisteminin bakırın konsantrasyon oranının en yüksek olması durumunda kristal faza dönüşüm için ideal bir yapı ve oran olduğu sonucuna varılmıştır. Aynı durumdaki Pd katkılı $\text{Cu}_{90}\text{Pd}_{10}$ model sisteminde herhangi bir kristal faza dönüşüm gözlenmemiştir. Sonuç olarak, tavlama zamanının düşük tutulduğu durumda en fazla Cu oranlı ve Pt katkılı model sistemi yüksek tavlama sıcaklığında kristalleşmeye neden olmuştur.



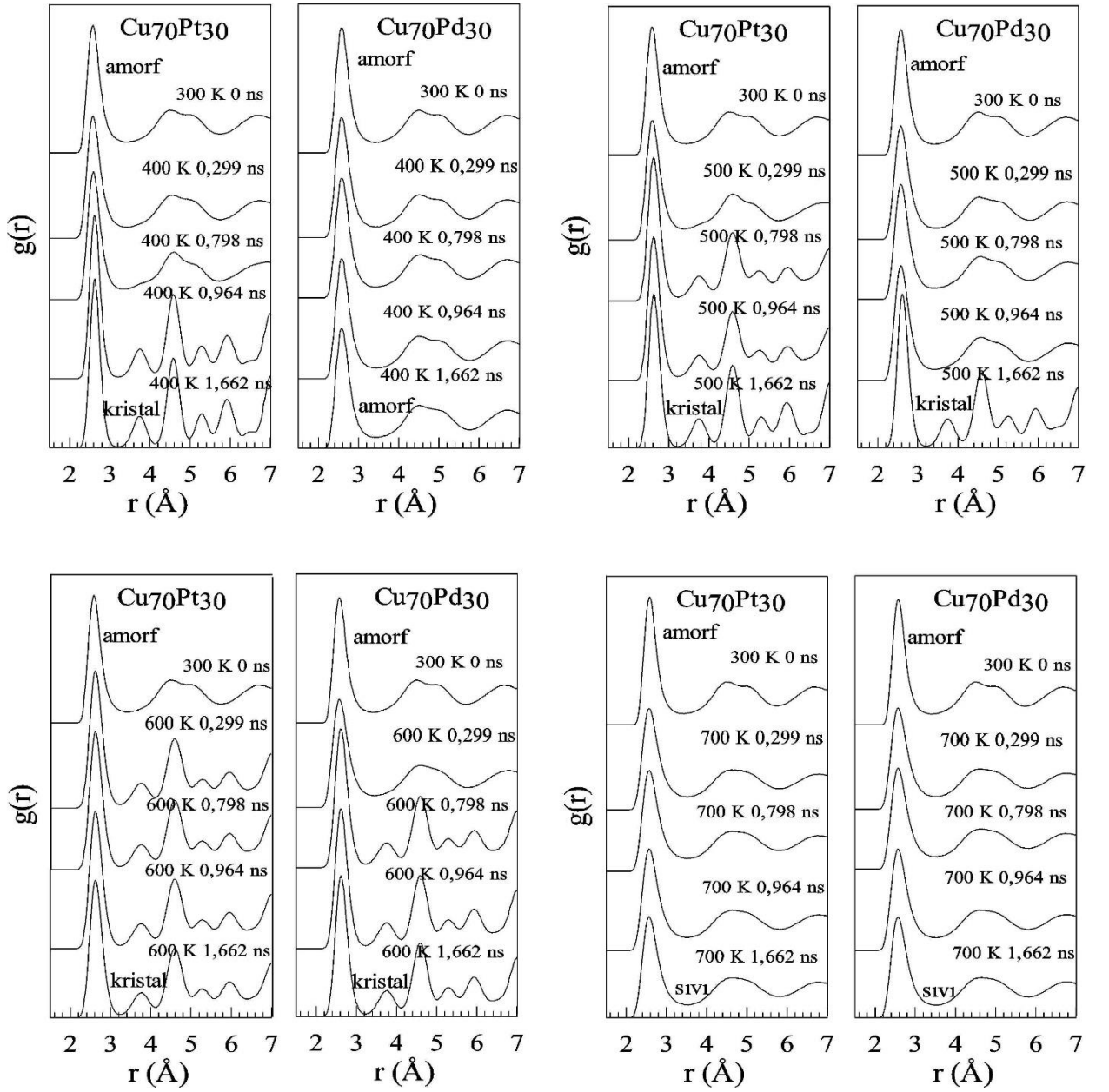
Şekil 3.34. $\text{Cu}_{90}\text{Pd}_{10}$ ve $\text{Cu}_{90}\text{Pt}_{10}$ model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 50000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri

Farklı tavlama sıcaklıklarında 50000 MD adımı bekletilerek elde edilen RDF eğrileri incelendiğinde her iki model sistem içinde ideal kristal faza dönüşümün gerçekleşmediği belirlenmiştir. Bu bekletme zamanı yeterli olmadığı için aynı tavlama sıcaklıklarında daha fazla MD adım bekletme sağlanmış ve aynı sıcaklıklarda 500000 MD adımı bekletilerek kristal faza dönüşümün meydana gelip gelmediği araştırılmıştır. Bekletme zamanının artırılmasıyla elde edilen Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemleri için farklı tavlama sıcaklıklarında 500000 MD adım bekletilerek elde edilen RDF eğrileri, Şekil 3.35, Şekil 3.36, Şekil 3.37 ve Şekil 3.38’de gösterilmiştir.



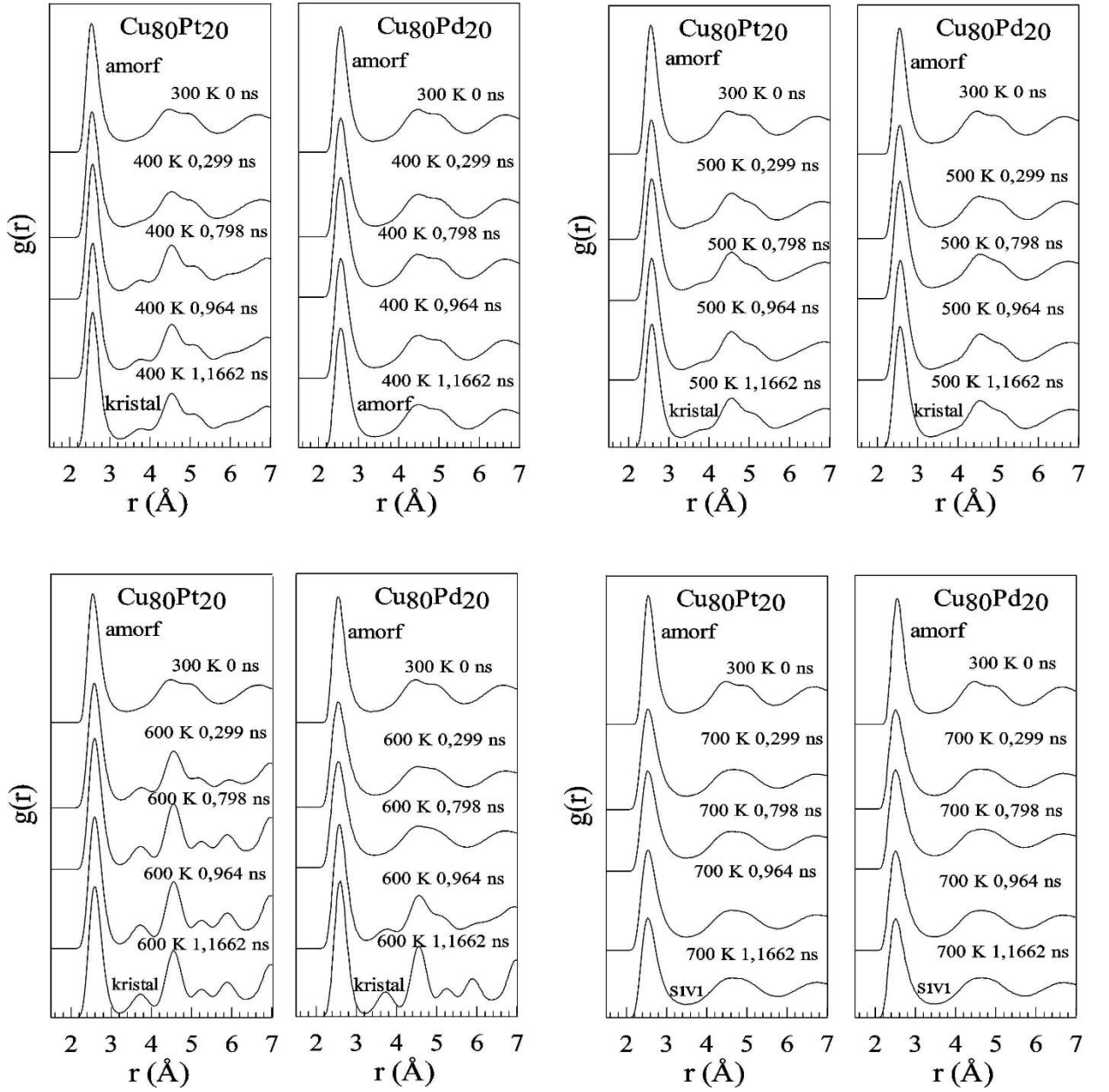
Şekil 3.35. Cu₆₀Pd₄₀ ve Cu₆₀Pt₄₀ model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 500000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri

Şekiller incelendiğinde, genel anlamda belirli atomik uzaklıklarına karşılık gelen RDF eğrilerinin pik şiddetlerinin daha belirgin ve şiddetli olduğu belirlenmiştir. Tüm model alaşım sistemleri için Pt katkılı alaşımlar Pd katkılı alaşımlara göre daha erken zamanda kristalleşmeye başladığı görülmektedir. Bir başka ifadeyle, alaşım sistemine Pt katkısı amorf fazdan itibaren yeniden kristalleşme sürecini azaltmıştır. Sadece 700 K tavlama sıcaklığında $\text{Cu}_{60}\text{Pt}_{40}$ model sistemi haricinde her iki model sistem içinde herhangi bir kristalleşme görülmemiş ve model sistemler sıvı fazda kararlı kalmıştır. Burada özellikle 700 K sıcaklıkta model sistemin sıvı faza dönüşümün gerçekleşmemesini Pt katkısının etkisi olarak değerlendirilebilir. $\text{Cu}_{60}\text{Pd}_{40}$ için 400 K, $\text{Cu}_{70}\text{Pd}_{30}$ için 400 K ve $\text{Cu}_{80}\text{Pd}_{20}$ için 400 K ve 500 K tavlama sıcaklıklarında herhangi bir kristal faza dönüşüm oluşmamıştır. Cu-Pd yapısına ait deneysel çalışmalarda faz diyagramları incelenmiş ve Cu-Pd alaşımına düzenlilik-düzensizlik noktasının belirlendiği elektron difraksiyon ölçümleri incelenmiştir. Bu deneysel sonuçlara göre Cu-Pd yapısı için, Watanabe vd., [93] Pd'nin atomik yüzdesel olarak %13-%28 arasında değiştiği bölgede kısa-mesafe düzeni gözlemiştir. Kısa-mesafe düzenine sahip bu düzensiz bölgelerin düzenli yapıdaki alanların içinde mevcut olduğu sonucu elde edilmiştir. Cu-Pd model sisteminde Pd'nin belirli konsantrasyonları için kristal faza dönüşmemesinin sebebi meydana gelen bu düzensiz bölgelerin varlığı olarak açıklanabilir [88].

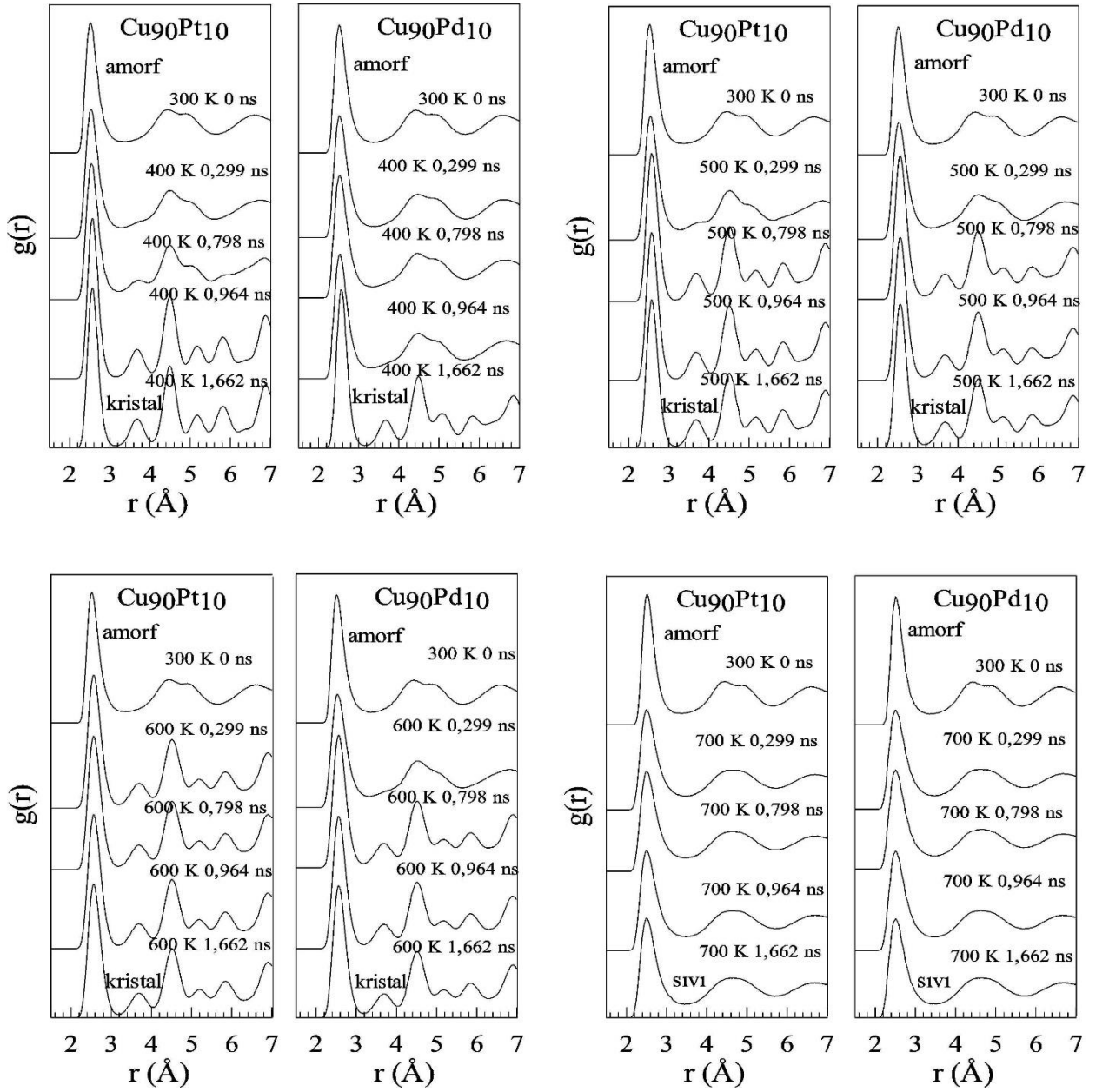


Şekil 3.36. Cu₇₀Pd₃₀ ve Cu₇₀Pt₃₀ model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 500000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri

Tavlama sürecinde bakır etkisinin kristalleşmeye etkisini gözlemlemek amacıyla en düşük ve en yüksek Cu konsantrasyonlu Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemlerine ait RDF eğrileri, Şekil 3.39 ve Şekil 3.40’da gösterilmektedir. RDF eğrileri incelendiğinde, Cu₆₀Pt₄₀ model sisteminin tüm tavlama zamanlarında kristal faza dönüşümü gerçekleşmemiştir. Bakır konsantrasyon oranı %90 çıkartıldığında, 0,798 ns’den sonra kristal pik şiddetleri artmış ve RDF pikleri daha belirgin olmaya başlamıştır. 400 K tavlama sıcaklığında RDF eğrileri incelendiğinde, düşük tavlama sıcaklığında bakırın konsantrasyon oranı arttıkça kristalleşmenin gerçekleştiği görülmüştür. Model alaşım sistemleri için 700 K tavlama sıcaklığı hariç diğer tüm tavlama sıcaklıklarında kristalleşme gözlenmiştir. Ancak, model sistemler karşılaştırıldığında farklı tavlama sıcaklıklarında Pt katkılı alaşım sistemlerinde Pd katkılı sistemlere göre kristalleşme sürecinin daha erken başladığı gözlenmiştir. 700 K tavlama sıcaklığında Cu₆₀Pt₄₀ model sisteminde kristalleşme gözlenirken Cu₆₀Pd₄₀ model sisteminde yapı sıvı fazda kalmıştır. 400 K, 500 K ve 600 K tavlama sıcaklıklarında kristalleşme meydana gelmiş ancak yine iki farklı alaşım sistemi karşılaştırıldığında Pt katkılı model sistemde kristalleşme sürecinin daha erken başladığı görülmüştür önceden başlamıştır. Bakır ağırlıklı Pd ve Pt alaşımları incelendiğinde, Pt atomunun katkısının Pd atomuna göre kristalleşme eğilimini arttırdığı sonucuna varılmıştır.

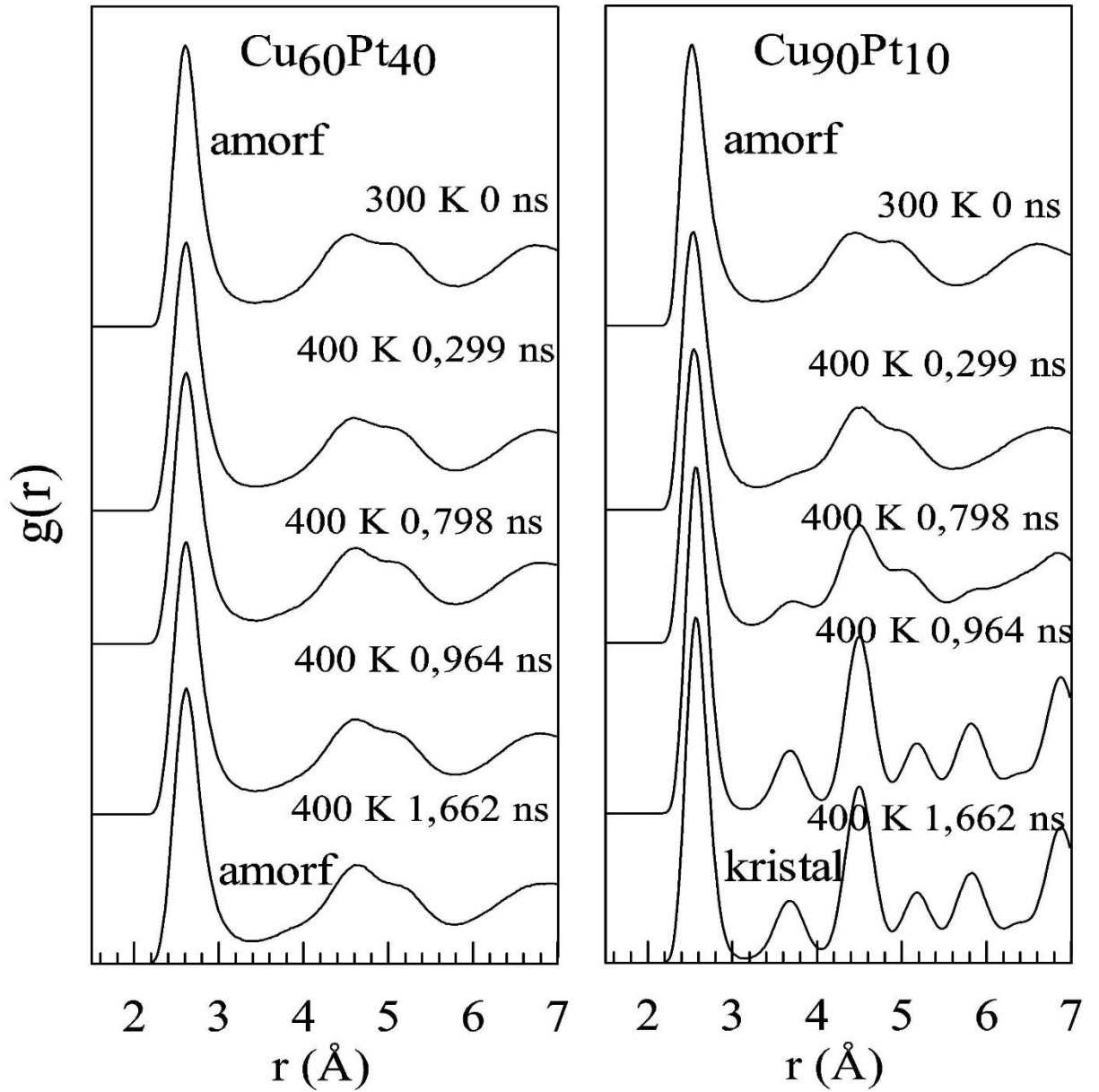


Şekil 3.37. $\text{Cu}_{80}\text{Pd}_{20}$ ve $\text{Cu}_{80}\text{Pt}_{20}$ model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 500000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri

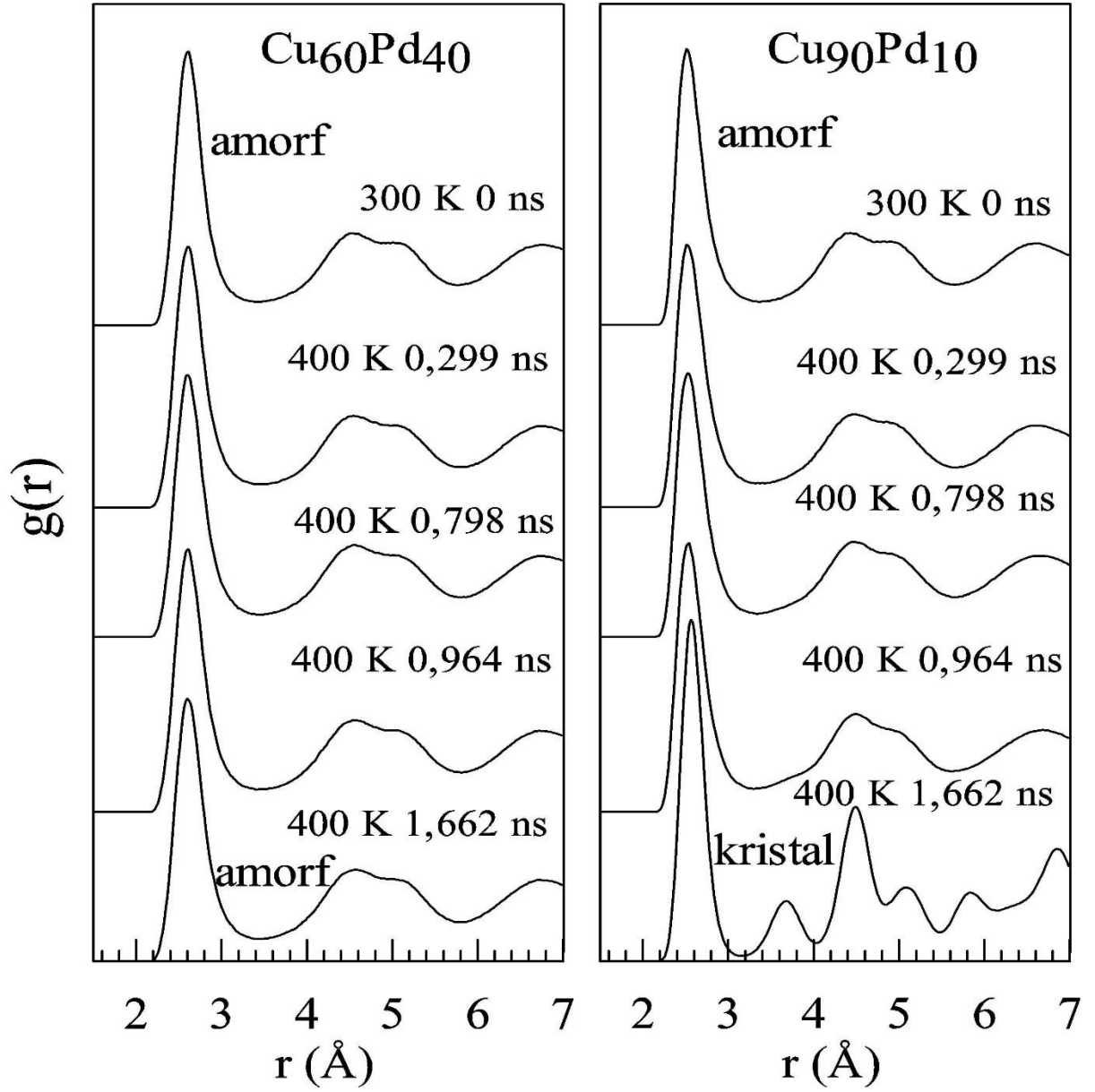


Şekil 3.38. Cu₉₀Pd₁₀ ve Cu₉₀Pt₁₀ model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 500000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri

Şekil 3.39 ve Şekil 3.40 400 K tavlama sıcaklığında farklı tavlama zamanları için $\text{Cu}_{60}\text{Pd}_{40}$ ve $\text{Cu}_{90}\text{Pd}_{10}$ model sistemlerine ait RDF eğrilerini göstermektedir. Düşük tavlama sıcaklığında tüm tavlama zamanlarında $\text{Cu}_{60}\text{Pd}_{40}$ model sistemi amorf fazda kararlı kalmış ve kristal faza dönüşüm gerçekleşmemiştir. Bakırın yoğunlaşma oranı arttıkça $\text{Cu}_{90}\text{Pd}_{10}$ model sistemi için 1,662 ns'de kristal pikleri belirgin olmaya başlamıştır ve düzenli kristal faza dönüşüm gerçekleşmiştir. RDF eğrilerinde elde edilen sonuçlar düşük tavlama sıcaklığında Pt katkılı model sistemin Pd katkılı model sisteme göre daha erken kristalleşmeye başladığını göstermektedir.



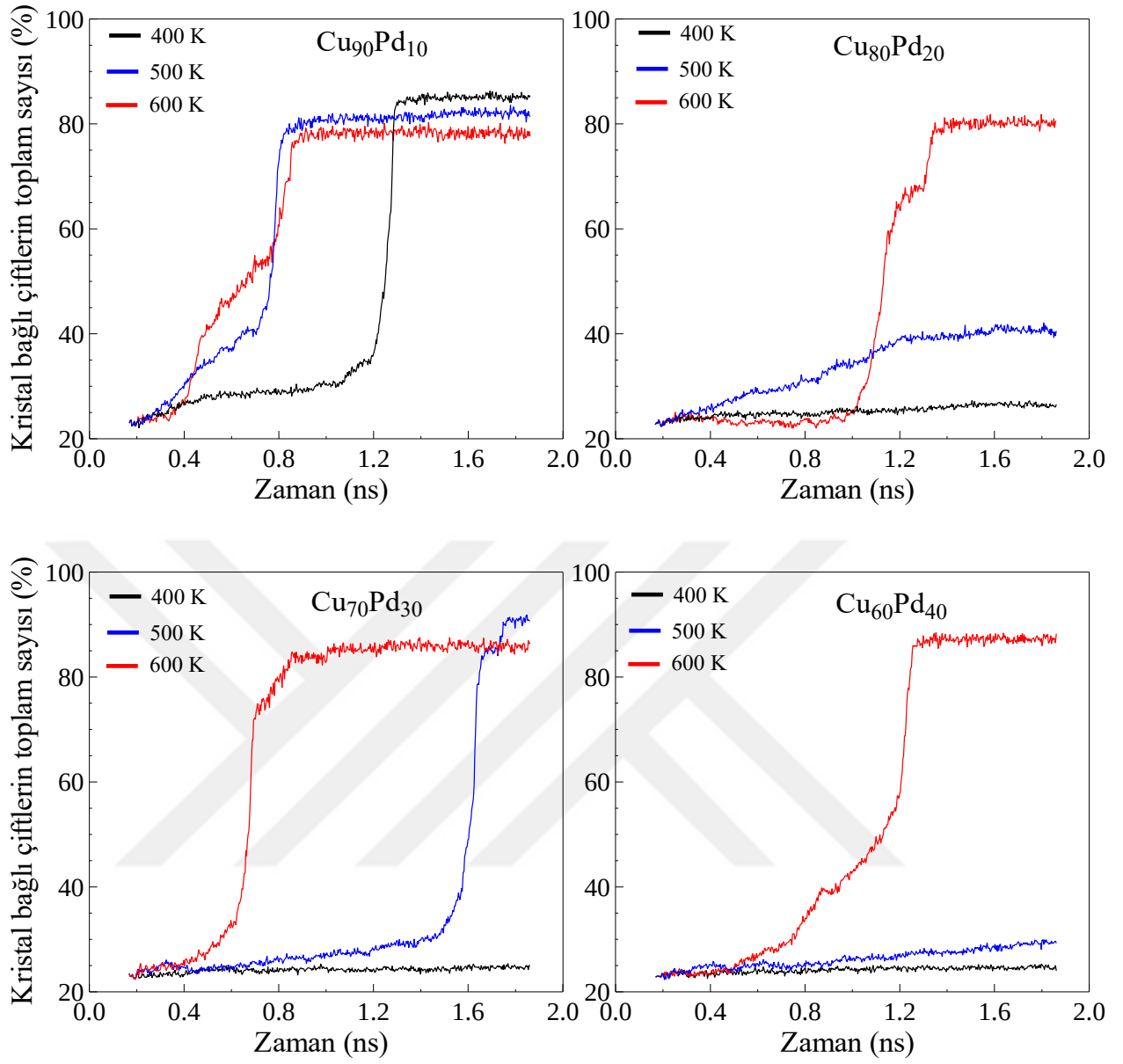
Şekil 3.39. Cu%60 ve Cu%90 konsantrasyonlu Pt katkılı model sistemler için 400 K tavlama sıcaklığında ve farklı zamanlarda RDF eğrileri



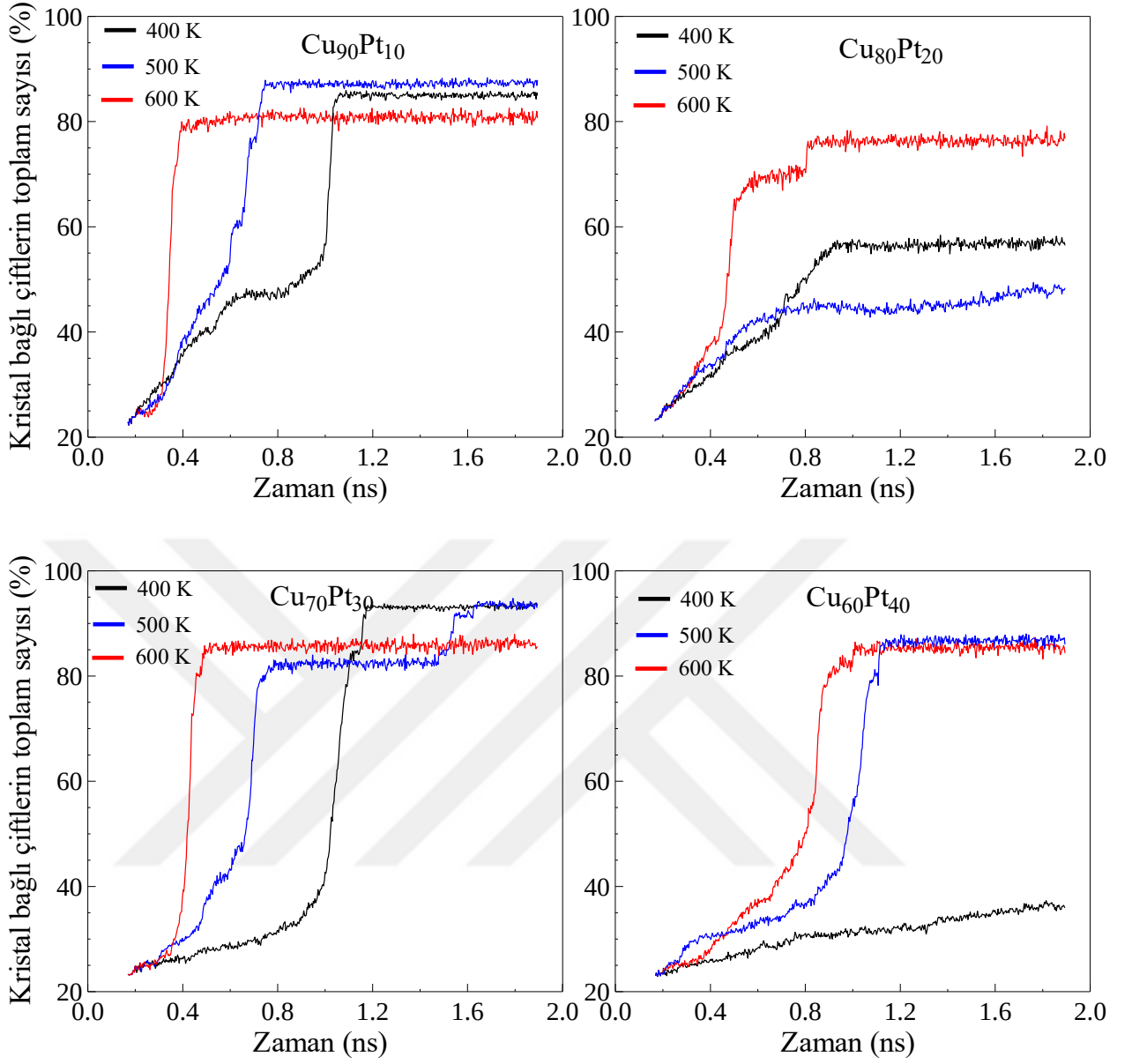
Şekil 3.40. Cu %60 ve Cu %90 konsantrasyonlu Pd katkılı model sistemler için 400 K tavlama sıcaklığında ve farklı zamanlarda RDF eğrileri

Tavlama sürecinde farklı Cu konsantrasyon değerlerinde Cu-Pd model sistemi için 400 K, 500 K ve 600 K tavlama sıcaklıklarında kristal yapıdaki bağlı çiftlerin toplam ($1421 + 1422 + 1441 + 1661$) sayısının yüzde olarak değerlerinin zamanla değişimi, Şekil 3.41’de gösterilmiştir. Cu₉₀Pd₁₀ model sistemi için kristal bağlı çift sayısı 500 K ve 600 K tavlama sıcaklığında 0,2 ns den sonra yaklaşık 0,8 ns kadar hızlı bir değişim (artış) göstermiş fakat 400 K tavlama sıcaklığında bu değişim 1,2 ns’ye kadar yavaş bir artış olarak gerçekleşmiştir. Düşük tavlama sıcaklığında daha geç kristalleşme gerçekleşmiştir. Tavlama sıcaklığı arttıkça kristal yapıları temsil eden bağlı çiftlerin sayısında azalma gözlenmiştir. Cu₈₀Pd₂₀ ve Cu₆₀Pd₄₀ model sistemleri için 400 K ve 500 K tavlama sıcaklıklarında kristal bağlı çiftlerin sayısı düşük kalmıştır. 600 K tavlama sıcaklığında ise yaklaşık 1 ns den itibaren artış göstermiş ve sayısı sabit kalmıştır. Bu durum 600 K sıcaklığında kristalleşmenin meydana geldiğini göstermektedir. Cu₇₀Pd₃₀ model sisteminde 400 K kristalleşme gözlenmez iken, 500 K ve 600 K tavlama sıcaklıklarında ise kristalleşme gerçekleşmiştir. Genel anlamda, tavlama sıcaklığı arttıkça kristalleşmenin daha kolay meydana geldiği sonucuna varılmıştır.

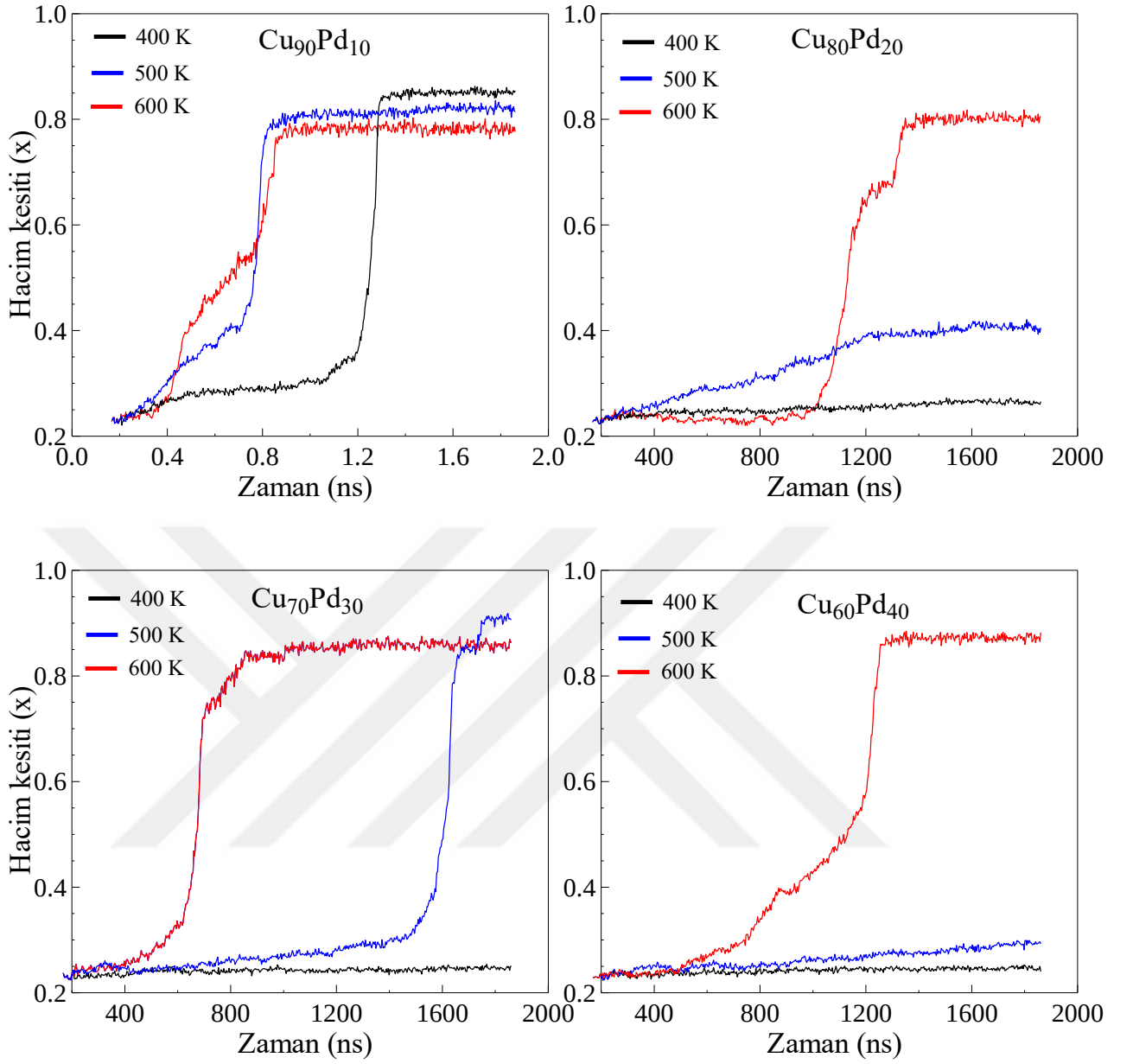
Tavlama sürecinde farklı Cu konsantrasyon değerlerinde Cu-Pt model sistemi için 400 K, 500 K ve 600 K tavlama sıcaklıklarında kristal bağlı çiftlerin toplam sayısının zamanla değişimi Şekil 3.42’de gösterilmiştir. Şekil incelendiğinde, Pd katkılı Cu-Pd model sisteminden farklı olarak Cu₆₀Pt₄₀ için 400 K tavlama sıcaklığının dışında tüm yoğunlaşma değerlerinde kristalleşmenin gerçekleştiği söylenebilir. Yüksek tavlama sıcaklıklarında ise tam kristalleşme görülmektedir. Bu sonuçlar RDF eğrilerinden elde edilen sonuçlar ile karşılaştırıldığında uyumludur. 400 K tavlama sıcaklığında Cu₆₀Pt₄₀ model sistemi için en son zamanda kristal bağlı çiftlerin sayısı yaklaşık %30 civarındadır. RDF eğrisi incelendiğinde, amorf fazda olduğu kristalleşmenin gerçekleşmediği belirlenmiştir. Cu₈₀Pt₂₀ model sistemi için 500 K tavlama sıcaklığında kristal bağlı çiftlerin sayısı yaklaşık %45 civarındadır. Aynı sıcaklıkta RDF eğrisi incelendiğinde kristal piklerin daha belirgin olmaya başladığı açıkça görülmektedir. Bu durum RDF eğrilerinin pik şiddetleri ile kristal türü bağlı çiftlerin sayısı arasındaki ilişkiyi ortaya koymaktadır. Avrami katsayılarını hesaplamak için kristal bağlı çiftlerin yüzdesel oranları 0-1 arasındaki değerlere dönüştürülmüş ve bunlar hacim kesiti olarak yorumlanmıştır. Model sisteme ait hacim kesitlerinin zamana karşı grafikleri, Şekil 3.43 ve Şekil 3.44’de verilmiştir.



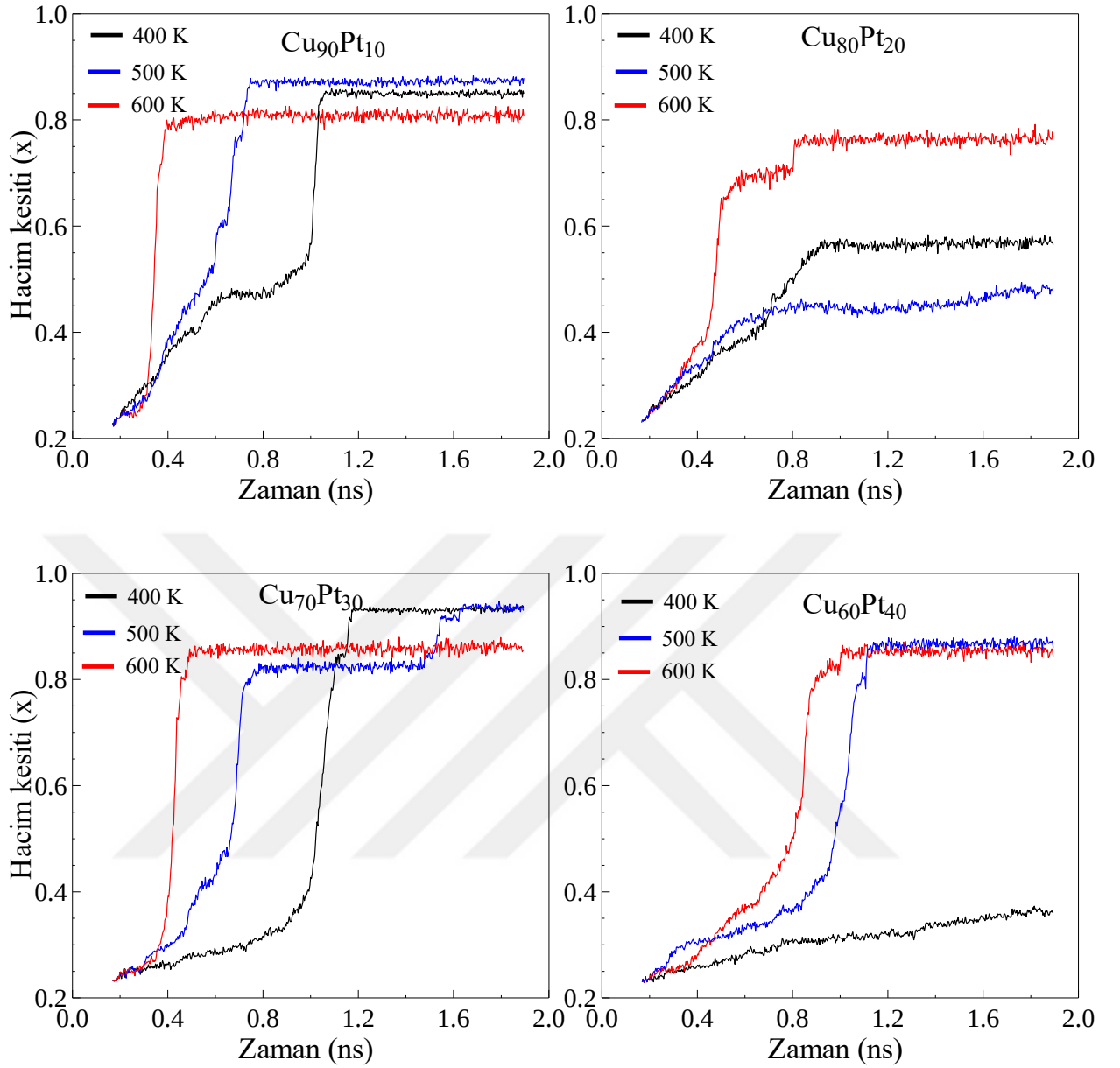
Şekil 3.41. Farklı Cu konsantrasyon değerlerinde Cu-Pd model sistemi için 400 K, 500 K ve 600 K tavlama sıcaklıklarında kristal bağılı çiftlerin toplam sayısının zamanla değişimi



Şekil 3.42. Farklı Cu konsantrasyon değerlerinde Cu-Pt model sistemi için 400 K, 500 K ve 600 K tavlama sıcaklıklarında kristal bağılı çiftlerin toplam sayısının zamanla değişimi



Şekil 3.43. Bakırın farklı konsantrasyonlarında Cu-Pd model sistemleri için hacim kesitinin (x) zamanla değişimi

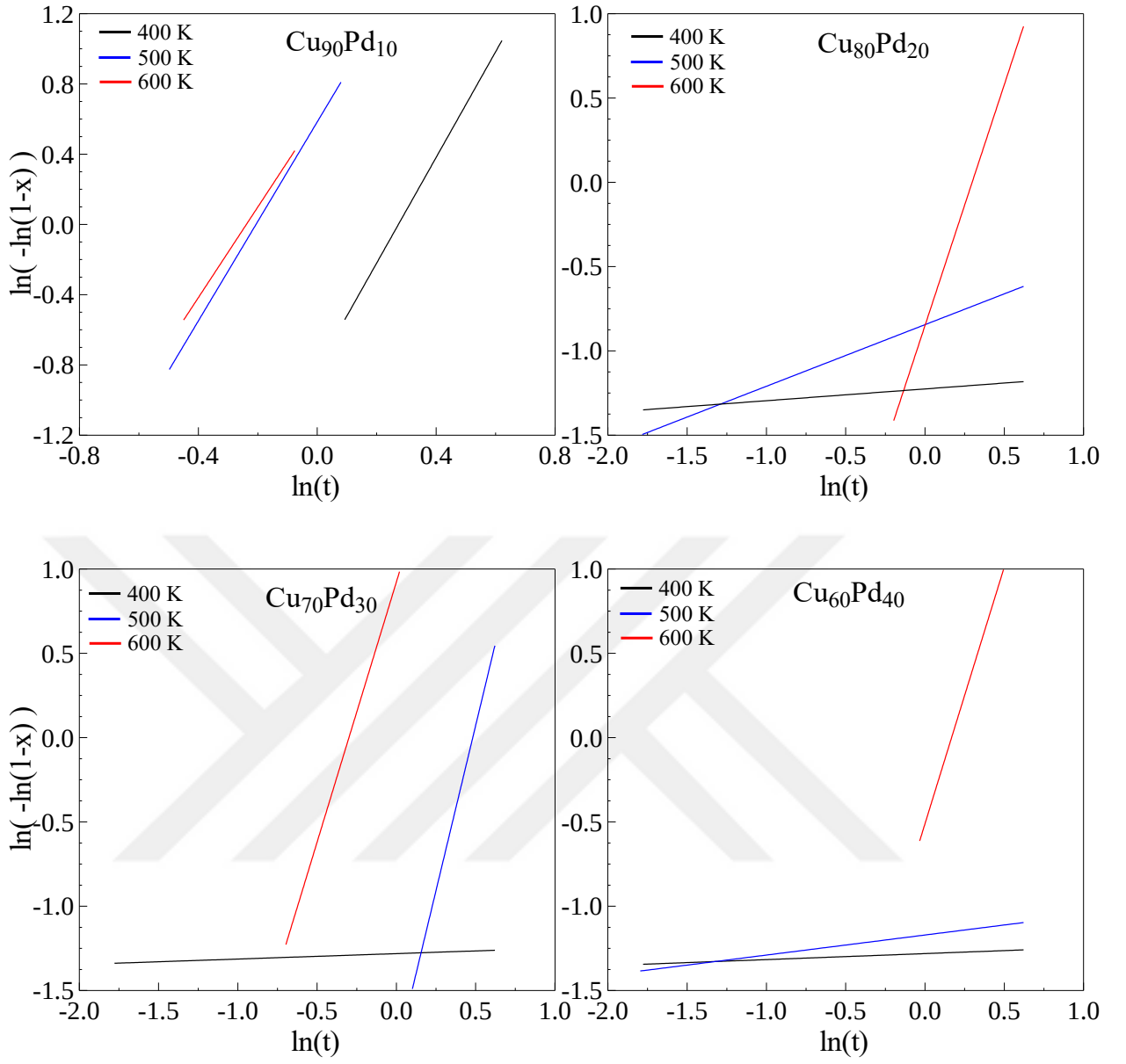


Şekil 3.44. Bakırın farklı konsantrasyonlarında Cu-Pt model sistemleri için hacim kesitinin (x) zamanla değişimi

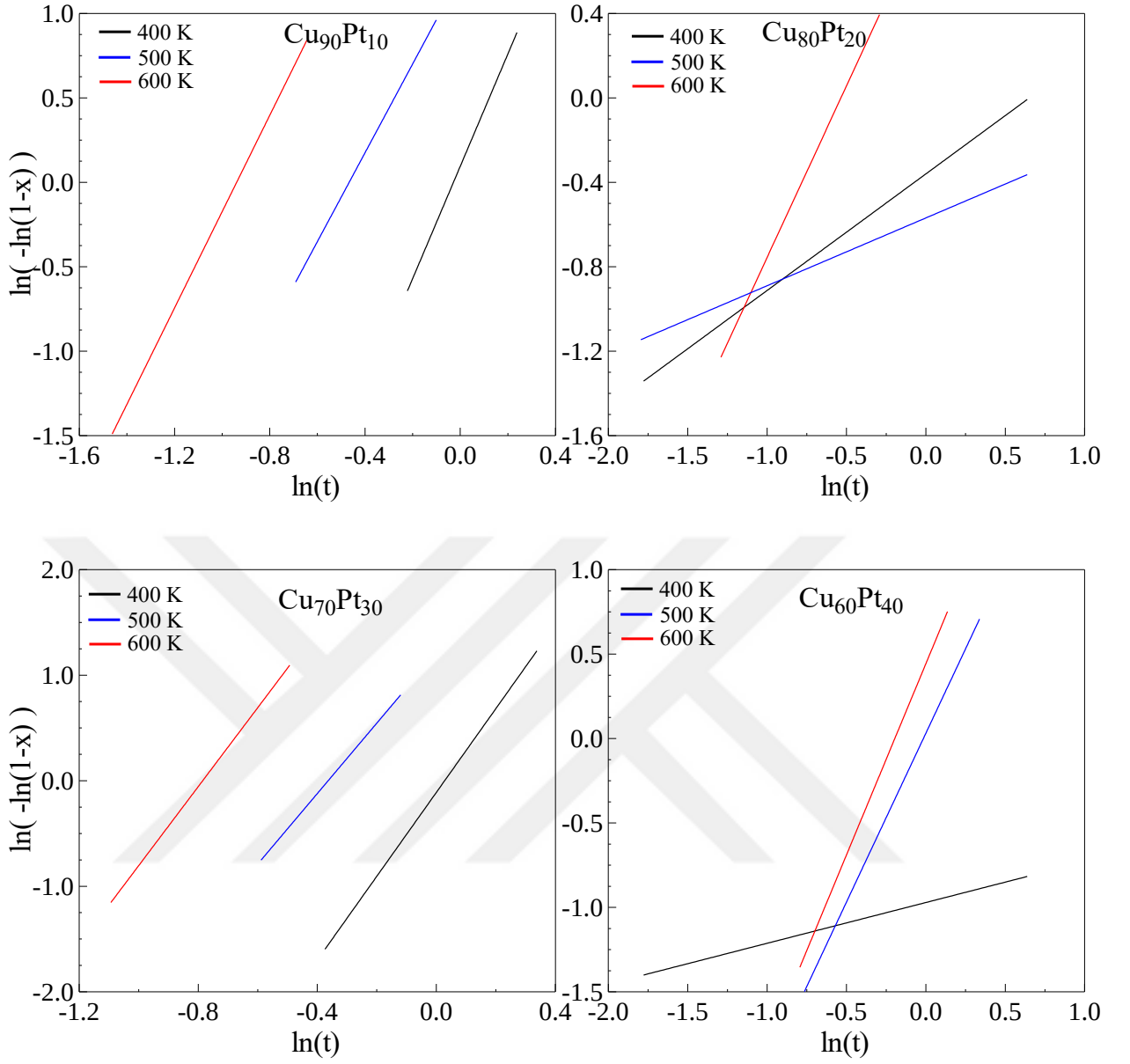
Avrami katsayılarını hesaplamak için hacim kesitindeki değişim göz önüne alınarak, $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre grafiğinin eğimi alınmıştır. Deneysel olarak elde edilen sonuçlara göre, Avrami katsayısı (n) nin alacağı değerler 1 ile 4 arasında olmaktadır. Şekil 3.45, Cu-Pd model sistemleri bakırın farklı konsantrasyonları için farklı tavlama sıcaklıklarında $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre değişimini göstermektedir. $\text{Cu}_{90}\text{Pd}_{10}$ model sistemleri için Hacim kesitinin (x) zamanla değişiminden elde edilen eğim (Avrami katsayısı) değerlerini ele aldığımızda 400 K, 500 K ve 600 K tavlama sıcaklıklarına ait Avrami katsayı değerleri tümü için $n=3$ olarak elde

edilmiştir. Buna göre, $\text{Cu}_{90}\text{Pd}_{10}$ model sistemleri için 400 K, 500 K ve 600 K sıcaklıklarında hacimsel çekirdeklenme ve iki boyutta büyüme gerçekleştiği belirlenmiştir. $\text{Cu}_{80}\text{Pd}_{20}$ model sistemleri için 400 K ve 500 K tavlama sıcaklığına ait Avrami katsayıları değerleri incelendiğinde, değer $n=1$ olarak hesaplanmıştır. Bu sonuç, bu sıcaklıklarda hacimsel çekirdeklenmenin gerçekleşmediğini ve tek boyutta yüzeysel büyümenin olduğunu göstermektedir. Ancak 600 K tavlama sıcaklığında Avrami katsayısı $n=3$ değerini almıştır ve bu sıcaklıkta iki boyutta hacimsel kristalleşmenin olduğu yorumu yapılabilir. $\text{Cu}_{70}\text{Pd}_{30}$ model sisteminde ise Avrami katsayıları incelendiğinde sadece 400 K tavlama sıcaklığı değerinde kristal büyüme tek boyutta kalırken, 500 K ve 600 K tavlama sıcaklığı değerlerinde iyi bir kristalleşmenin gerçekleştiği söylenebilir. Özellikle 500 K sıcaklığında hacimsel çekirdeklenme ve üç boyutta büyüme şeklinde meydana gelmiştir. $\text{Cu}_{60}\text{Pd}_{40}$ alaşım sisteminde Avrami katsayısı değeri 400 K ve 500 K sıcaklığında yüzeysel ve tek boyutta büyüme olarak gerçekleşmiştir. Ancak 600 K tavlama sıcaklığı değerinde $n=3$ değerini alarak iki boyutta hacimsel büyüme gözlenmiştir.

Şekil 3.45, Cu-Pt model sisteminde bakırın farklı konsantrasyonları için farklı tavlama sıcaklıklarında $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre değişimini göstermektedir. $\text{Cu}_{90}\text{Pt}_{10}$ model sistemleri için 500 K ve 600 K tavlama sıcaklıklarında $n=3$ değeri iken, 400 K tavlama sıcaklığı için $n=4$ değeri elde edilmiştir. Yani hacimsel çekirdeklenmenin yanı sıra iki ve üç boyutta büyüme gerçekleşmiştir. $\text{Cu}_{80}\text{Pt}_{20}$ model sistemleri için genel olarak kristalleşme değerleri çok düşük değerler almıştır. Sadece 600 K sıcaklığında $n=2$ hacimsel çekirdeklenme ve tek boyutta büyüme gerçekleşmiştir. $\text{Cu}_{70}\text{Pt}_{30}$ model sistemi ele alındığında 400 K ve 600 K tavlama sıcaklığında $n=4$ değeriyle hacimsel çekirdeklenme ve üç boyutta büyüme gözlenirken, 500 K tavlama sıcaklığında $n=3$ iki hacimsel çekirdeklenme ve iki boyutta büyüme oluşmuştur. $\text{Cu}_{60}\text{Pt}_{40}$ model sisteminde ise kristalleşme 500 K ve 600 K tavlama sıcaklığında $n=2$ değeriyle hacimsel çekirdeklenme ve tek boyutta gözlenirken 400 K tavlama sıcaklığında ise $n=1$ ile yüzeysel tek boyutta büyüme gerçekleştiği şeklinde yorumlanabilir. Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemleri için farklı Cu konsantrasyonlarında ve farklı tavlama sıcaklıklarında elde edilen Avrami değerleri, Çizelge 3.2 ve Çizelge 3.3'de verilmiştir. Çizelgede elde edilen değerler incelendiğinde, $\text{Cu}_{70}\text{Pd}_{40}$ ve $\text{Cu}_{70}\text{Pt}_{40}$ model sistemleri dışındaki diğer model sistemlerde tavlama sıcaklığı arttıkça Avrami katsayılarının arttığı sonucuna varılmıştır.



Şekil 3.45. Cu-Pd model sistemleri bakırın farklı konsantrasyonları için farklı tavlama sıcaklıklarında $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre değişimi



Şekil 3.46. Cu-Pt model sisteminde bakırın farklı konsantrasyonları için farklı tavlama sıcaklıklarında $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre değişimi

Çizelge 3.2. Bakırın farklı konsantrasyonlarında Cu-Pd model sisteminde için hacim kesitinin (x) zamanla değişiminden elde edilen eğim (Avrami katsayısı) değerleri

	400 K	500 K	600 K
Cu ₉₀ Pd ₁₀	3.006200049 ≈ 3	2.832799668 ≈ 3	2.579356834 ≈ 3
Cu ₈₀ Pd ₂₀	0.0697950442 ≈ 1	0.3652841297 ≈ 1	2.856953123 ≈ 3
Cu ₇₀ Pd ₃₀	0.0321794264 ≈ 1	3.914169219 ≈ 4	3.085587895 ≈ 3
Cu ₆₀ Pd ₄₀	0.0355901070 ≈ 1	0.1188946896 ≈ 1	3.043441824 ≈ 3

Çizelge 3.3. Bakırın farklı konsantrasyonlarında Cu-Pt model sisteminde için hacim kesitinin (x) zamanla değişiminden elde edilen eğim (Avrami katsayısı) değerleri

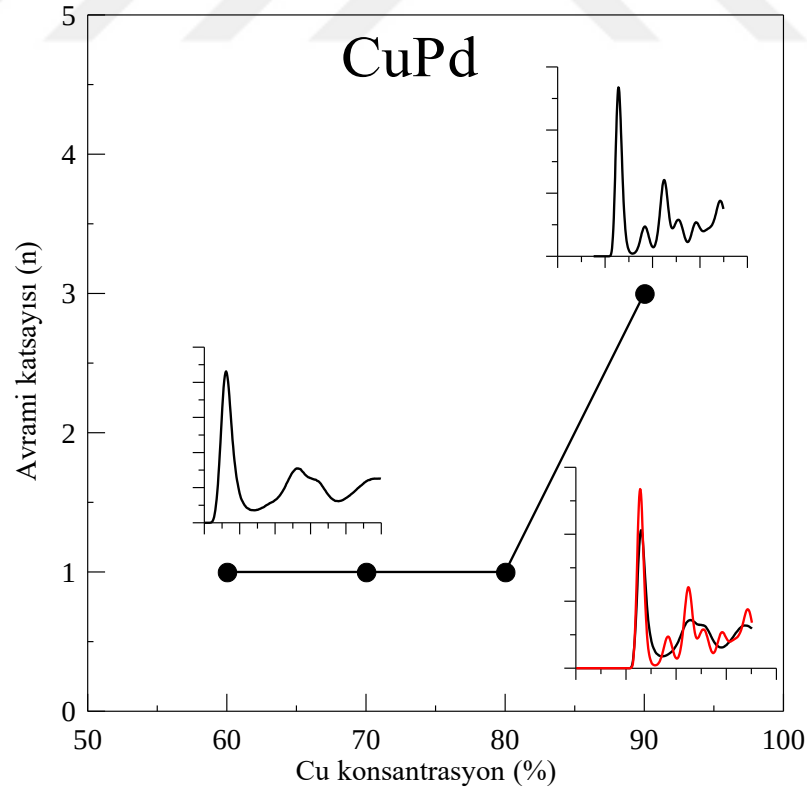
	400 K	500 K	600 K
Cu ₉₀ Pt ₁₀	3.3286491894 ≈ 3	2.628795571 ≈ 3	2.852292046 ≈ 3
Cu ₈₀ Pt ₂₀	0.5521099418 ≈ 1	0.321120452 ≈ 1	1.62550526 ≈ 2
Cu ₇₀ Pt ₃₀	3.971096007 ≈ 4	3.337021141 ≈ 3	3.74173703 ≈ 4
Cu ₆₀ Pt ₄₀	0.2414150652 ≈ 1	1.998730255 ≈ 2	2.264372675 ≈ 2

Bakırın farklı konsantrasyonlarında Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemleri için Hacim kesitinin (X) zamanla değişiminden elde edilen eğim (Avrami katsayısı) değerleri, Çizelge 3.2 ve Çizelge 3.3’de verilmiştir. Avrami katsayılarını hesaplamak için hacim kesitindeki değişim göz önüne alınarak, $\ln[-\ln(1-x)]$ ’nin $\ln(t)$ ’ye göre grafiğinin eğimi alınarak hesaplanan bu değerler üst veya alt tam sayıya yuvarlanmıştır.

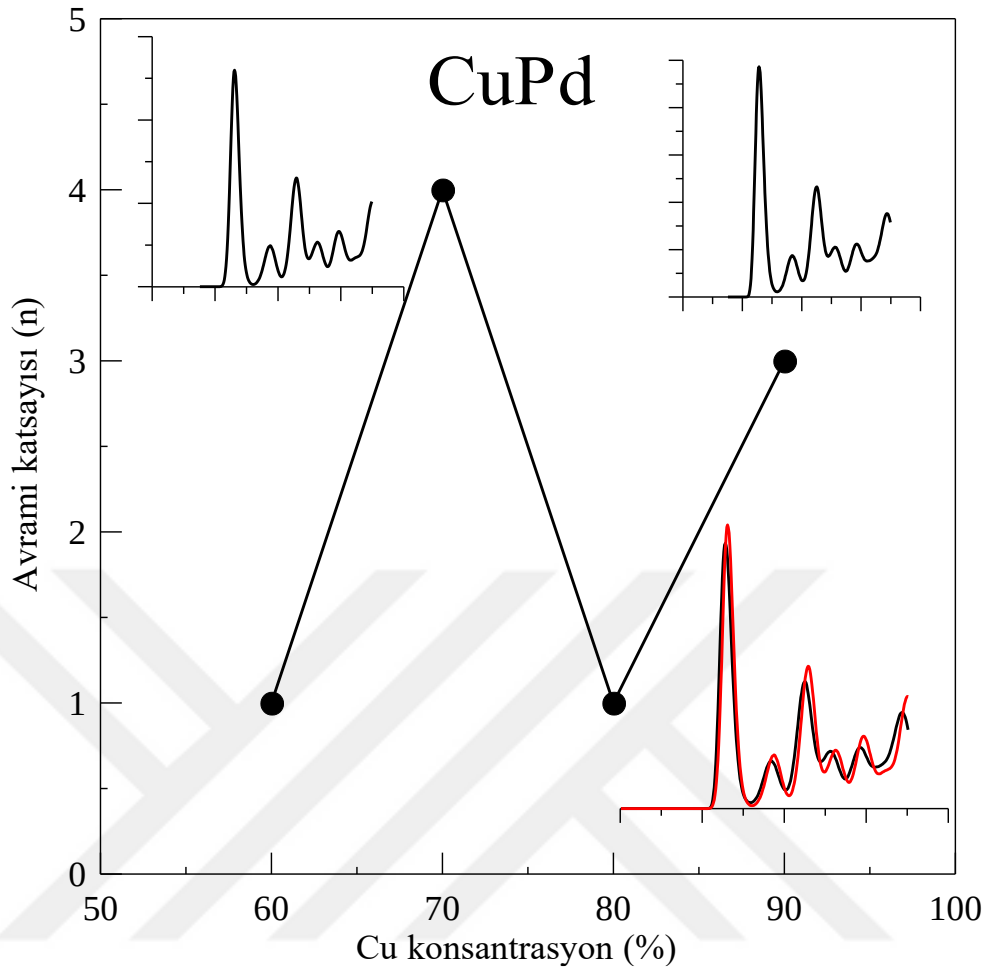
Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemleri için elde edilen Avrami katsayısı değerleri ile RDF grafikleri birlikte incelendiğinde kristalleşme mekanizması hakkında çok daha açık fikirler elde edilebilir ve iki analiz sonuçlarının uyumlu olduğu gözlenebilir. Bazı tavlama sıcaklıklarında Avrami katsayıları ve RDF pik eğrilerinin arasındaki ilişkiyi belirlemek amacıyla her iki hesaplamalara ait sonuçlar, Şekil 3.47 ve Şekil 3.48’de verilmiştir.

Şekil 3.47’de Cu-Pd model sistemlerinde 400 K tavlama sıcaklığında Avrami katsayısı (n)’nin bakırın farklı konsantrasyon değerleri ile değişimi gösterilmiştir. Burada Cu₆₀Pd₄₀ model sistemine ait RDF eğrisinin pikleri ile Cu₉₀Pd₁₀ model sistemine ait RDF eğrisinin pikleri karşılaştırıldığında, Cu₆₀Pd₄₀ model sistemlerine ait RDF pik şiddetlerinin Cu₉₀Pd₁₀ model sistemine ait RDF pik şiddetlerine göre oldukça keskin ya da zayıf olduğu görülmektedir. Bu

durum, $\text{Cu}_{60}\text{Pd}_{40}$ model sisteminde 400 K sıcaklıkta tam kristalleşme dönüşümünün tamamlanmadığı sonucunu vermektedir. Aynı sıcaklıkta $\text{Cu}_{60}\text{Pd}_{40}$ model sistemi için kristal bağlı çiftlerin sayısına bakıldığında yüzdesel olarak düşük olarak elde edilmesi kristalleşme sürecinin gerçekleşmediği sonucunu doğrulamaktadır. Bakırın konsantrasyonu arttıkça RDF pik şiddetlerinin arttığı görülmektedir. Avrami katsayısının bu oranda $n=3$ olarak hesaplanması ve hacimsel ile iki boyutta büyümenin gerçekleştiği göz önüne alındığında, RDF pik şiddetleri ve Avrami katsayıları arasında ilişki görülmektedir. Özetle, kristalleşme süreci $\text{Cu}_{90}\text{Pd}_{10}$ model sisteminde hacimsel ve iki boyutta olduğunu gözlenirken $\text{Cu}_{60}\text{Pd}_{40}$ model sistemi $n=1$ Avrami katsayısı değeri ile yüzeysel ve tek boyutta kristalleşme olarak ifade edilir. Cu-Pd için 500 K tavlama sıcaklığında Avrami katsayısı (n)'nin bakırın farklı konsantrasyonları için değişimi Şekil 3.48'de verilmiştir. Burada $\text{Cu}_{70}\text{Pd}_{30}$ model sistemi için Avrami katsayısı $n=4$ iken $\text{Cu}_{90}\text{Pd}_{10}$ model sistemi için ise $n=3$ olarak gözlenmiştir. Model sistemlere ait RDF grafik pik şiddetleri ele alındığında ise $n=3$ katsayısına karşılık gelen RDF pik şiddetinin $n=4$ katsayısına karşılık gelen RDF pik şiddetine göre biraz daha az şiddette ya da keskinlikte oldukları görülmektedir. Üst üste çizilen grafikte bu durum açıkça gözlenmekte ve hacimsel kristalleşmenin varlığından söz edilebilir.



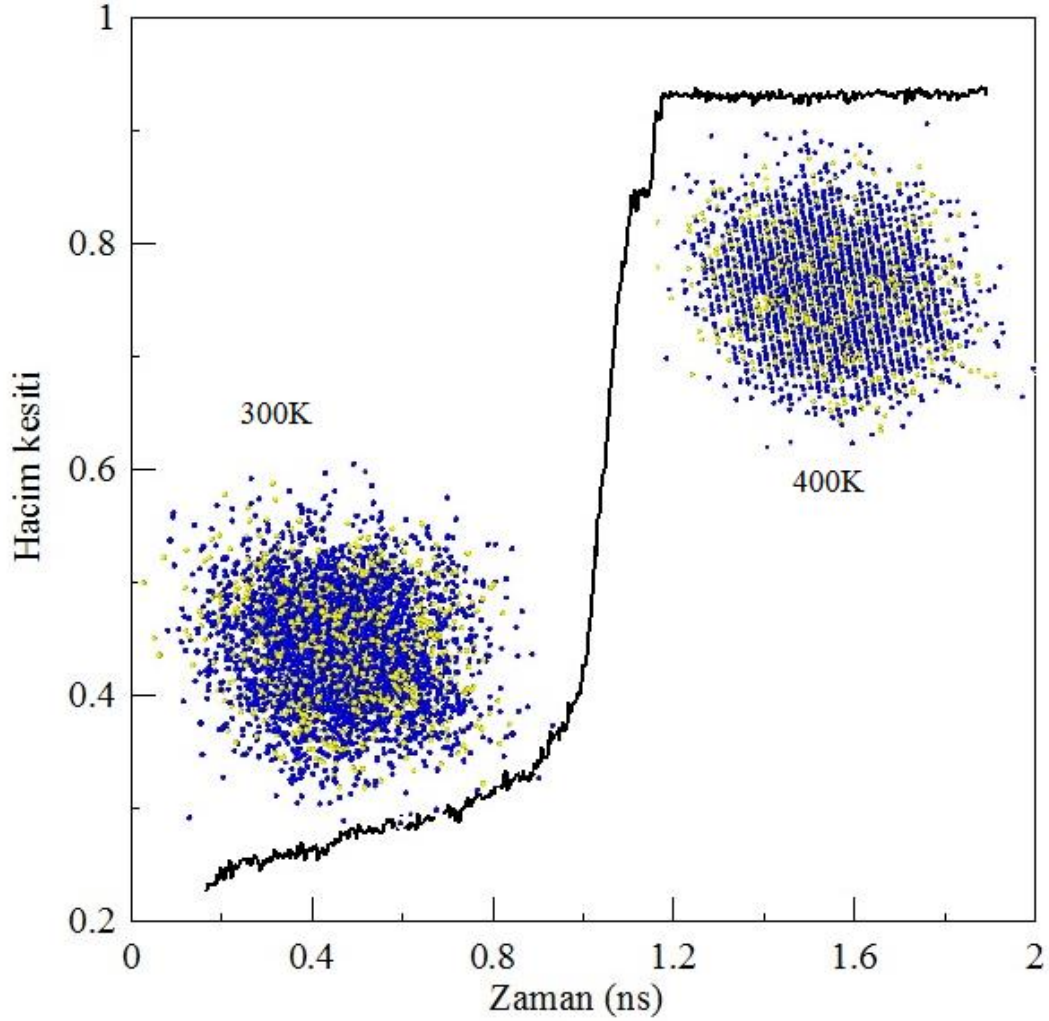
Şekil 3.47. Cu-Pd model sisteminde 400 K sıcaklığında Avrami katsayısı (n)'nin bakırın farklı konsantrasyonları için değişimi



Şekil 3.48. Cu-Pd model sisteminde 500 K tavlama sıcaklığında Avrami katsayısı (n)'nin bakırın farklı konsantrasyonları için değişimi

Şekil 3.49, $\text{Cu}_{70}\text{Pt}_{30}$ model sistemleri 400 K tavlama sıcaklığında $n=4$ Avrami katsayısına karşılık gelen üç boyutlu gösterimini vermektedir. Hacim kesitinin zamana karşı değişimi incelendiğinde 0,9 ns zamanına kadar hacim kesitinde hızlı bir artış gözlenmemiştir. Tavlama başlangıç zamanında oluşturulan üç boyutlu atomik dağılım şekli düzensiz olup kristal düzlemleri tam olarak gözlenmemiştir. Bu zamandan sonra hacim kesiti zamanla hızlı bir şekilde artış göstermektedir. Hacim kesiti yaklaşık 0,95 seviyesinde sabit kalmıştır. Bu artış ve hacim kesitinin 1 değerine yaklaşması daha öncede tartışıldığı üzere iyi bir kristalleşme gerçekleştiğinin göstergesidir. Bu durum sistem içerisinde kristal bağlı çiftlerinin fazla olması ile uyumlu bir sonuçtur. Bununla birlikte, bu tavlama sıcaklığında Avrami katsayısının değerinin 4 olması hacimsel bir kristalleşme göstergesinin kanıtı niteliğindedir. Kristalleşme sürecinin sonunda elde

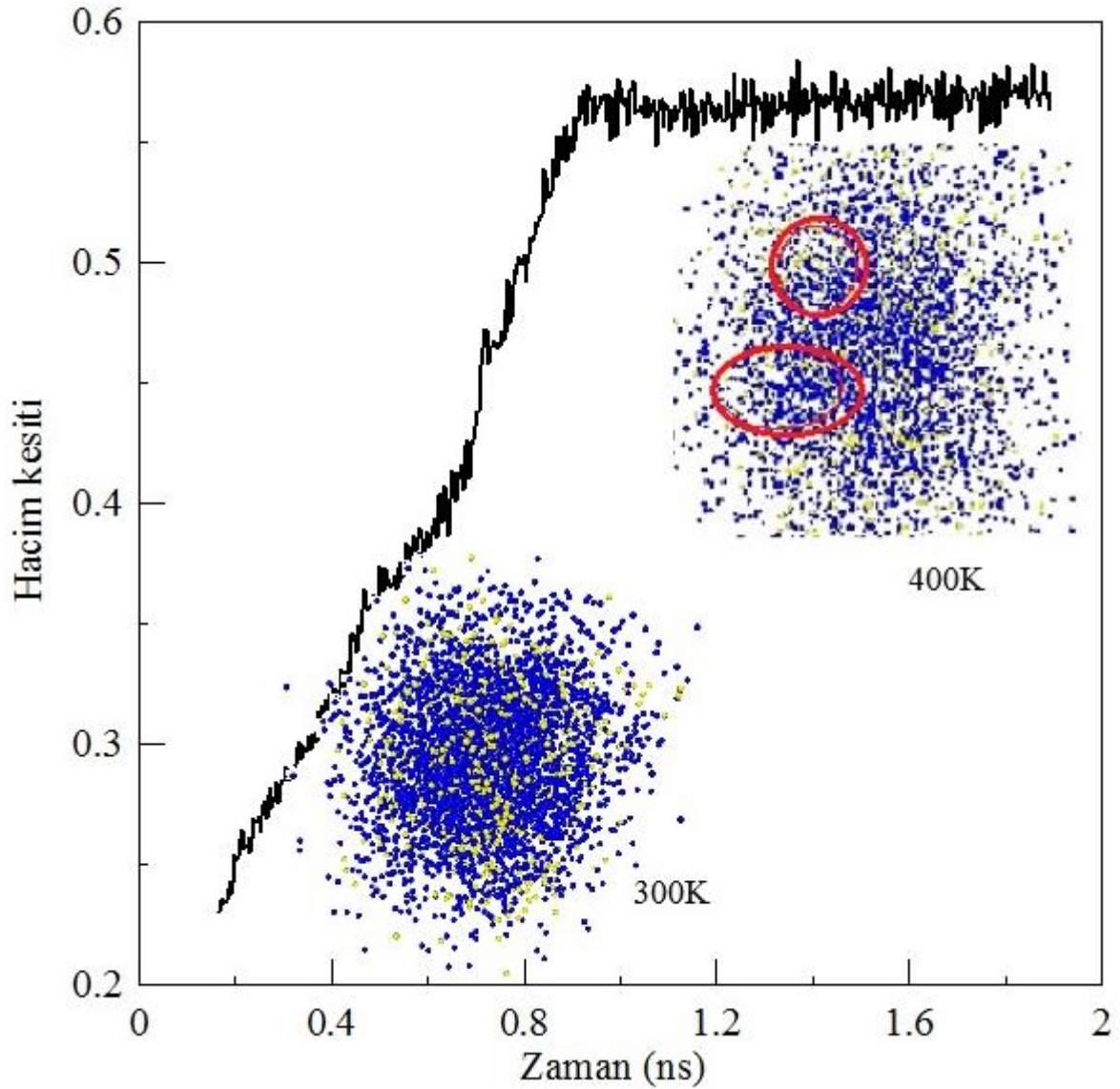
edilen üç boyutlu atomik dağılım görüntüsünden de kristal düzlemleri oldukça belirgin bir biçimde görülmektedir.



Şekil 3.49. $\text{Cu}_{70}\text{Pt}_{30}$ model sisteminin tavlama sürecinde 300 K (0 ns) ve 400 K tavlama sıcaklığında $n=4$ Avrami katsayısına karşılık gelen atomik konfigürasyonlarının gösterimi

Şekil 3.50, $\text{Cu}_{80}\text{Pt}_{20}$ model sistemlerinin 400 K tavlama sıcaklığında $n=1$ Avrami katsayısına karşılık gelen üç boyutlu atomik gösterimini vermektedir. Hacim kesitinin zamana karşı değişimi incelendiğinde hacim kesitinde sürekli bir artış gözlenmiştir. Daha sonra hacim kesiti 0,55 seviyesinde sabit kalmıştır. Hacim kesitinde artışa rağmen kesit değerinin 1'e uzak olması ideal kristal yapısının oluşmadığının göstergesi sayılabilir. Bu durum, bu tavlama sıcaklığında elde edilen kristal bağlı çiftlerin sayısı ile karşılaştırıldığında uyum içerisindedir. Atomik gösterimler incelendiğinde, tavlama başlangıç zamanında oluşturulan üç boyutlu atomik dağılım şekli düzensiz olup kristal düzlemleri tam olarak gözlenmemiştir. Benzer şekilde tavlama süreci sonunda elde edilen atomik gösterimde de sadece yüzeysel çekirdeklenme ve tek boyutta büyümenin olduğu tespit edilmiştir (kırmızı daire içinde gösterilmiştir). Bu tavlama

sıcaklığında hesaplanan $n=1$ Avrami katsayısı ile karşılaştırıldığında uyumlu bir sonuç olduğu söylenebilir.



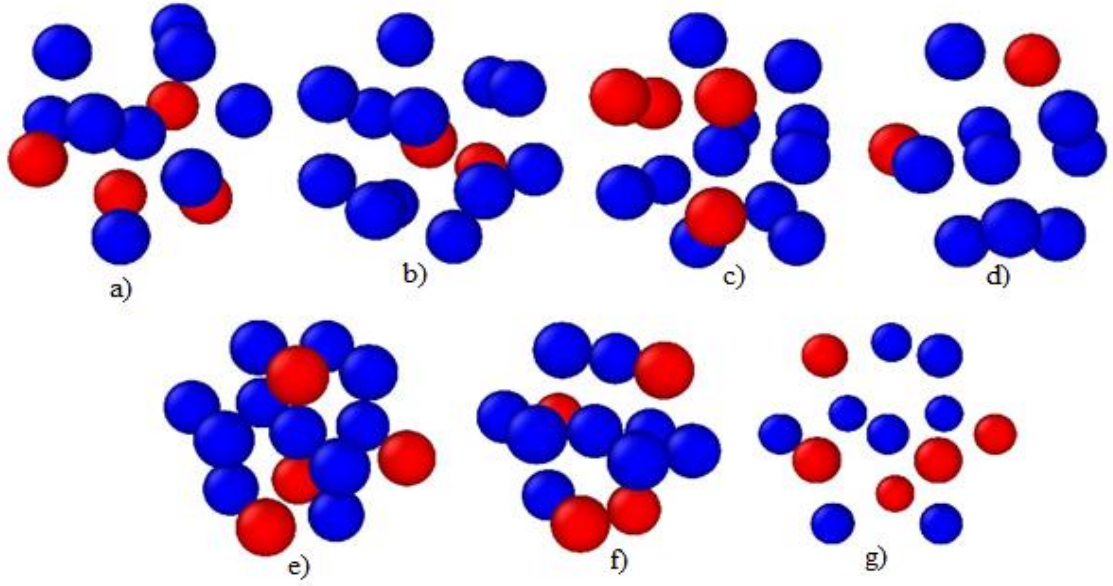
Şekil 3.50. $\text{Cu}_{80}\text{Pt}_{20}$ model sisteminin tavlama sürecinde 300 K (0 ns) ve 400 K tavlama sıcaklığında $n=1$ Avrami katsayısına karşılık gelen atomik konfigürasyonlarının gösterimi

3.2.3.2. Polyhedron Türü Topakların Belirlenmesi

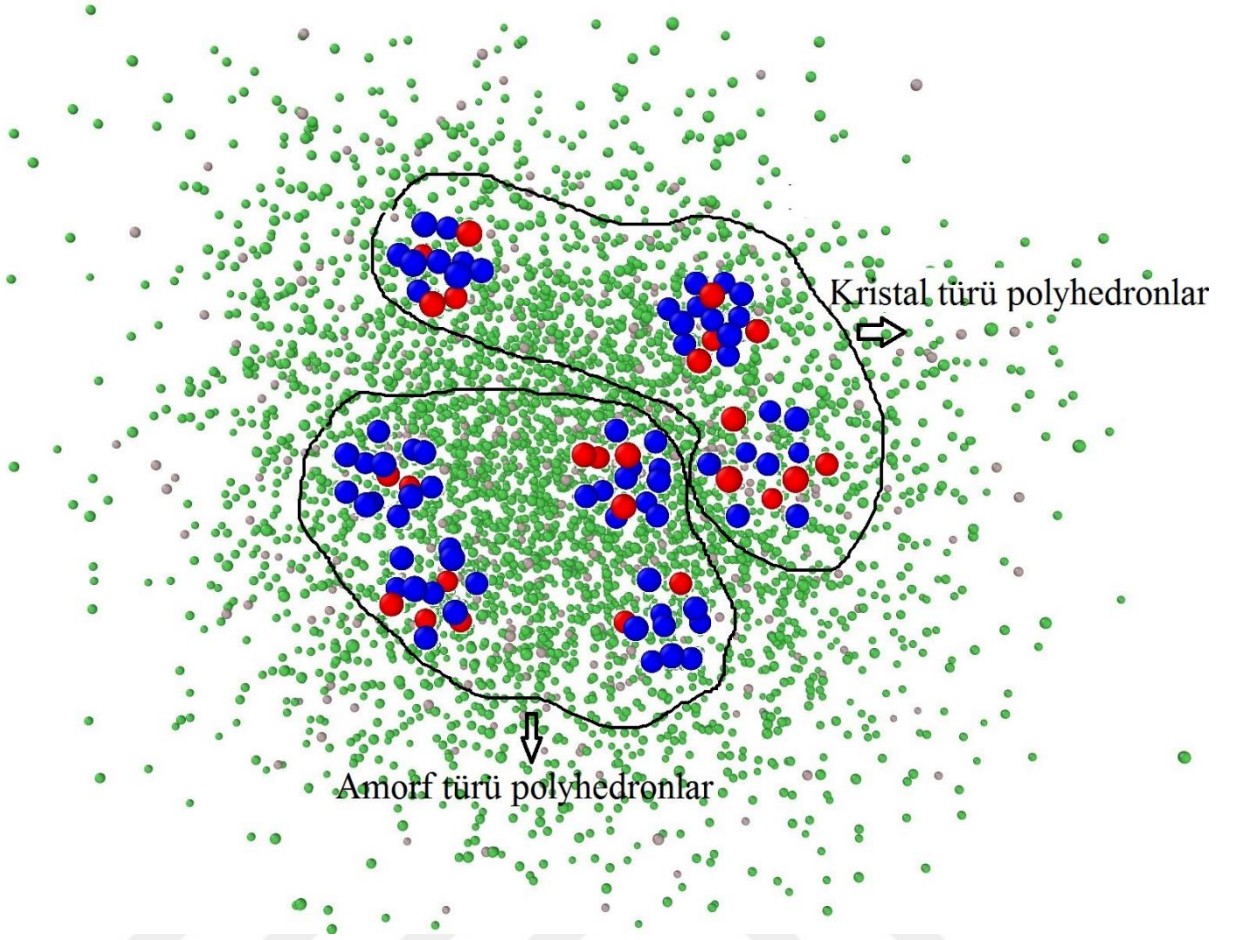
Polyhedron türü topakların amorf fazdan kristal faza dönüşüm sürecinde kristalleşme mekanizmasına etkisini görmek için 300 K sıcaklıkta elde edilen amorf fazdan (amorf faz başlangıç zamanı olarak alındı) sonraki ilk tavlama zamanı ve sıcaklıklarında (400 K, 500 K, 600 K) bu tür topaklanmaların yapısal olarak analizinin tayin edilmesi gereklidir. Bu amaçla bu

tavlama sıcaklıklarında meydana gelen polyhedron türü topaklanmalar CTIM yöntemi ile belirlenmiştir.

Şekil 3.51, $\text{Cu}_{90}\text{Pd}_{10}$ model sistemi için 600 K tavlama sıcaklığında elde edilen farklı türdeki polyhedronların atomik şekillerini, Şekil 3.52 ise bu tür polyhedronların MD hücresi içerisinde dağılımını göstermektedir. Hücre içerisinde sadece birer tane polyhedronların dağılımı örnek olarak gösterilmiştir.

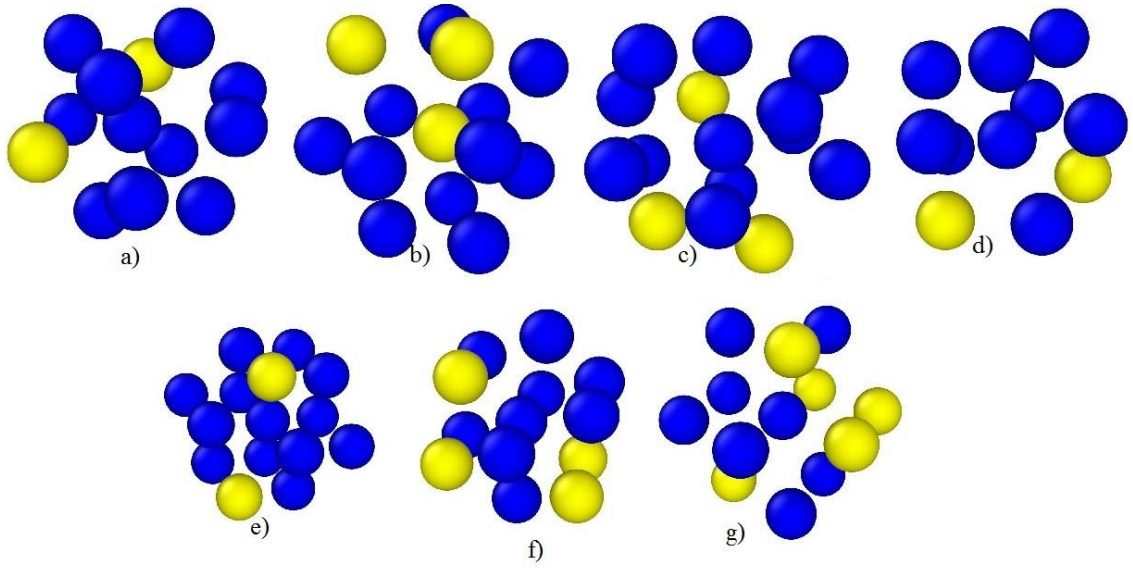


Şekil 3.51. 600 K sıcaklıkta $\text{Cu}_{90}\text{Pd}_{10}$ model sistemine ait tespit edilen polyhedron türleri; a) ideal icos b) defekte olmuş icos c) FK d) Bernal e) BCC f) FCC ve g) HCP (Cu atomu mavi, Pd atomu kırmızı renkte gösterilmiştir)



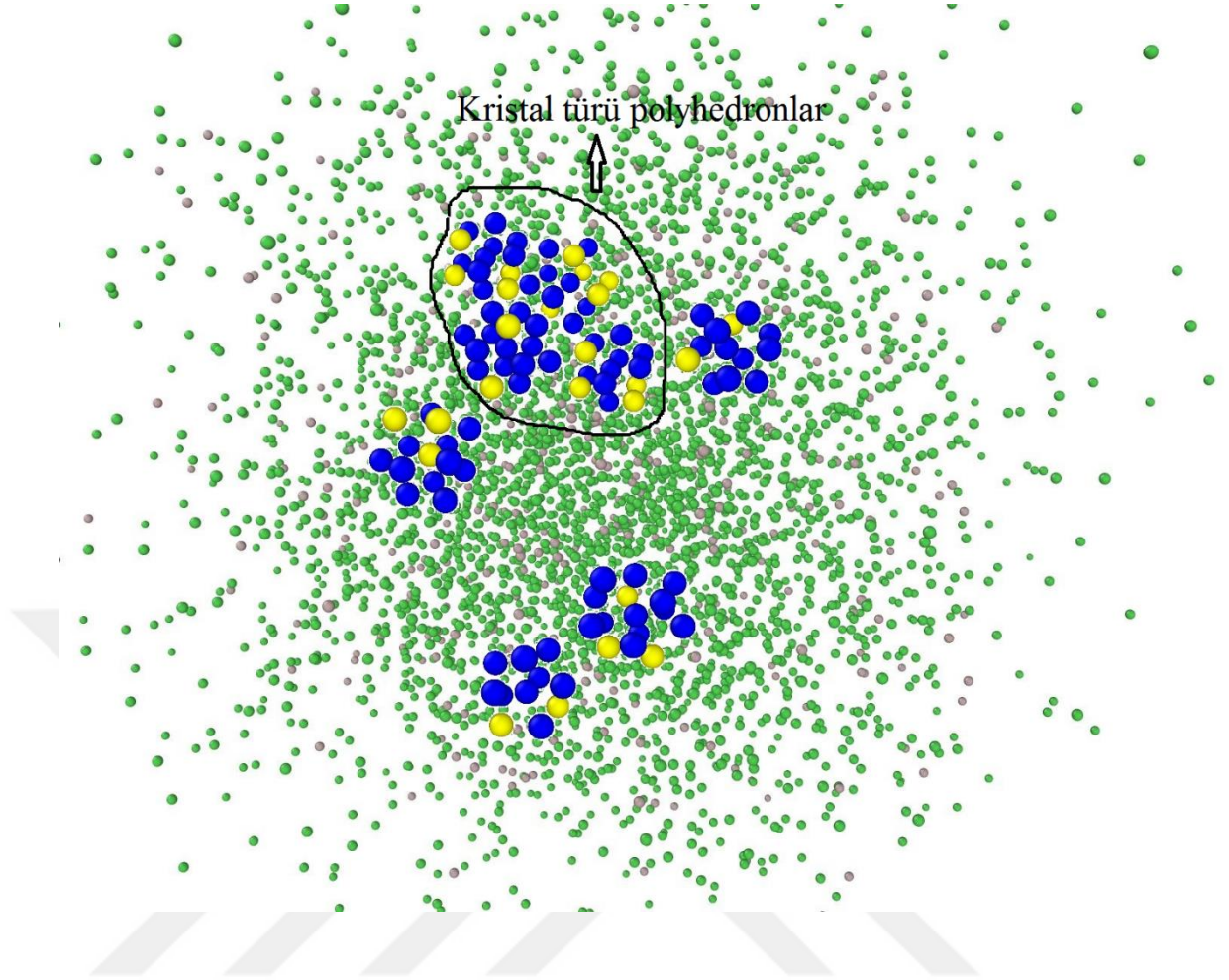
Şekil 3.52. 600 K sıcaklıkta $\text{Cu}_{90}\text{Pd}_{10}$ model sistemine ait tespit edilen bazı polyhedron türlerinin model sistem (MD hücre) içinde gösterimi (Polyhedronların daha iyi gözlenmesi için sistemdeki diğer atomların boyutları küçültülmüştür)

Şekil 3.53, $\text{Cu}_{90}\text{Pt}_{10}$ model sistemi için 600 K tavlama sıcaklığında elde edilen farklı türdeki polyhedronların atomik şekillerini, Şekil 3.54 ise bu tür polyhedronların MD hücresi içinde dağılımını göstermektedir. Hücre içerisinde sadece birer tane polyhedronların dağılımı örnek olarak gösterilmiştir.



Şekil 3.53. 600 K sıcaklıkta $\text{Cu}_{90}\text{Pt}_{10}$ model sistemine ait tespit edilen polyhedron türleri; a) ideal icos b) defekte olmuş icos c) FK d) Bernal e) BCC f) FCC ve g) HCP (Cu atomu mavi, Pt atomu sarı renkte gösterilmiştir)

Her iki model sistem içerisinde oluşan bu polyhedron türü topaklanmalar karşılaştırıldığında, Cu-Pd sisteminde özellikle kristal yapıları temsil eden polyhedron topaklarının birbirlerine mesafeleri daha uzak olup Cu-Pt sisteminde ise mesafelerin daha yakın olduğu görülmektedir. Amorf yapıdan kristalleşme sürecinde atomik grupların bir araya gelerek faz içinde çekirdekleri meydana getirmesi ve bu çekirdeklerin oluşturduğu topaksı grubun kritik bir yarıçapa ulaşması kristalleşme için önemli bir adım olarak bilinmektedir [78, 79]. Kritik yarıçapa ulaşan topakların sayısı artarak kristalin büyümesini sağlar ve kararlı kristal faz meydana gelir. Dolayısıyla, Cu-Pt sistemi için kristal türü polyhedronların bir araya gelip çekirdeklenmeyi oluşturmuştur ve kristal büyümeyi sağlayarak kristalleşme işlemini hızlandırmıştır. Buna göre, Cu-Pt model sisteminin düşük tavlama sıcaklıklarında bile daha hızlı kristalleşme eğilimi göstermesinin nedeni olarak yorumlanabilir. Polyhedronların daha iyi gözlenmesi için sistemdeki diğer atomların boyutları küçültülmüştür.



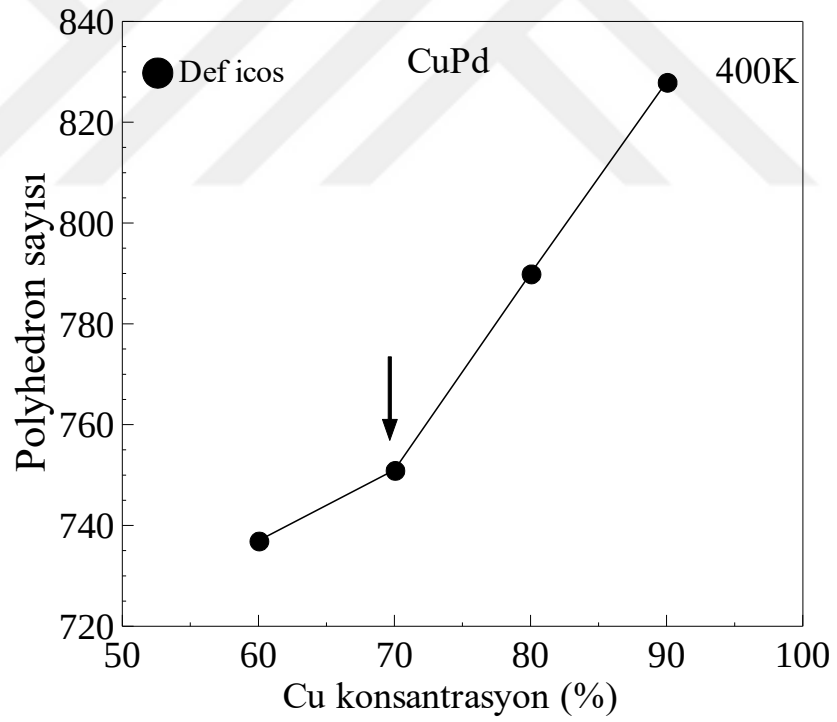
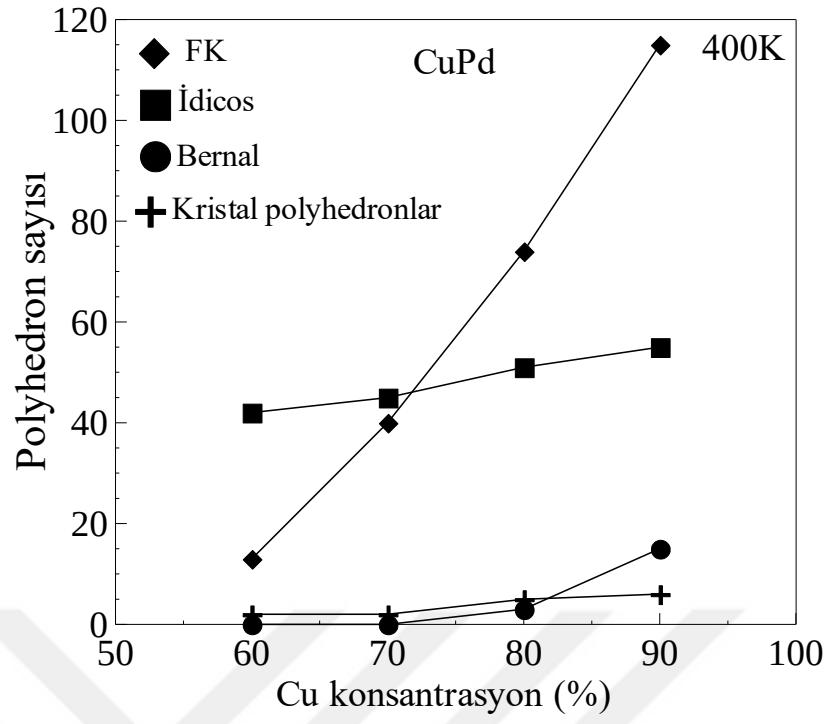
Şekil 3.54. 600 K sıcaklıkta $\text{Cu}_{90}\text{Pt}_{10}$ model sistemine ait tespit edilen polyhedron türlerinin model sistem içinde gösterimi (Polyhedronların daha iyi gözlenmesi için sistemdeki diğer atomların boyutları küçültülmüştür)

Şekil 3.55, 3.56 ve 3.57 Cu-Pd model sistemi için 400 K, 500 K ve 600 K sıcaklıklarda sistem içerisinde meydana gelen kristal ve amorf türü polyhedron sayısının bakırın konsantrasyon oranına göre değişimini göstermektedir. Şekil 3.58, 3.59 ve 3.60 ise Cu-Pt model sistemi için 400 K, 500 K ve 600 K sıcaklıklarda sistem içerisinde meydana gelen kristal ve amorf türü polyhedron sayısının bakırın konsantrasyon oranına göre değişimini göstermektedir. Şekiller incelendiğinde, genel olarak bakırın konsantrasyonu arttıkça tüm polyhedronların sayısının arttığı tespit edilmiştir. Şekil 3.35'deki tavlama sürecinde RDF sonuçları analiz edildiğinde, Cu-Pd sisteminin 400 K sıcaklıkta bakırın %60, %70 ve %80 veya paladyumun %40, %30 ve %20 oranında olduğu yapıların kristalleşme sürecini tamamlamadan amorf fazda kaldığı görülmüştür. Bu durum, diğer sıcaklıklardaki polyhedronların sayısı ile karşılaştırıldığında özellikle defekte olmuş icos türü polyhedronların sayısının düşük kaldığı görülmektedir. Bununla birlikte, kristal türü polyhedronların da sayısının diğer sıcaklıklarla karşılaştırıldığında daha düşük olduğu

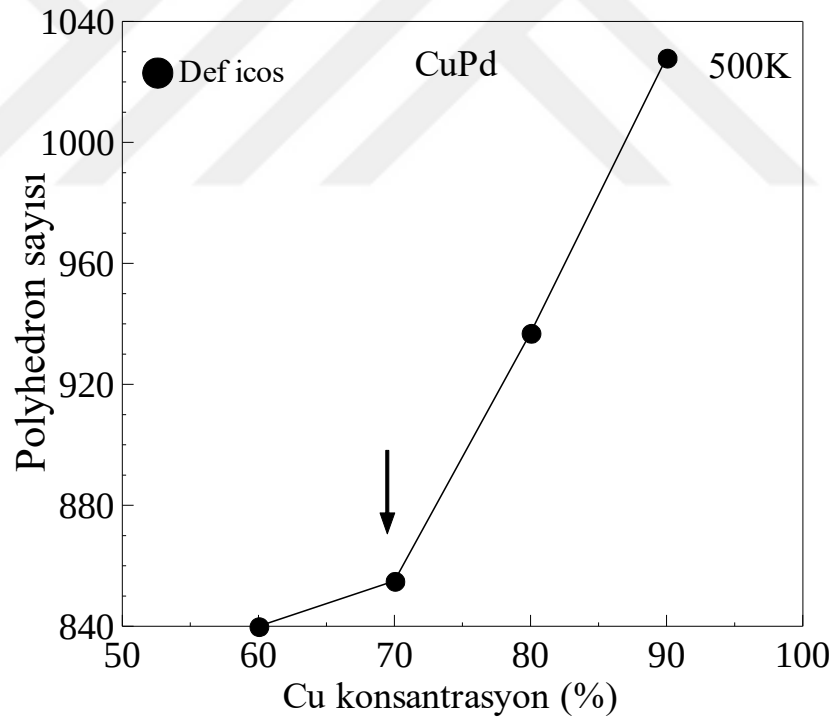
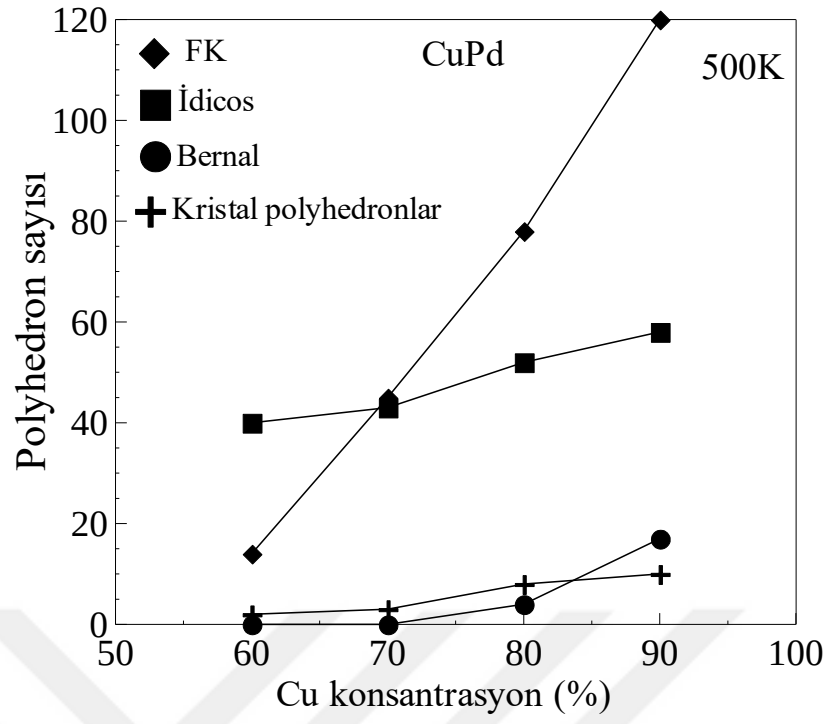
belirlenmiştir. Özellikle, kristal türü polyhedronların sayısının daha düşük olması, Bölüm 3.2’de tartışılan Cu-Pd alaşımının Pd’nin belirli bir konsantrasyon aralığında kısa-mesafe düzeninin meydana getiren yapıların varlığının daha fazla olduğunun sonucunu vermektedir. Sonuç olarak, 400 K sıcaklıkta Cu-Pd nin kristalleşme meydana gelmeden amorf fazda kararlı kalmasını bunun açıklaması olarak gösterilebilir. Cu-Pt model sistemi için Şekil 3.37’deki tavlama sürecinde RDF sonuçları analiz edildiğinde, 600 K sıcaklıkta Cu₇₀Pt₃₀, Cu₈₀Pt₂₀ ve Cu₉₀Pt₁₀ sistemlerinin amorf fazdan itibaren (0,299 ns’de) hızlı bir kristalleşme sergilediği görülmüştür. Bu durum, aynı sıcaklıktaki polyhedronların sayısı ile karşılaştırıldığında, defekte olmuş icos türü polyhedronların sayısında bakırın %60 oranından sonra çok ani artış gösterdiği ve sayısı 400 K sıcaklıkta 873 iken 600 K sıcaklıkta 1273 değerine ulaşmıştır. Bu sonuç, hızlı kristalleşme sürecine defekte olmuş icos türü polyhedronların etkisinin oldukça fazla olduğu göstermektedir.

Cu-Pd model sistemine ait yapılar farklı tavlama sıcaklık süreçlerine ait verilerden elde edilen grafikleri ele alındığında amorf yapıda kendini gösteren önemli polyhedronlardan olan Frank-Kasper (FK) polyhedronunun tüm konsantrasyon değerlerinde arttığı görülmektedir. İdeal icos polyhedron yapısı ise konsantrasyona göre çok az da olsa artış eğilimindedir. Kristal polyhedron ise neredeyse sıfır konumundadır ancak %90 Cu model sisteminde yaklaşık %10 değerine ulaşmaktadır. Yine aynı şekilde Bernal polyhedron türü için de bakır konsantrasyonları arttıkça artmaktadır. Burada dikkat çeken en önemli kısım ise defekte olmuş icos türüdür, bakır konsantrasyonları artmasıyla ani ve belirgin şekilde artmaktadır.

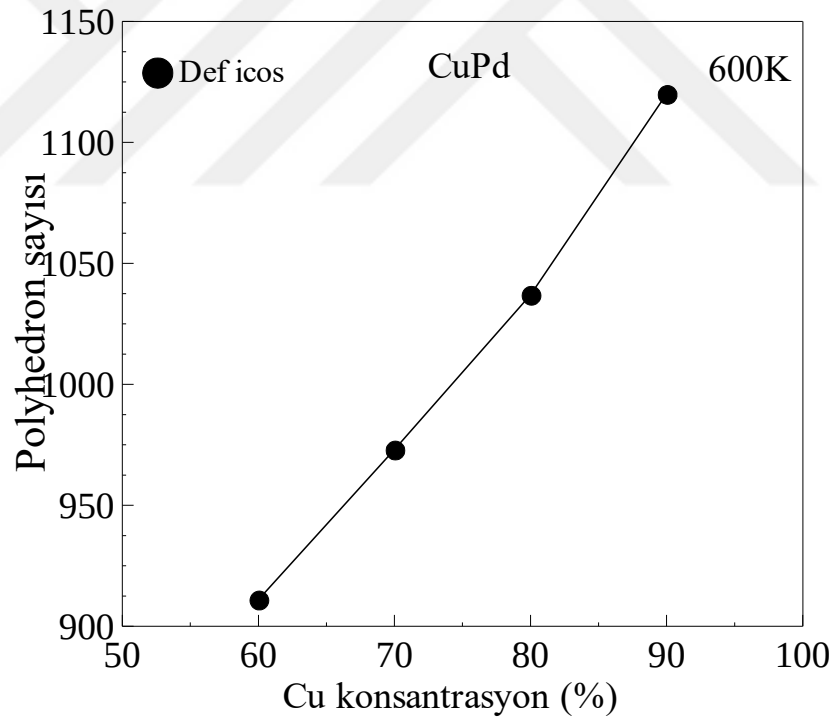
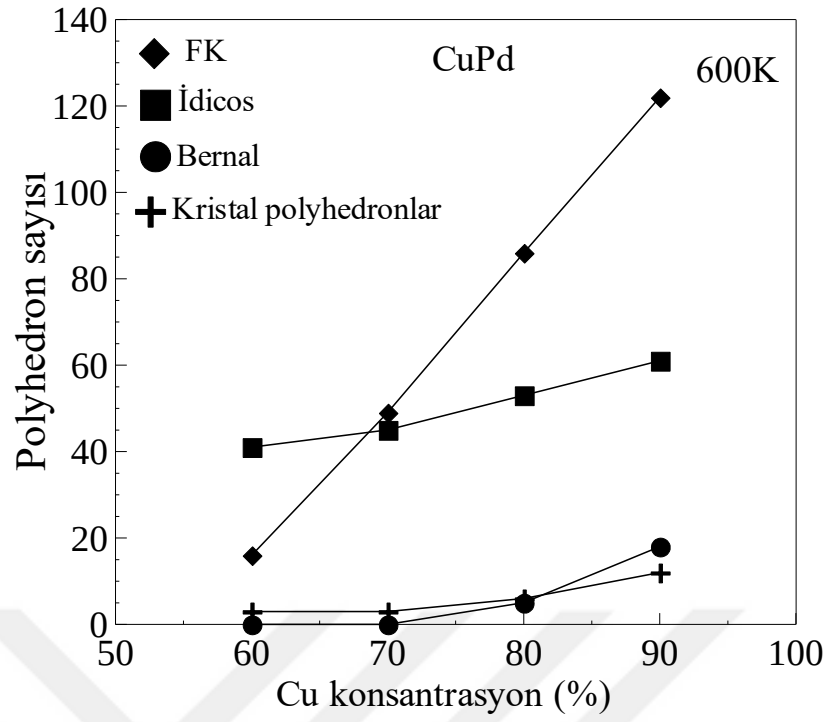
Cu-Pt model sistemine ait polyhedron türlerinin bakır konsantrasyon oranına göre değişimini gösteren grafikler incelendiğinde ise sonuçlar Cu-Pd model sisteminden farklılık göstermektedir. Buna göre Frank-Kasper (FK) polyhedronların sayısının bakırın tüm konsantrasyon değerlerinde arttığı görülmektedir. Yine aynı şekilde, ideal icos polyhedron türü ise tüm tavlama süreçlerinde konsantrasyon değerleri için artış göstermiştir. Bernal türü polyhedron ise Bakır konsantrasyonunun %60 ve %70 olduğu değerlerde mevcut değildir. Ancak %80 ve %90 olan değerlerde ise Bernal türü polyhedron sayısı yaklaşık 15’e ulaşmıştır. Kristal türü polyhedronların sayısı 400 K ve 500 K tavlama sıcaklığı değerlerinde önceki 300 K değerlerinden anlaşılaacağı üzere sadece %80 ve %90 bakır konsantrasyon değerlerinde 15 civarına ulaşmıştır. 600 K tavlama sıcaklığı değerinde ise konsantrasyon değeri arttıkça artarak sayısı 40 civarına ulaşmıştır.



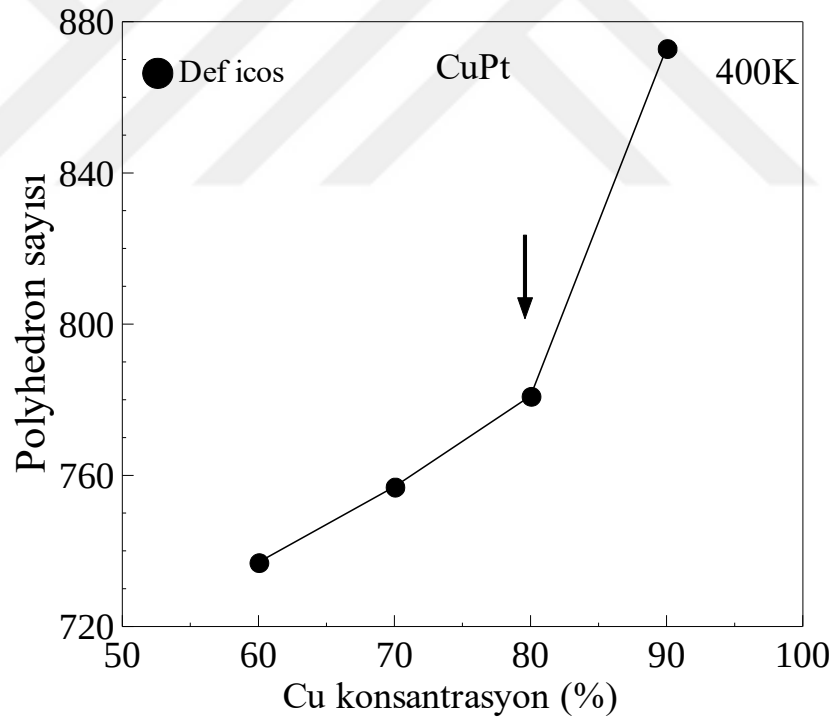
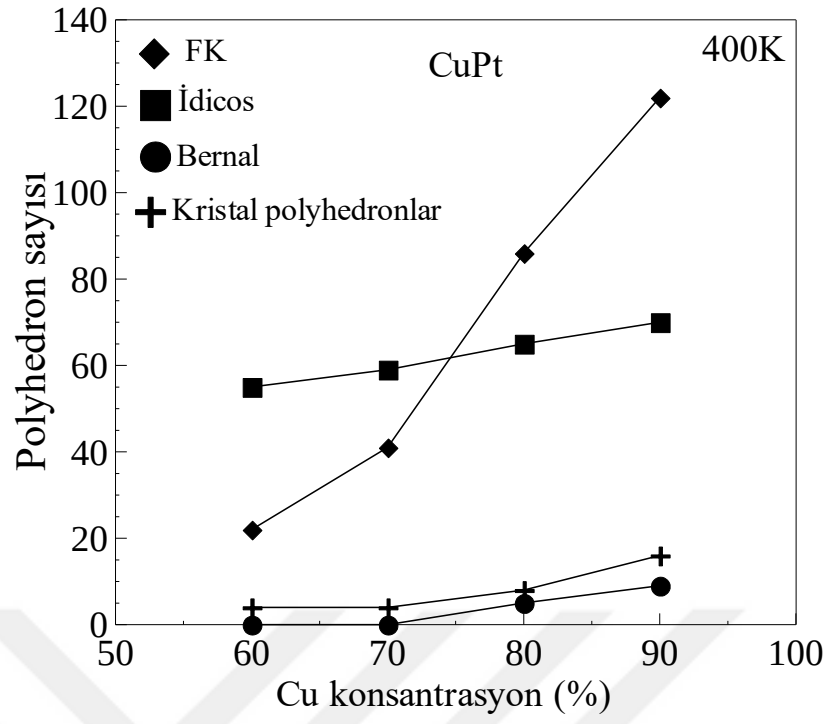
Şekil 3.55. Cu-Pd model sistemine ait tespit edilen polyhedron türlerinin bakır konsantrasyonuna göre değişimi (400 K)



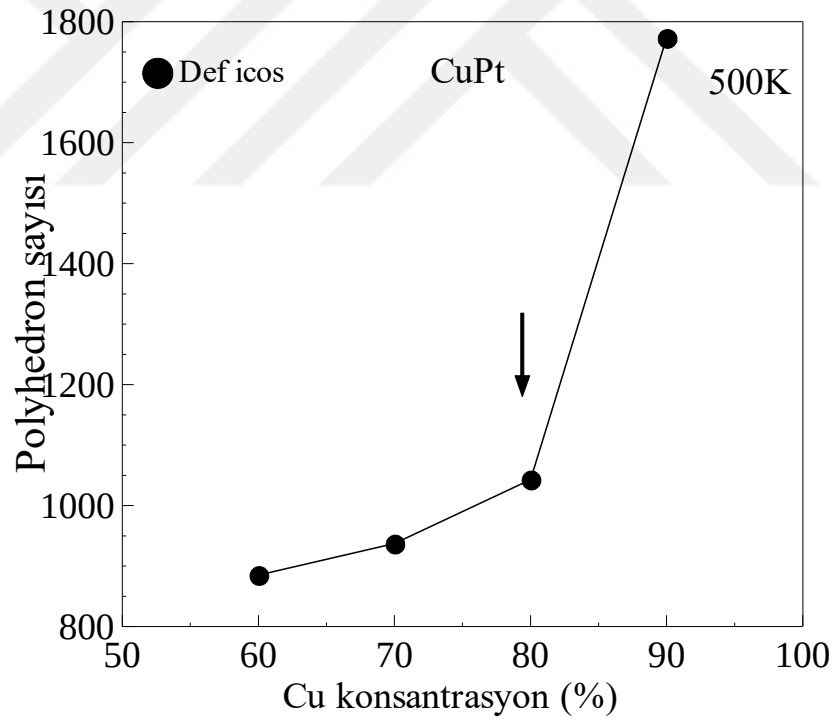
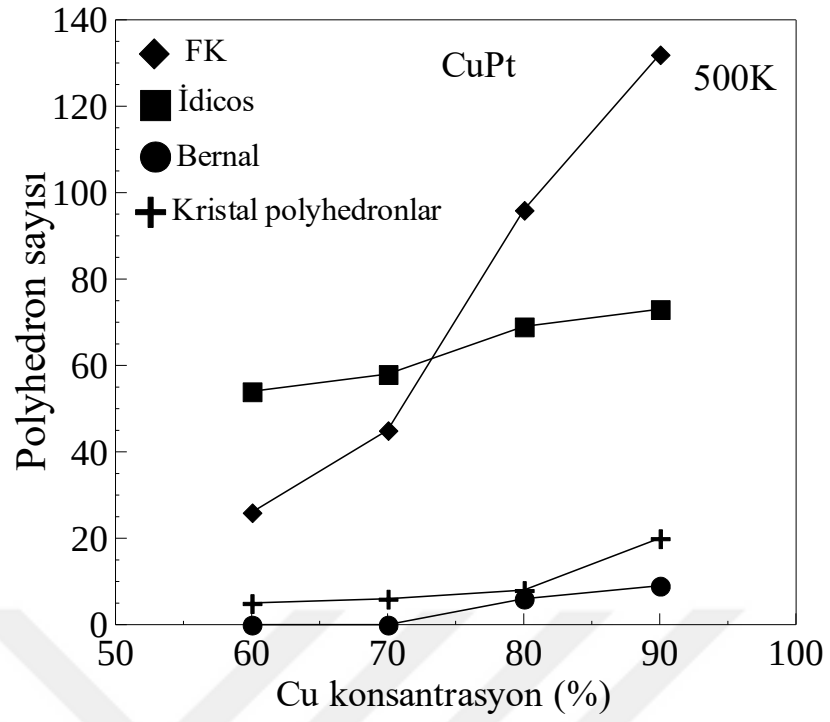
Şekil 3.56. Cu-Pd model sistemine ait tespit edilen polyhedron türlerinin bakır konsantrasyonuna göre değişimi (500 K)



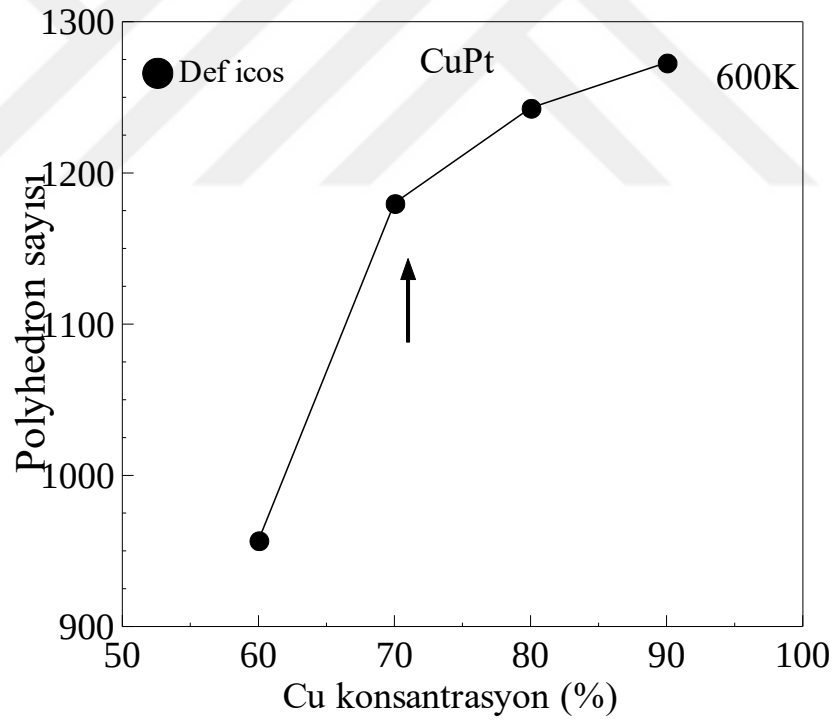
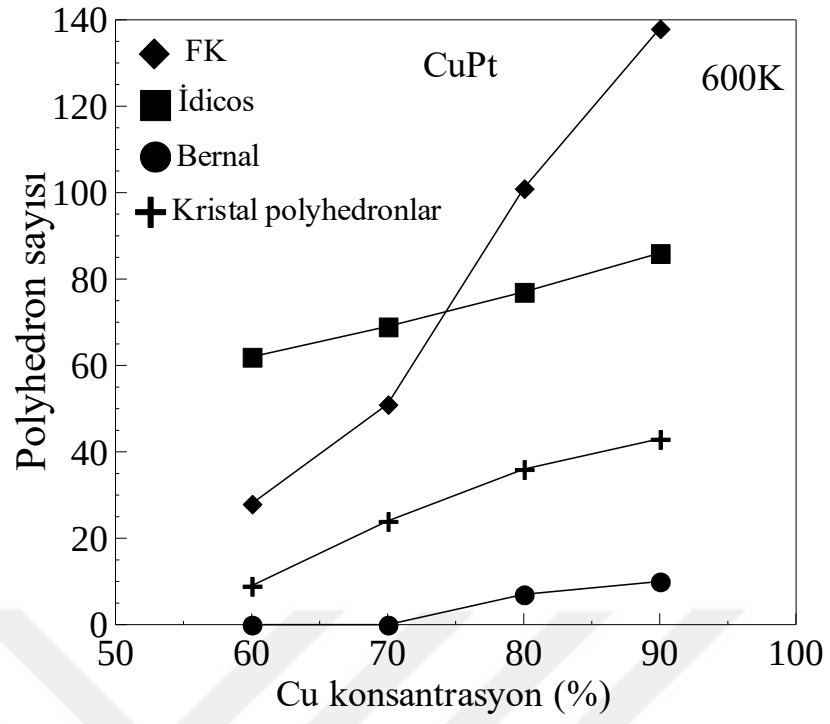
Şekil 3.57. Cu-Pd model sistemine ait tespit edilen polyhedron türlerinin bakır konsantrasyonuna göre değişimi (600 K)



Şekil 3.58. Cu-Pt model sistemine ait tespit edilen polyhedron türlerinin bakır konsantrasyonuna göre değişimi (400 K)



Şekil 3.59. Cu-Pt model sistemine ait tespit edilen polyhedron türlerinin bakır konsantrasyonuna göre değişimi (500 K)



Şekil 3.60. Cu-Pt model sistemine ait tespit edilen polyhedron türlerinin bakır konsantrasyonuna göre değişimi (600 K)

3.3. Üçlü Model Alaşım Sistemlerinin İncelenmesi

Farklı oranlarda Pt ve Pt katkılı Cu-Pt-Pd model üçlü alaşım sistemi için ikili alaşım sistemlerinde olduğu gibi 300 K sıcaklıktan başlayarak 2000 K sıcaklığına kadar bir ısıtma süreci uygulanmış ve sistemlerin erime sıcaklıkları belirlenmiştir. Daha sonra, amorf fazı elde etmek amacıyla sıcaklık hesaplanan erime sıcaklıklarından itibaren başlayarak 3×10^{13} K/s soğutma hızı uygulayarak 100 K sıcaklık azaltılması ile 300 K'ne kadar düşürülmüştür. Kristalleşme sürecini gözlemek amacıyla amorf fazdan itibaren sıcaklıklar sırasıyla 400 K, 500 K, 600 K, 700 K ve 800 K değerlerine çıkartılmıştır. Her bir sıcaklık değerlerinde toplam 500000 MD adımı bekletilmiştir.

Cu-Pd-Pt model sistemleri için potansiyel enerjinin sıcaklıkla değişiminden elde ettiğimiz erime sıcaklıklarının bakırın konsantrasyonuna göre değişimi, Çizelge 3.4'de verilmiştir. Bakırın konsantrasyonu azaldıkça erime sıcaklıklarının azaldığı tespit edilmiştir. Bu sonucun her iki model sistem içinde deneysel olarak bilinen erime noktaları değerleri ile uyumlu olduğu belirlenmiştir [89].

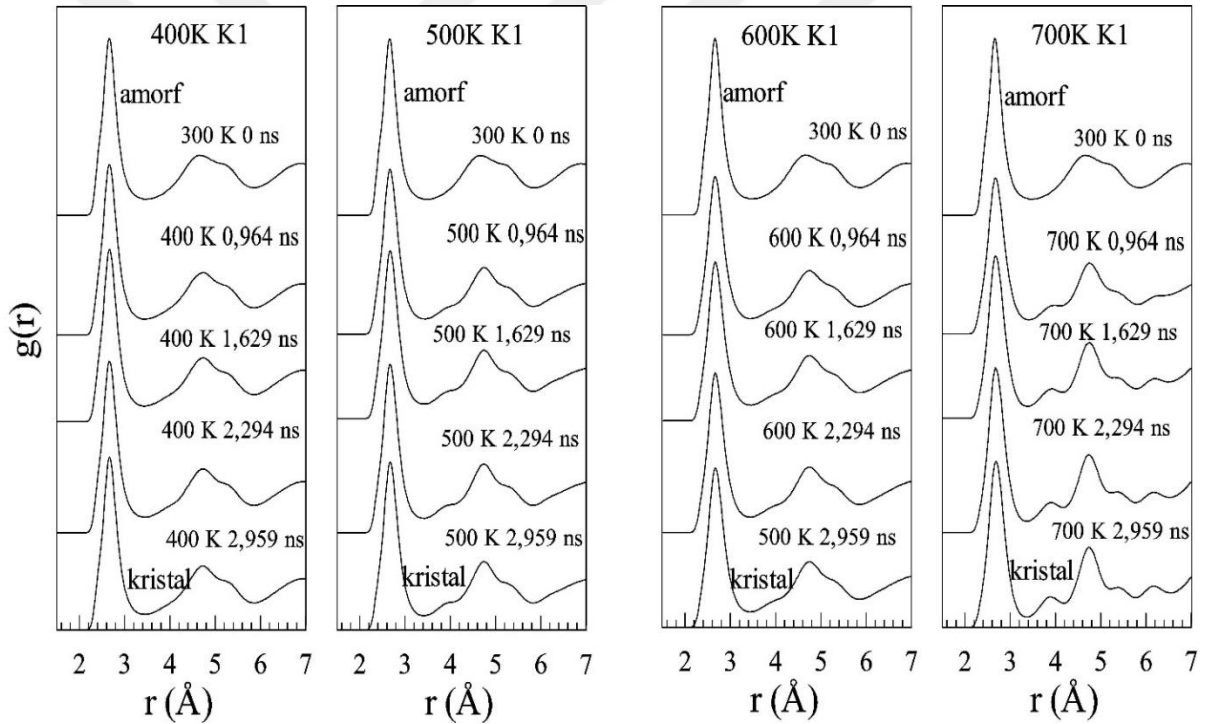
Çizelge 3.4. Cu-Pd-Pt alaşımı için ısıtma işlemi sonucu oluşan erime noktası tespiti

Erime Sıcaklığı (K)	Cu konsantrasyonu (%)	Pt konsantrasyonu (%)	Pd konsantrasyonu (%)	Model Sistemler
800	50	10	40	K1
800	50	40	10	K2
1200	70	10	20	K3
1200	70	20	10	K4
1300	90	05	05	K5

Çalışmanın bu bölümünde Cu, Pt ve Pd elementlerinin farklı konsantrasyon değerlerine göre model sistemler oluşturulmuştur. Konsantrasyon oranlarına göre model sistemleri kodlar konularak tanımlamalar yapılmıştır. Buna göre elde edilen 5 malzeme şu şekildedir; K1= $\text{Cu}_{50}\text{Pt}_{10}\text{Pd}_{40}$, K2= $\text{Cu}_{50}\text{Pt}_{40}\text{Pd}_{10}$, K3= $\text{Cu}_{70}\text{Pt}_{10}\text{Pd}_{20}$, K4= $\text{Cu}_{70}\text{Pt}_{20}\text{Pd}_{10}$, K5= $\text{Cu}_{90}\text{Pt}_{05}\text{Pd}_{05}$. Model sistemlerin elde edilmesinden sonra 500000 MD adımı ile farklı sıcaklık değerlerinde

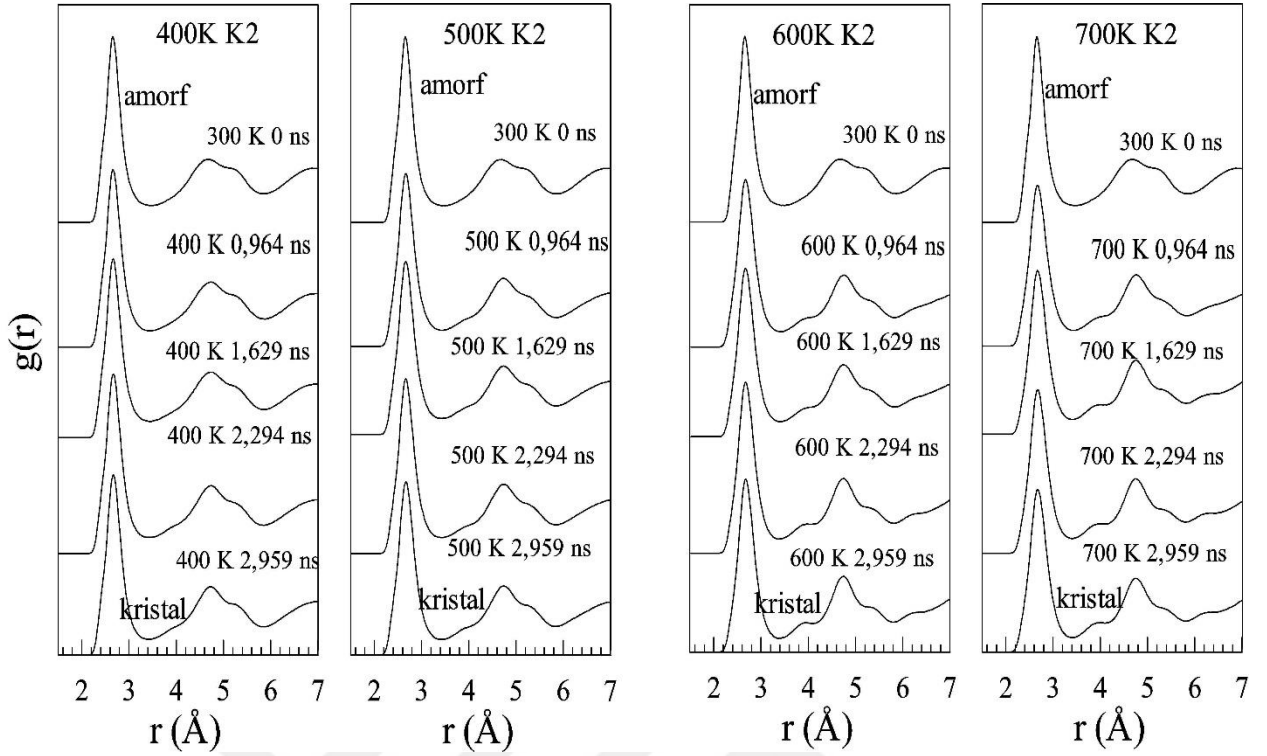
tavlama işlemi gerçekleştirilmiştir. Tavlama işlemindemodel sistemlerin amorf fazdan kristal faza dönüşüm süreçleri gözlenmiştir.

Şekil 3.61’de tavlama sürecinde K1 model sistemi için farklı tavlama sıcaklıklarına karşılık RDF eğrilerinin değişimi (400 K, 500 K, 600 K ve 700 K) verilmiştir. Tavlama işlemiyle alaşım sistemi 300 K sıcaklık değerinden başlayarak (0 ns), sırasıyla 0,964 ns, 1,629 ns, 2,294 ns ve 2,959 ns sürelerde bekletilerek yapısal olarak meydana gelen değişiklikler gözlenmiştir. Şekil ele alındığında, tavlama sürecinde hem K1 model sistemi için 300 K sıcaklık değerinden 400 K, 500 K ve 600 K sıcaklığına çıkarılan tavlama süreçlerinde kristal faz pikleri çok zayıftır ve dolayısıyla tam olarak kristal faza dönüşüm gerçekleşmemiştir. Ancak 300 K sıcaklığından 700 K sıcaklığına çıkarılan tavlama sıcaklığından model sistemin kristal örgü düzenine geçtiği açıkça gözlenmektedir.



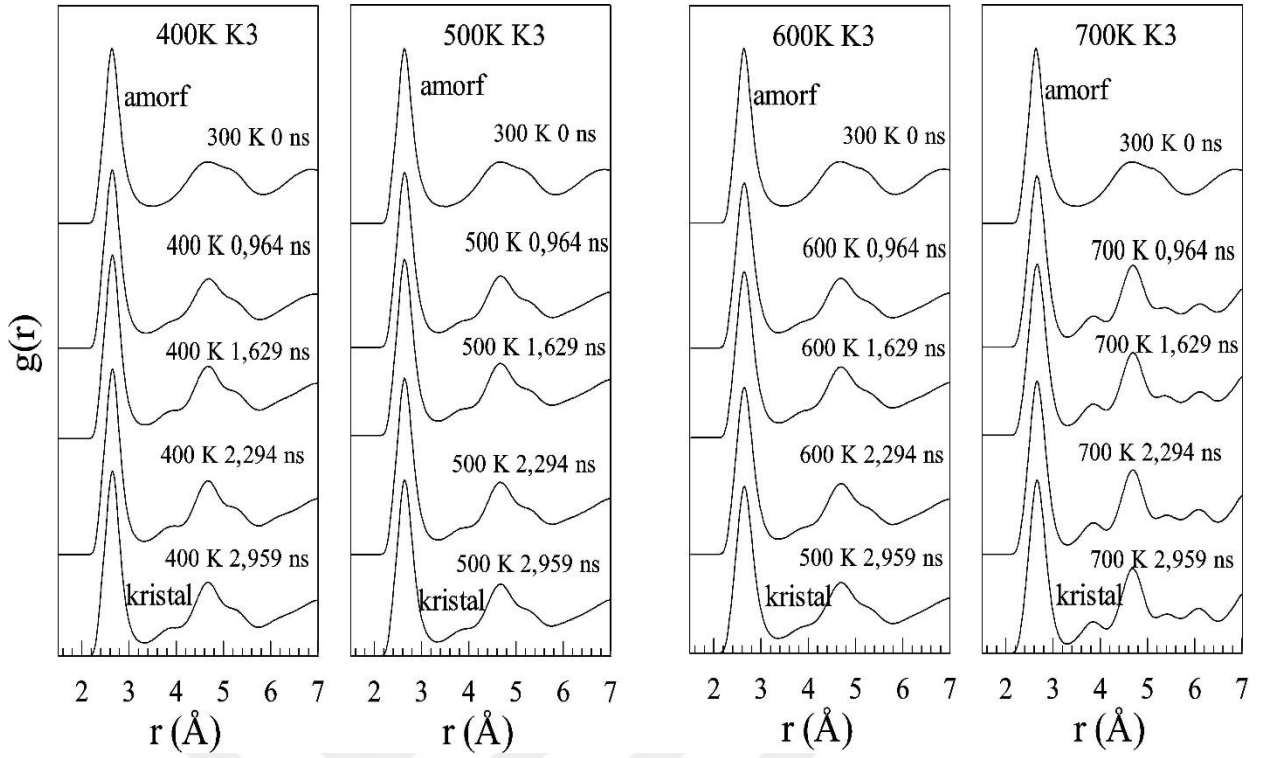
Şekil 3.61. K1 ($\text{Cu}_{50}\text{Pt}_{10}\text{Pd}_{40}$) model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 500000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri

Tavlama sürecinde K2 model sistemi için farklı tavlama sıcaklıklarına karşılık RDF eğrilerinin değişimi, Şekil 3.62’de verilmiştir. Burada 4 farklı sıcaklık değerinde amorf fazdan kristal faza dönüşümün tam olarak gerçekleşmediği RDF piklerinin şiddetlerinden gözlenmektedir. Ancak kristalleşmenin en fazla gözlemlendiği 700 K’de daha fazla belirgin pik şiddetleri ile kendini belli etmekteydi



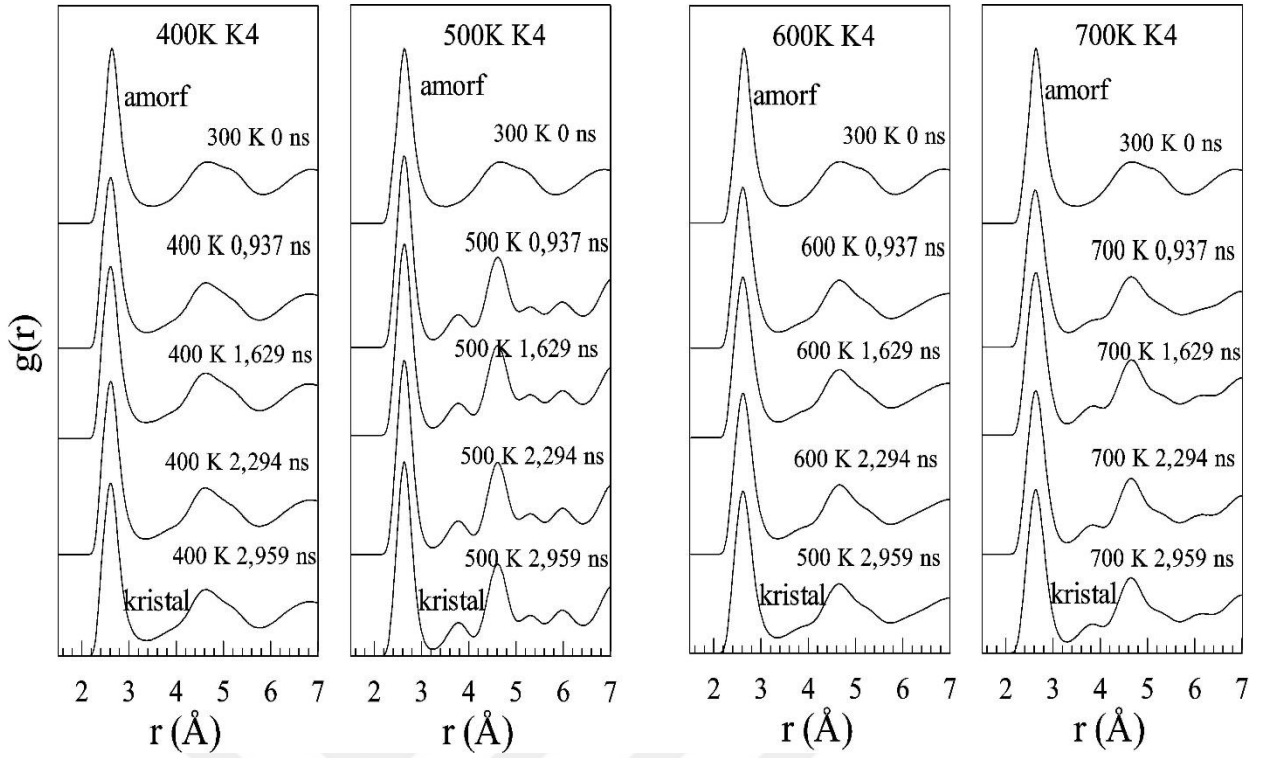
Şekil 3.62. K2 ($\text{Cu}_{50}\text{Pt}_{40}\text{Pd}_{10}$) model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 500000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri

Şekil 3.63’de tavlama sürecinde K3 model sistemi farklı tavlama sıcaklıklarına karşılık RDF eğrilerinin değişimi verilmiştir. Tavlama işlemiyle alaşım sistemi 300 K sıcaklık değerinden başlayarak (0 ns), farklı tavlama sürelerinde bekletilerek yapısal olarak meydana gelen değişiklikler gözlenmiştir. K3 model sistemi incelendiğinde 4 farklı tavlama sıcaklığı değeri için de amorf fazın zamanla kristal faza geçiş eğiliminde olduğu pik şiddetlerinden anlaşılmaktadır. Ayrıca 700 K tavlama sürecinde pik şiddetlerinin keskinliği hızla artmış ve model sistem kristal örgü düzeni varlığı en belirgin şekilde ortaya çıkmıştır.



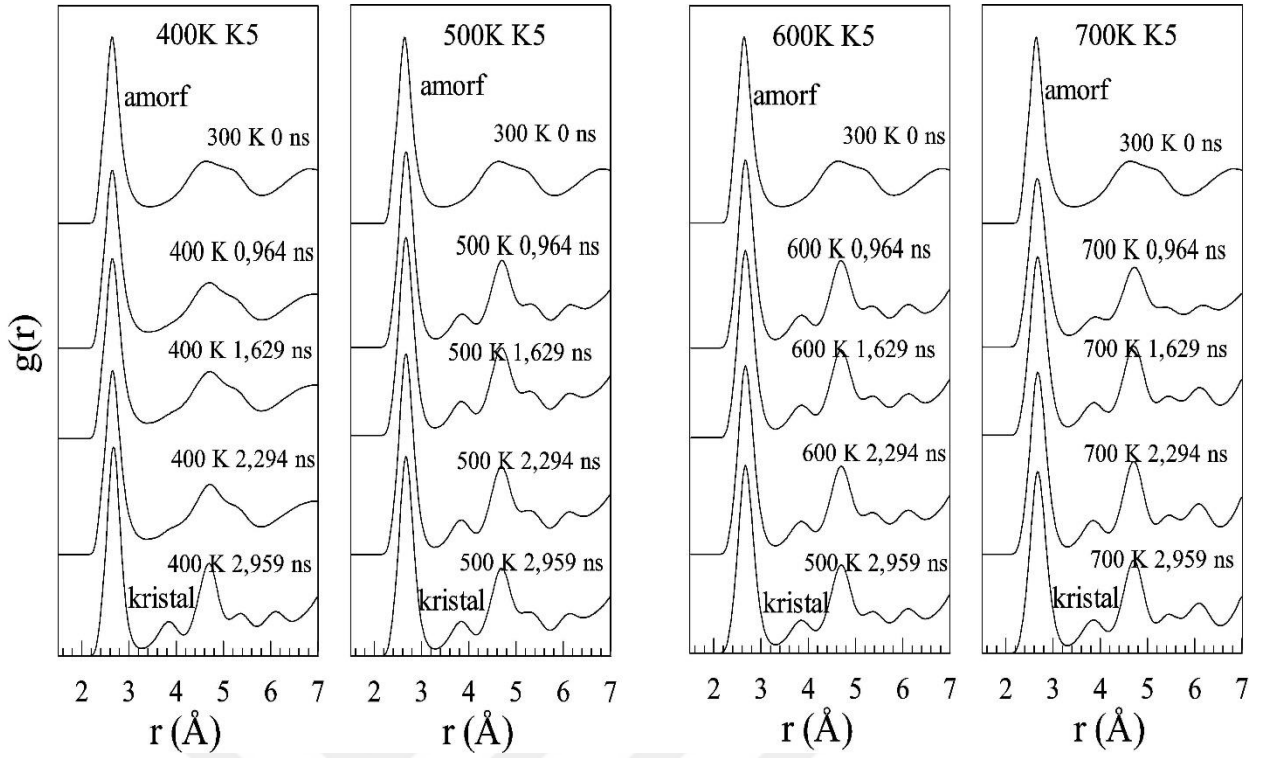
Şekil 3.63. K3 ($\text{Cu}_{70}\text{Pt}_{10}\text{Pd}_{20}$) model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 500000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri

Şekil 3.64’de K4 tavlama sürecinde model sistemi için farklı tavlama sıcaklıklarına karşılık RDF eğrilerinin değişimi verilmiştir. Bu model sistem incelendiğinde, diğerlerinden farklı olarak en yüksek kristalleşme sıcaklığının 500 K olduğu görülmektedir. 400 K ve 600 K sıcaklık değerlerinde amorf yapıdan kristal düzene dönüşüm zayıf kalırken 700 K sıcaklığında ise 500 K tavlama sıcaklığına göre daha az şiddette pik oluşmuştur. Özetle, K4 model sistemi kristal örgü düzenine en hızlı ve en belirgin ulaşan tavlama sıcaklığı 500 K değeridir.



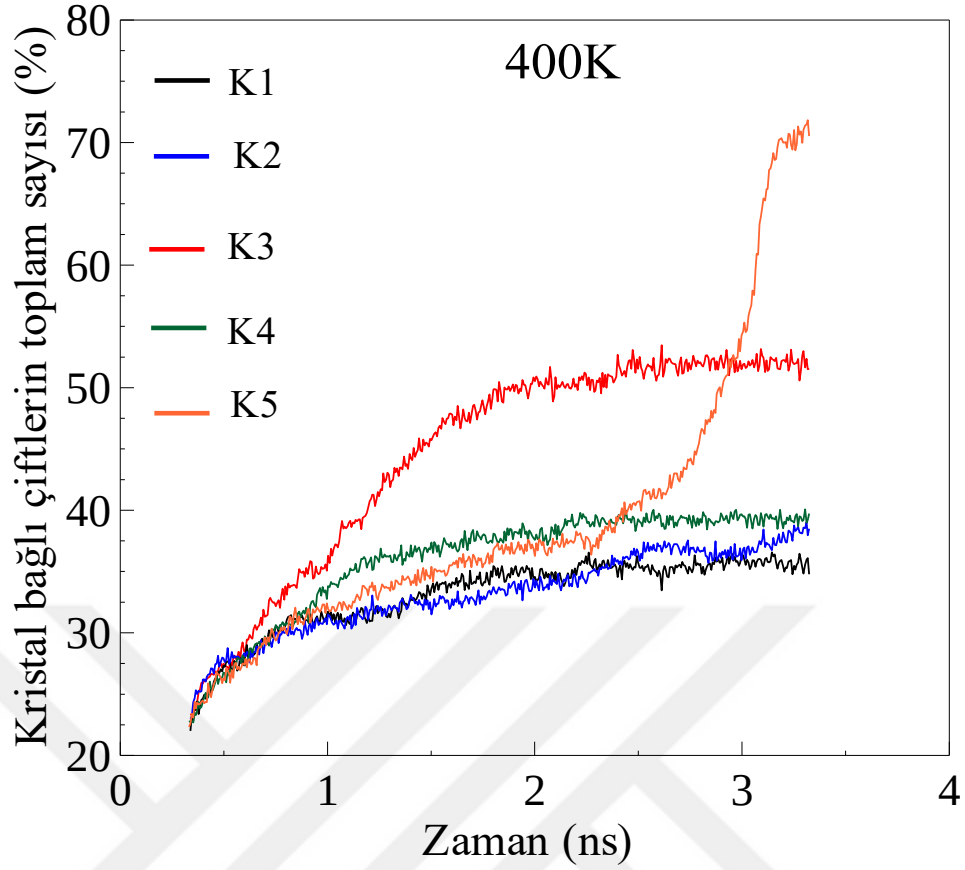
Şekil 3.64. K4 ($\text{Cu}_{70}\text{Pt}_{20}\text{Pd}_{10}$) model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 500000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri

Tavlama sürecinde K5 model sistemi için farklı tavlama sıcaklıklarına karşılık RDF eğrilerinin değişimi (400 K, 500 K, 600 K ve 700 K) Şekil 3.64’de verilmiştir. K5 model sisteme ait olan grafik ele alındığında 500000 MD adımı ile gerçekleştirilen 4 farklı sıcaklık için tavlama süreci sonunda amorf fazdan kristal faza geçiş belirgin şekilde gözlenmektedir. Ancak 400 K sıcaklığında süreç diğer tavlama sıcaklıklarına göre daha yavaş ilerlemiş ve ancak 2,959 ns sonunda kristal faz oluşmuştur. 500 K, 600 K ve 700 K tavlama sıcaklıklarında ise süreç neredeyse benzer şekilde ilerlemiş yani kısa sürede kristal örgü düzeni oluşmuş ve pikler belirginleşmiştir. İkili model sistemler ile karşılaştırıldığında, 700 K tavlama sıcaklığında ikili sistemlerin sıvı faza dönüştüğü belirlenirken, üçlü model sistemde ise 700 K sıvı faza dönüşüm gerçekleşmemiştir.



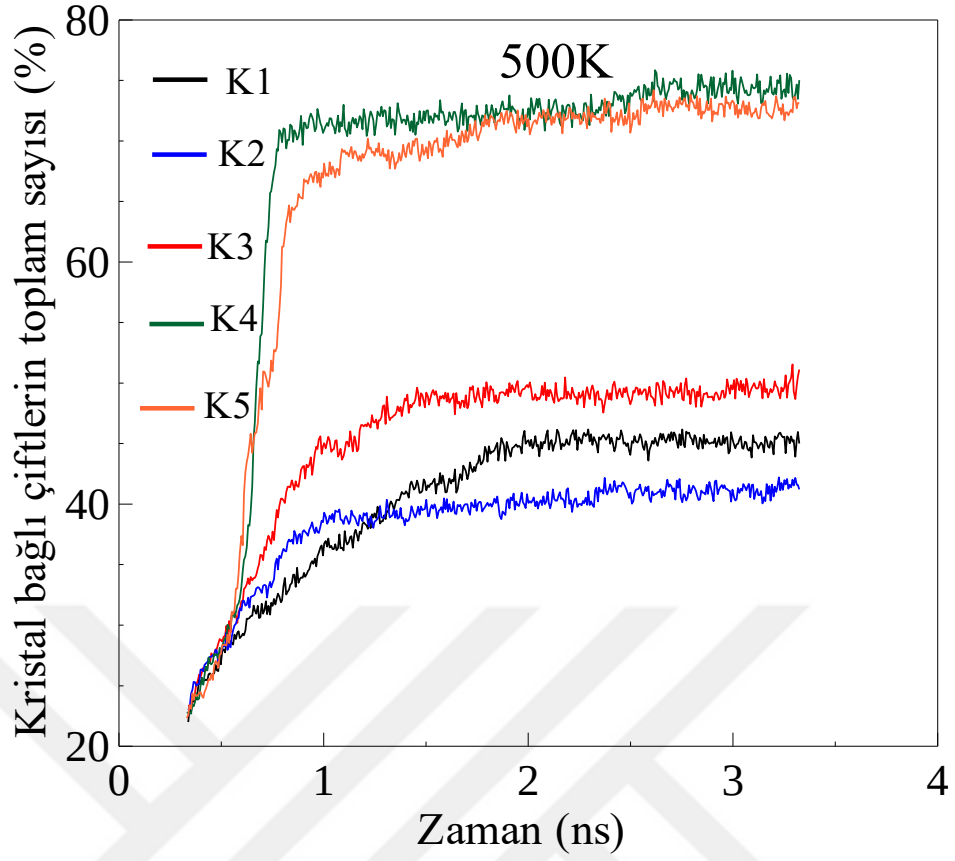
Şekil 3.65. K5 ($\text{Cu}_{90}\text{Pt}_{10}\text{Pd}_{10}$) model sistemleri için amorf fazdan (0 ns) itibaren toplamda 500000 MD adım bekletilerek farklı tavlama sıcaklıklarında ve zamanlarında elde edilen RDF eğrileri

Tavlama sürecinde farklı Pt ve Pd konsantrasyon değerlerine sahip alaşım sistemleri için 400 K tavlama sıcaklığında kristal bağlı çiftlerin toplam sayısının zamanla değişimi, Şekil 3.67’de gösterilmiştir. Burada tüm model sistemlerde kristal bağlı çiftlerin toplam sayısı zamanla artış eğilimindedir. K3 model sistemi hızla artış göstererek %50 değeri civarında sabit kalmıştır. Ancak K5 model sistem ise belirli bir zaman aralığından sonra keskin bir artış göstererek % 70 değerine ulaşmıştır. Bakır oranın en fazla olduğu model sistemde kristal bağlı çiftlerin toplam sayısının en yüksek değere ulaşılması ise bakırın etkisini açıkça göstermektedir.



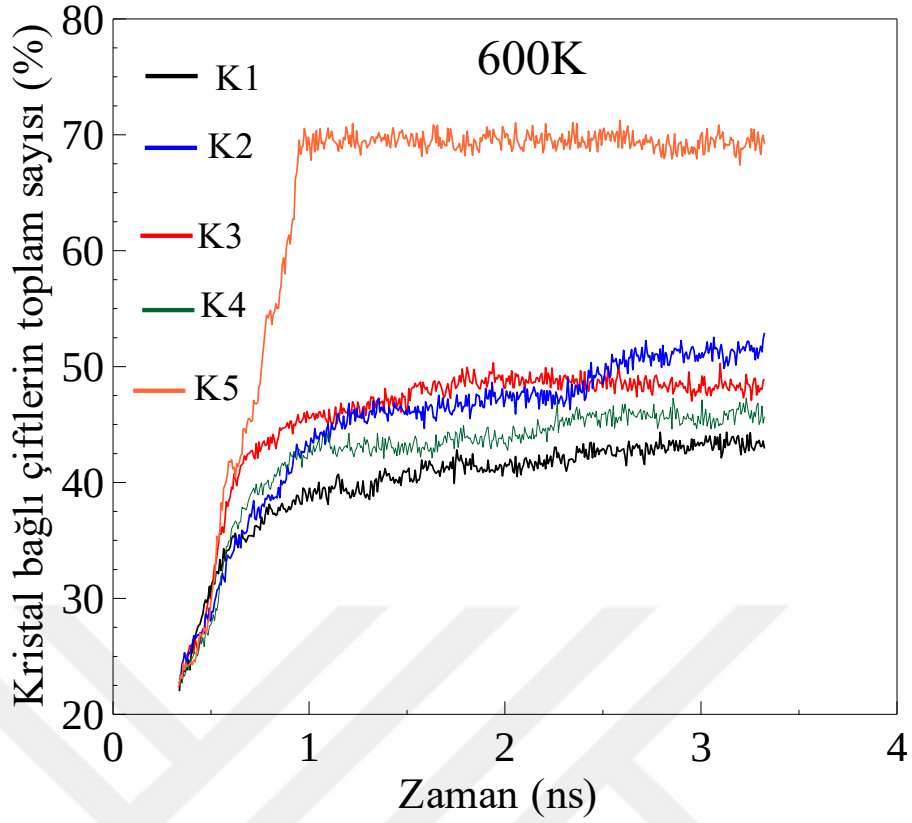
Şekil 3.66. Farklı Pt ve Pd konsantrasyon değerlerinde alaşım sistemleri için 400 K tavlama sıcaklığında kristal bağlı çiftlerin toplam sayısının zamanla değişimi

Tavlama sürecinde farklı Pt ve Pd konsantrasyon değerlerine sahip alaşım sistemleri için 500 K tavlama sıcaklığında kristal bağlı çiftlerin toplam sayısının zamanla değişimi, Şekil 3.67’de gösterilmiştir. Şekil incelendiğinde, K1, K2 ve K3 model sistemlerinin benzer davranış sergileyerek %40 ile %50 civarında değerler aldığı görülmektedir. Ancak tavlama sürecinin başlamasıyla birlikte hızla artış gösteren iki değer ise K4 ve K5 yapılarına aittir. Burada yine bakır oranın yüksek olmasına bağlı olarak kristal bağlı toplam çift sayısının artışı gözlemlemekteyiz ki bu değer %70 civarındadır.



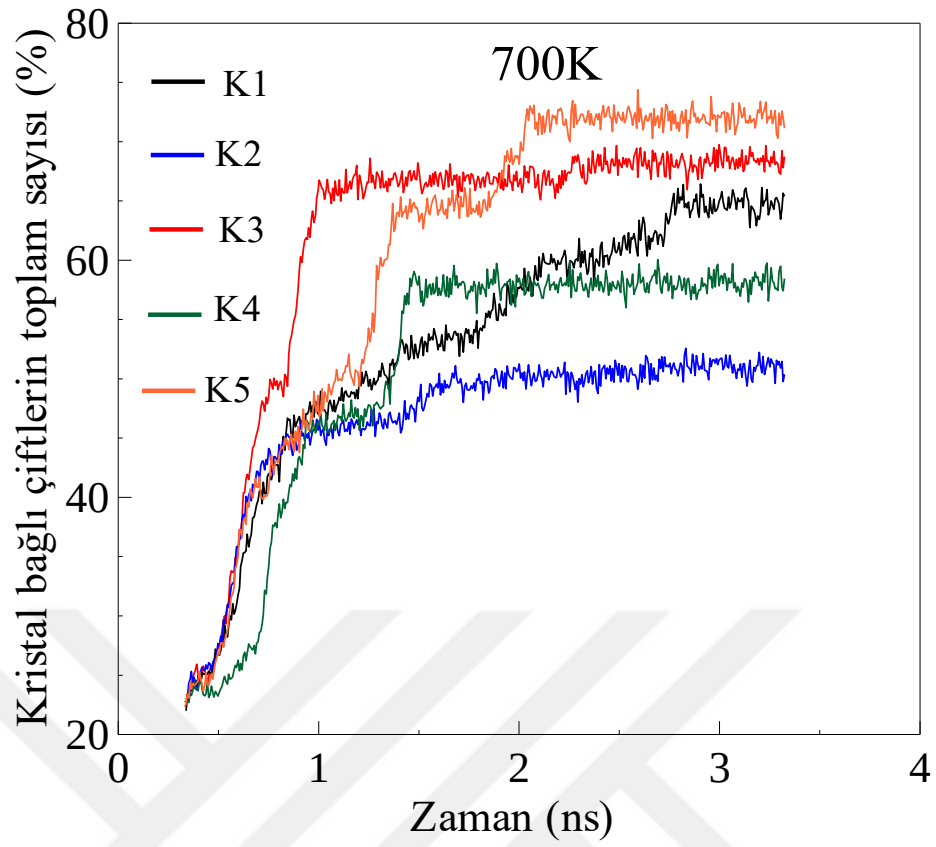
Şekil 3.67. Farklı Pt ve Pd konsantrasyon değerlerinde alaşım sistemleri için 500 K tavlama sıcaklığında kristal bağı çiftlerin toplam sayısının zamanla değişimi

Tavlama sürecinde farklı Pt ve Pd konsantrasyon değerlerine sahip alaşım sistemleri için 600K tavlama sıcaklığında kristal bağı çiftlerin toplam sayısının zamanla değişimi, Şekil 3.68’de gösterilmiştir. Şekilden açıkça görülmektedir ki K5 model sistemi belirgin şekilde kristal bağı çiftlerin toplam sayısı en yüksek değerdedir. Buna göre, kristal bağı çiftlerin sayısı bakır konsantrasyonunun yüksek olduğu değerlerde yaklaşık %70 civarındadır.



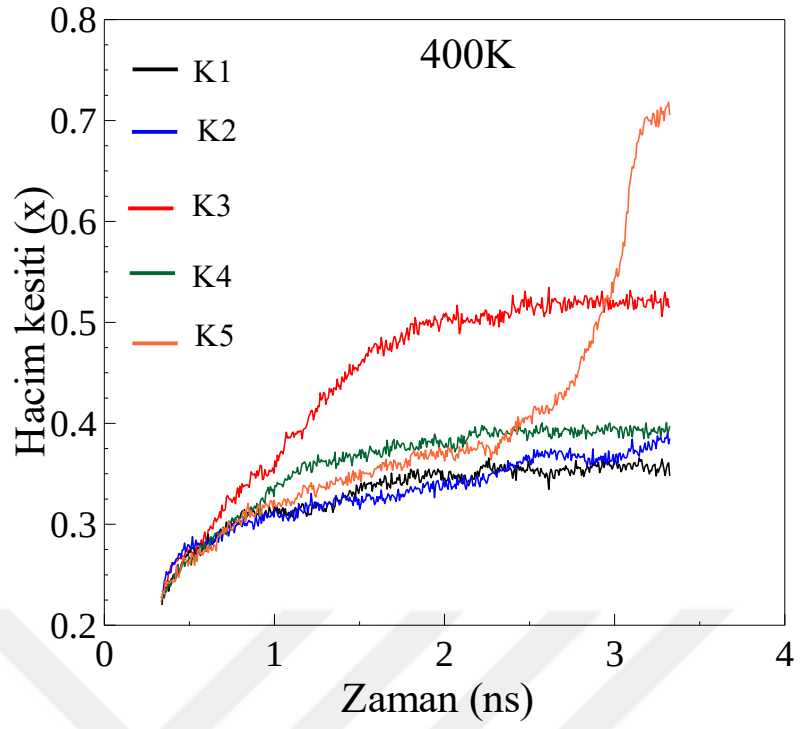
Şekil 3.68. Farklı Pt ve Pd konsantrasyon değerlerinde alaşım sistemleri için 600 K tavlama sıcaklığında kristal bağılı çiftlerin toplam sayısının zamanla değişimi

Tavlama sürecinde farklı Pt ve Pd konsantrasyon değerlerine sahip alaşım sistemleri için 700 K tavlama sıcaklığında kristal bağılı çiftlerin toplam sayısının zamanla değişimi, Şekil 3.69’da gösterilmiştir. Şekil incelendiğinde, kristal bağılı çiftlerin sayısının en düşük değeri %50 ile K2 model sistemine ait olduğu görülmektedir. Hemen hemen tüm alaşım sistemlerinde tavlama sürecinin başlamasıyla hızla kristal bağılı çift toplam çift sayısında artış görülmektedir. K1 model sisteminde artış süreç boyunca devam ederek %60 değerinin üzerine çıkmıştır. K2, K3, K4 ve K5 model sistemlerinin tümünde belirli değerden sonra sabit kalmıştır. Diğer tavlama sıcaklığı süreçlerinde ki gibi 700 K tavlama sıcaklığı sürecinde de en yüksek değere K5 model sistemi sahip olmuştur. Bu da bakır katkısının en yüksek olduğu alaşım sisteminde kristal bağılı çift sayısının artışına katkı sağladığı şeklinde yorumlanabilir.

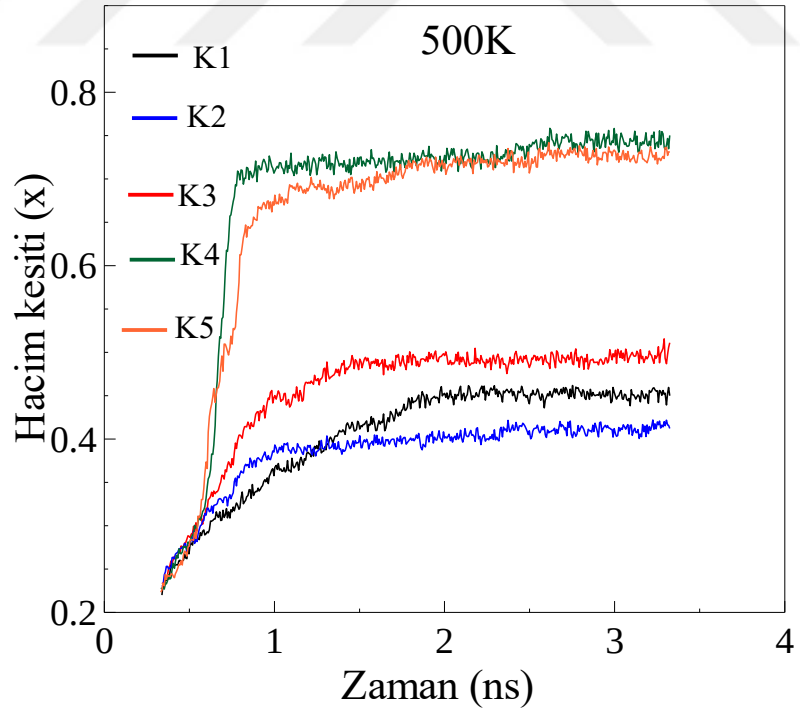


Şekil 3.69. Farklı Pt ve Pd konsantrasyon değerlerinde alaşım sistemleri için 700 K tavlama sıcaklığında kristal bağı çiftlerin toplam sayısının zamanla değişimi

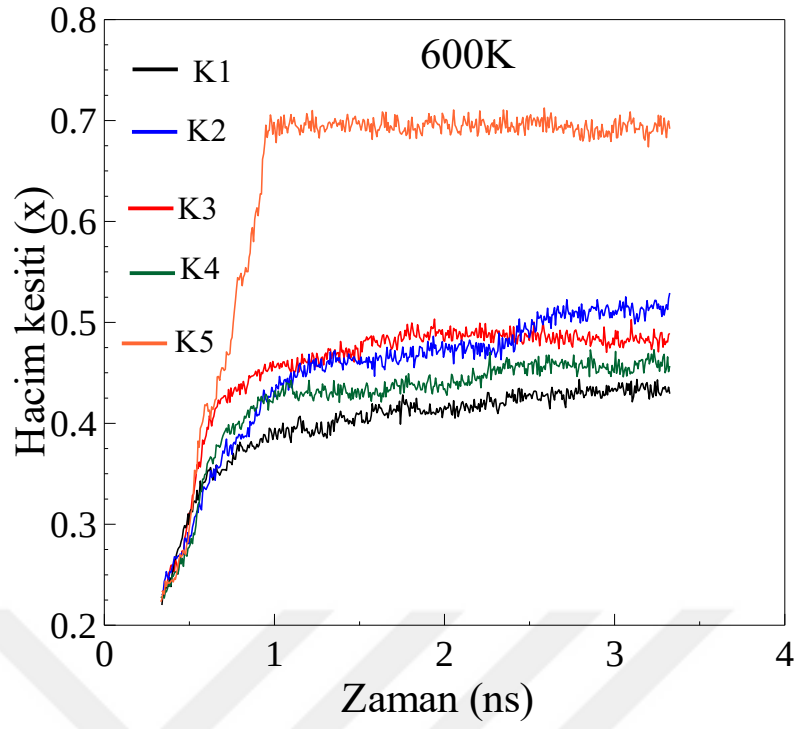
Avrami katsayılarını hesaplamak için kristal bağı çiftlerin yüzdesel optimize edilmiş ve bu hesaplamalar hacim kesiti olarak yorumlanmıştır. Model sistemlerin hacim kesitlerinin zamana karşı grafikleri, Şekil 3.70, Şekil 3.71, Şekil 3.72 ve Şekil 3.73’de verilmiştir.



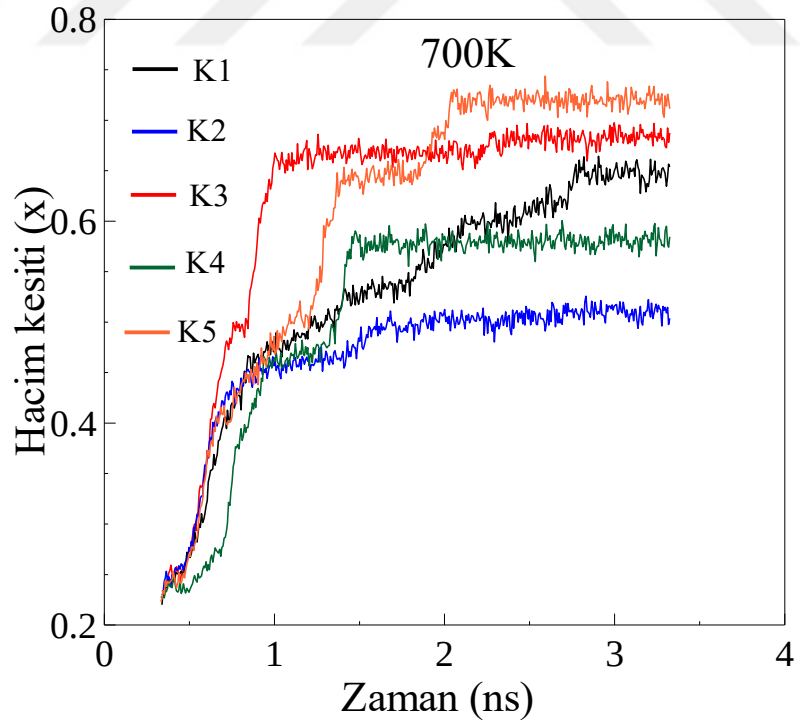
Şekil 3.70. Bakırın farklı konsantrasyonlarında 400 K tavlama sıcaklığında Cu-Pd-Pt model sistemleri için hacim kesitinin (x) zamanla değişimi



Şekil 3.71. Bakırın farklı konsantrasyonlarında 500 K tavlama sıcaklığında Cu-Pd-Pt model sistemleri için hacim kesitinin (x) zamanla değişimi

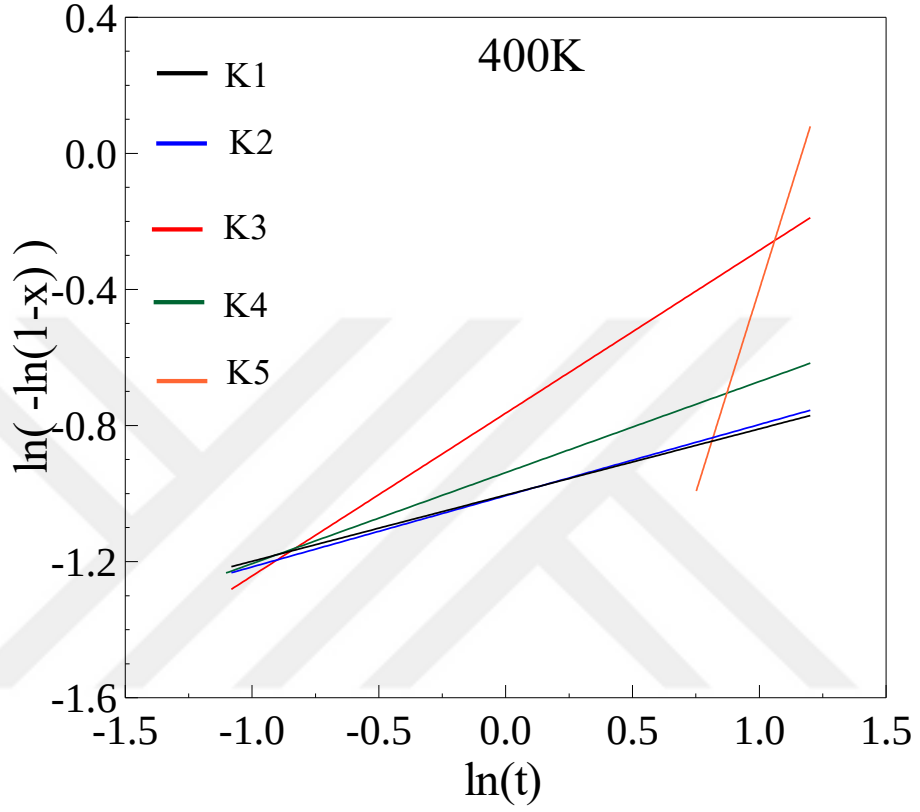


Şekil 3.72. Bakırın farklı konsantrasyonlarında 600 K tavlama sıcaklığında Cu-Pd-Pt model sistemleri için hacim kesitinin (x) zamanla değişimi

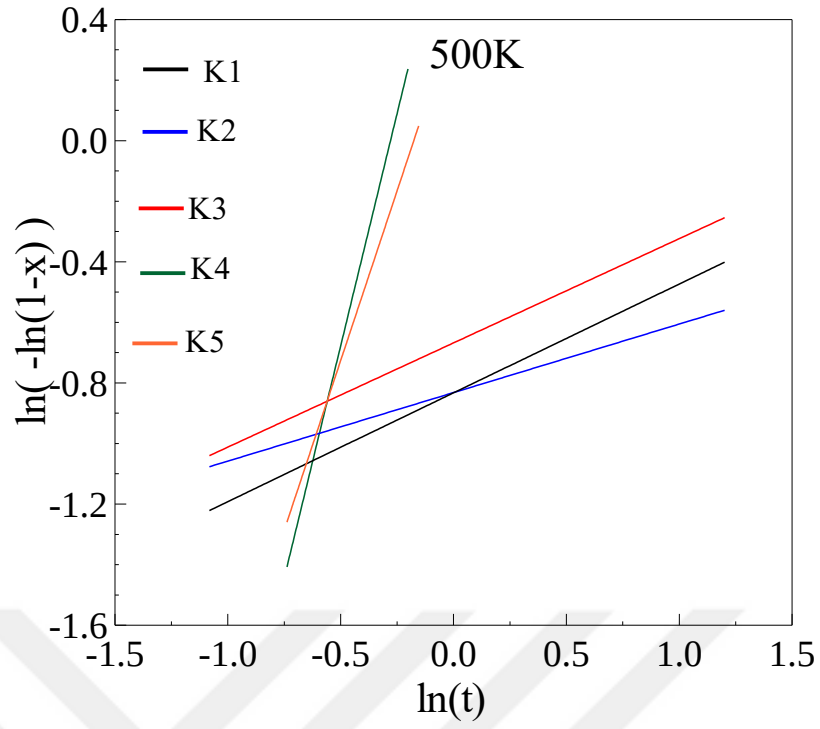


Şekil 3.73. Bakırın farklı konsantrasyonlarında 700 K tavlama sıcaklığında Cu-Pd-Pt model sistemleri için hacim kesitinin (x) zamanla değişimi

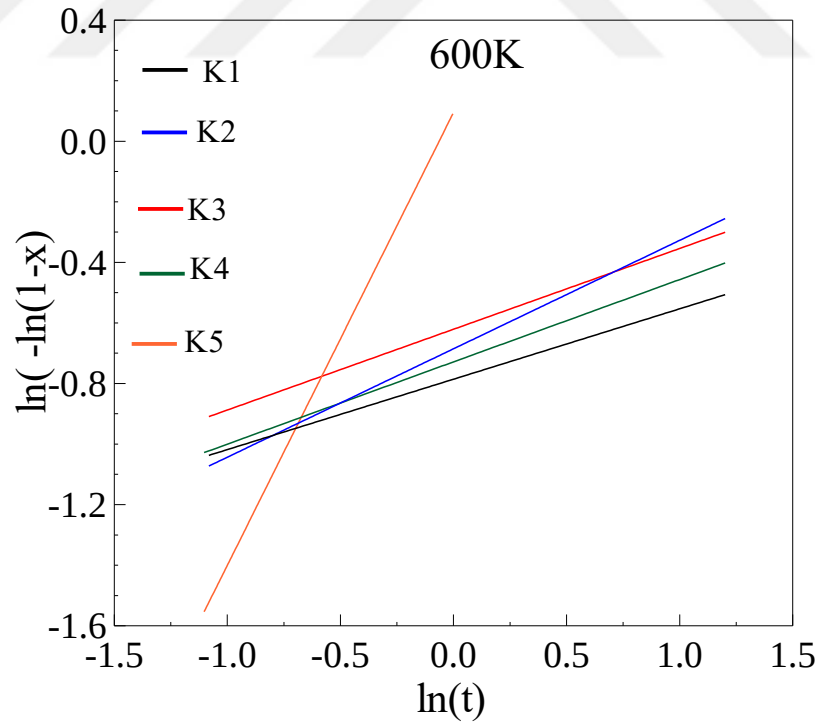
Avrami katsayılarını hesaplamak için hacim kesitindeki değişim göz önüne alınarak, $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre grafiğinin eğimi alınmıştır. Bakırın farklı konsantrasyonları için Cu-Pd-Pt model sistemleri farklı tavlama sıcaklıkları için $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre grafikleri, Şekil 3.73, Şekil 3.74, Şekil 3.75 ve Şekil 3.76'da verilmiştir.



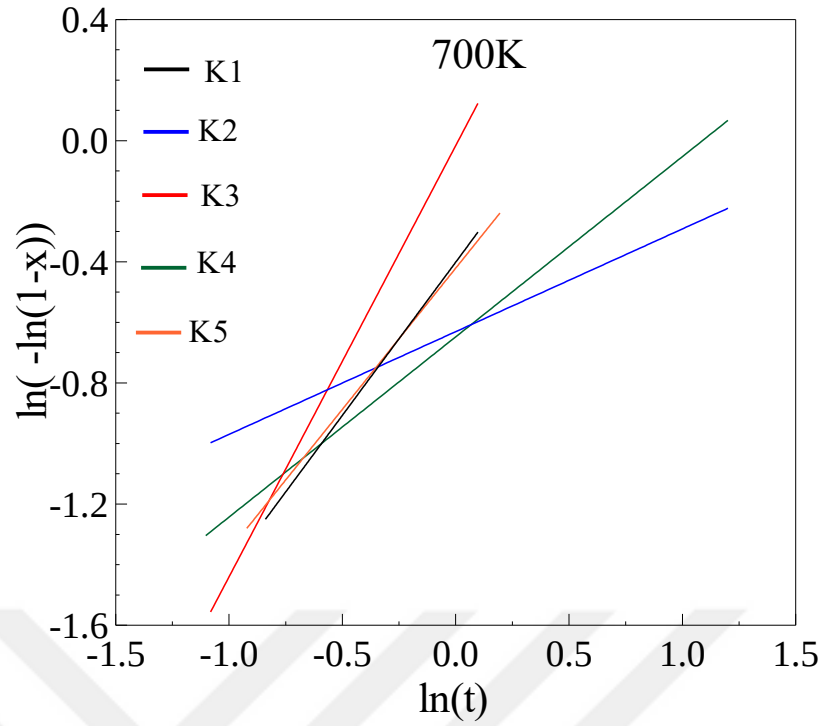
Şekil 3.74. Cu-Pd-Pt model sistemleri bakırın farklı konsantrasyonları için 400 K tavlama sıcaklığında $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre değişimi



Şekil 3.75. Cu-Pd-Pt model sistemleri bakırın farklı konsantrasyonları için 500 K tavlama sıcaklığında $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre değişimi



Şekil 3.76. Cu-Pd-Pt model sistemleri bakırın farklı konsantrasyonları için 600 K tavlama sıcaklığında $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre değişimi



Şekil 3.77. Cu-Pd-Pt model sistemleri bakırın farklı konsantrasyonları için 700 K tavlama sıcaklığında $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre değişimi

Cu-Pd-Pt model sistemleri bakırın farklı konsantrasyonlarında için Hacim kesitinin (X) zamanla değişiminden elde edilen eğim (Avrami katsayısı) değerleri Çizelge 3.5'de verilmiştir. Avrami katsayılarını hesaplamak için hacim kesitindeki değişim, $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ denkleminde kullanılmış ve elde edilen grafiğinin eğimi hesaplanarak tam değerlere yuvarlanmıştır.

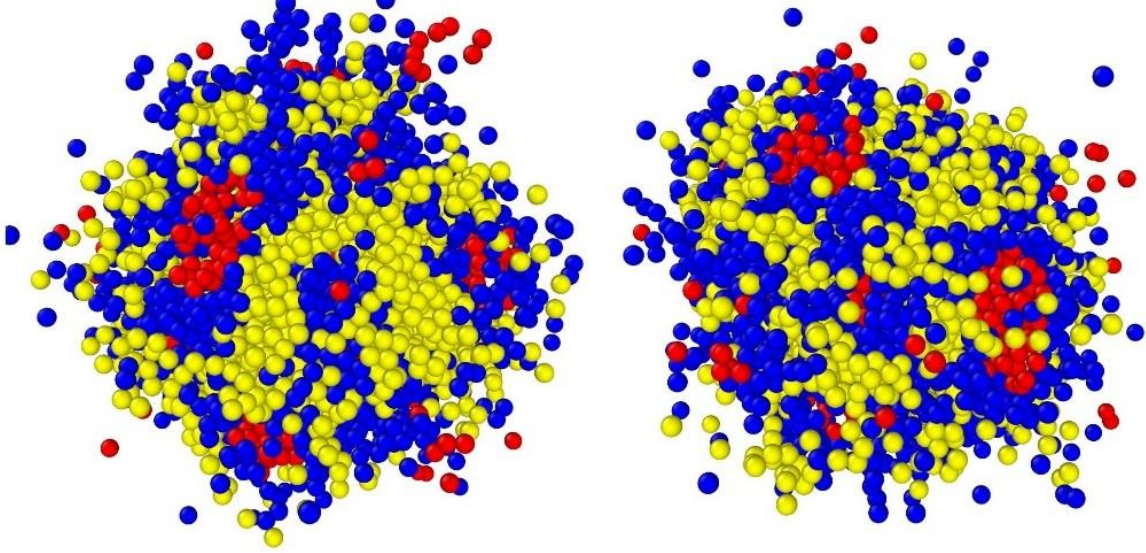
Çizelge 3.5. Bakırın farklı konsantrasyonlarında Cu-Pd-Pt model sistemleri için Hacim kesitinin (x) zamanla değişiminden elde edilen eğim (Avrami katsayısı) değerleri

	400 K	500 K	600 K	700 K
K1: Cu ₅₀ Pt ₁₀ Pd ₄₀	0	0	0	1
K2: Cu ₅₀ Pt ₄₀ Pd ₁₀	0	0	0	0
K3: Cu ₇₀ Pt ₁₀ Pd ₂₀	0	0	0	1
K4: Cu ₇₀ Pt ₂₀ Pd ₁₀	0	3	0	1
K5: Cu ₉₀ Pt ₀₅ Pd ₀₅	2	2	2	1

K1 ve K3 model sisteminde 700 K tavlama sıcaklığı değerinde $n=1$ ile yüzeysel çekirdeklenme gözlenirken diğer tavlama sıcaklığı değerlerinde ise kristalleşme gözlenmemiştir. Buna göre K2 model sisteminin 400 K, 500 K, 600 K ve 700 K tavlama sıcaklıklarına ait Avrami katsayı değerleri $n=0$ olarak elde edilmiştir. Bu durumda model sistemde kristalleşmenin tam olarak gerçekleşmediği görülmektedir. K4 model sisteminde ise 400 K ve 600 K tavlama sıcaklığı sürecine ait Avrami katsayısı $n=0$ değerini alarak kristalleşme tam olarak gerçekleşmemiş, ancak 700 K tavlama sıcaklığında yüzeysel çekirdeklenme ile 500 K tavlama sıcaklığında hacimsel çekirdeklenme ve tek boyutta büyüme ile kristalleşme meydana gelmiştir.

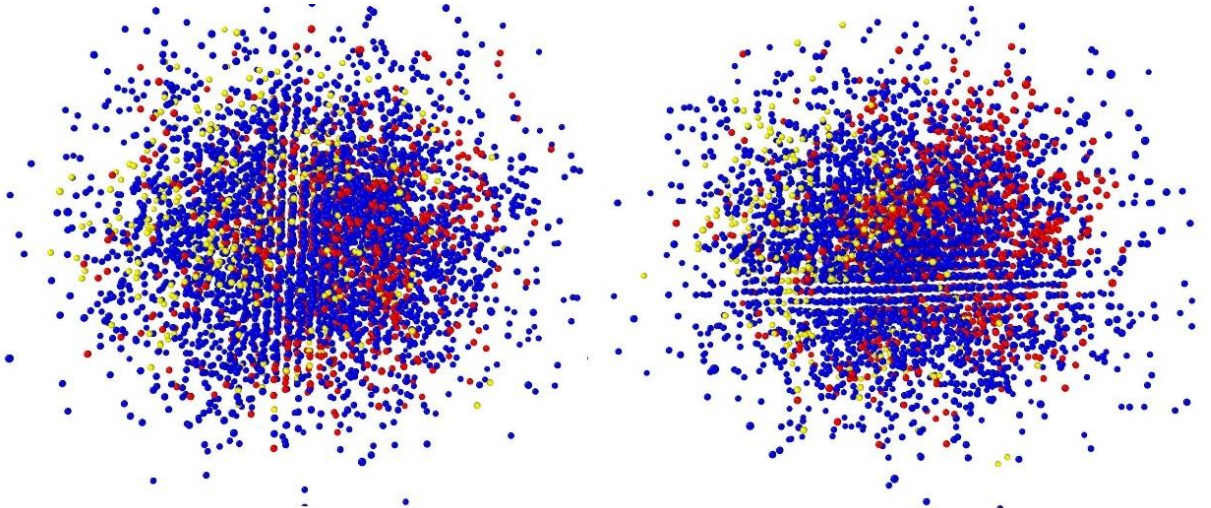
K5 model sisteminde ise 700 K tavlama sıcaklığına ait Avrami katsayısı $n=1$ ile yüzeysel çekirdeklenme ve tek boyutta büyüme iken, diğer tavlama sıcaklıklarında $n=2$ ile hacimsel çekirdeklenme ve tek boyutta büyüme ile kristalleşme gözlenmiştir. Cu-Pd-Pt model sistemi için elde edilen Avrami katsayısı değerleri ile RDF grafikleri birlikte incelenerek kristalleşme mekanizması hakkında çok daha açık fikirler elde edilebilir.

Şekil 3.78’de K4 model sistemine ait 700 K tavlama sıcaklığında $n=1$ Avrami katsayısına karşılık gelen yapının üç boyutlu atomik dağılım gösterimini vermektedir. Atomların dağılımı düzensiz bir şekilde oluşmuş ve kristal düzlemleri belirgin halde değildir. Sadece yüzeysel bir çekirdeklenme meydana gelmiştir.



Şekil 3.78. K4 model sistemine ait 700 K tavlama sıcaklığında $n=1$ Avrami katsayısına karşılık gelen yapının üç boyutla atomik dağılım gösterimleri

Şekil 3.78’de K4 yine model sistemine ait 700 K tavlama sıcaklığında $n=3$ Avrami katsayısına karşılık gelen yapının üç boyutla atomik dağılım gösterimini vermektedir. Atomların dağılımı daha düzenli olduğu görülmektedir ve kristal düzlemleri belirgin hale gelmiştir. Yüzeysel çekirdeklenme ve üç boyutta büyümenin gerçekleştiği sonucuna varılabilir. Kristal düzlemlerin daha rahat görülebilmesi için atomların boyutları düşürülmüştür.



Şekil 3.79. K4 model sistemine ait 700 K tavlama sıcaklığında $n=3$ Avrami katsayısına karşılık gelen yapının üç boyutla atomik dağılım gösterimleri

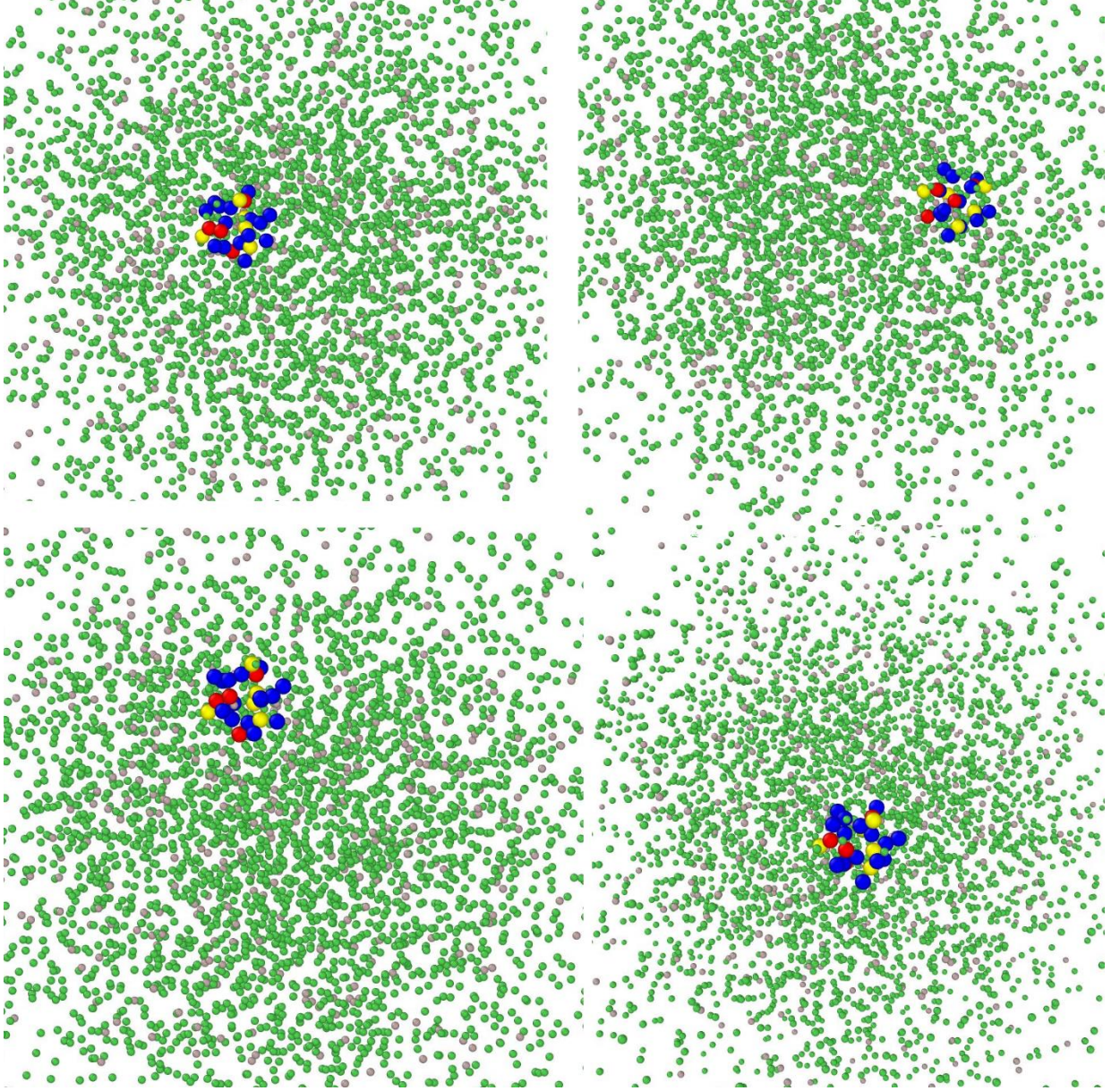
Çizelge 3.6. Bakırın farklı konsantrasyonlarında Cu-Pd-Pt model sistemleri için Polyhedron türü topakların sayısının tavlama sıcaklıklarına göre değişimi

(400K)	Bernal	FK	İdicos	Deficos	Kristal
K1	3	65	50	711	12
K2	0	53	50	611	14
K3	7	78	59	792	15
K4	2	75	65	724	18
K5	2	40	50	610	25
(500K)					
K1	4	68	51	713	18
K2	1	54	52	612	22
K3	9	81	59	791	27
K4	3	77	67	725	49
K5	3	42	51	612	58
(600K)					
K1	4	68	52	714	19
K2	1	55	53	613	23
K3	8	82	61	793	27
K4	2	78	67	726	54
K5	3	42	52	613	68
(700K)					
10	8	75	58	718	23
20	5	83	65	751	29
30	12	88	69	789	33
40	15	95	72	924	63
50	21	111	77	1010	82

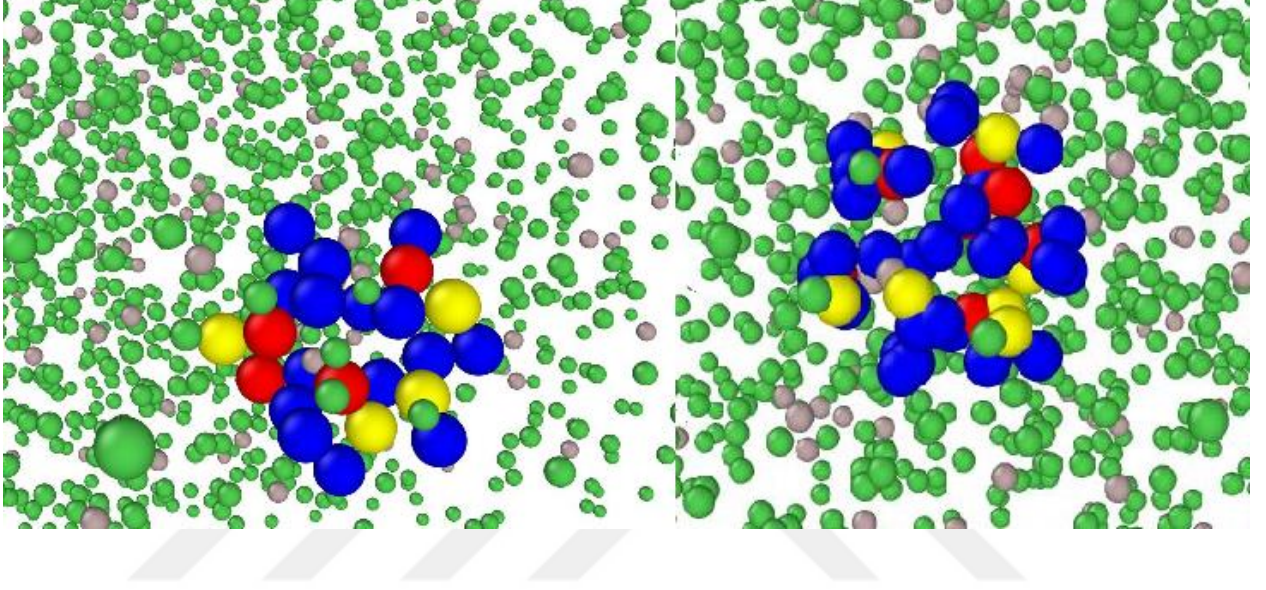
Çizelge 3.6’da bakırın farklı konsantrasyonlarında Cu-Pd-Pt model sistemleri için farklı türde polyhedron topakların sayısının tavlama sıcaklıklarına göre değişimi verilmiştir. Buna göre, tüm polyhedronların sayısı tavlama sıcaklığı arttıkça artmaktadır. Bununla birlikte, Bernal, FK, ideal icos (idicos), defekte olmuş icos (deficos) türü polyhedronların sayısı Pt ve Pd’nin yada Cu’nun konsantrasyon oranı ile orantısız bir değişim göstermektedir. Fakat kristal türü polyhedron sayısı bakırın konsantrasyonu arttıkça düzenli bir artış eğilimi göstermektedir. Şekil 3.36’da 500 K tavlama sıcaklığında elde edilen RDF eğrileri incelendiğinde, K4 model sistemine ait eğriler en keskin pik şiddetine sahip olduğu görülmektedir. Aynı zamanda bu sıcaklıkta ve K4 sistemin için Avrami katsayısı da 3 olarak hesaplanmıştır. Bu sonuç, iyi bir kristalleşme meydana geldiğinin göstergesidir. K4 sistemi için polyhedronların sayısı incelendiğinde, 400 K

tavlama sıcaklığında elde edilen kristal türü polyhedronların sayısı ile karşılaştırıldığında 18'den 49 sayısına hızlı bir artış söz konusudur. Kristal türü polyhedron sayısındaki bu hızlı artışın bu kristalleşmeye etkisi olduğu sonucuna varılabilir. Ayrıca kristal türü polyhedron sayısı K4 model sistemi için 500 K tavlama sıcaklığında ani artış göstermiştir. Model sistemlere ait elde edilen RDF grafikleriyle birlikte incelendiğinde ise kristalleşme piklerinin en yüksek olduğu yapılar, 700 K tavlama sıcaklığında K1 ve K3, 500 K tavlama sıcaklığında K4 olarak görülmektedir. Tüm model sistemler için RDF eğrileri incelendiğinde, 700 K tavlama sıcaklığında kristalleşmenin meydana geldiği görülmektedir. Polyhedron türü topaksı yapıların en çok arttığı tavlama sıcaklığı ise 700 K'dir. 700 K tavlama sıcaklığında tüm model sistemler için bütün polyhedron topaklarının sayısı en fazla değerini almaktadır. Özellikle, en yüksek polyhedron sayısı değerlerine K5 model sisteminde 700 K tavlama sıcaklığında ulaştığı görülmektedir.

Şekil 3.79, K4 sistemi içerisinde farklı bölgelerde meydana gelen polyhedronların atomik olarak gösterimini vermektedir. 500 K sıcaklıkta K4 sistemi için Avrami katsayısı $n=3$ olarak hesaplanmış ve RDF eğrilerinden en keskin kristal pikleri elde edilmiştir. Şekil incelendiğinde, sistem içinde farklı türde polyhedronların meydana geldiği veya bir arada bulunduğu görülmektedir. Bu durum sistem içerisinde farklı türde polyhedronların bir araya gelerek küçük yapıda embriyoları oluşturduğu şeklinde yorumlanmıştır. Embriyoların da birlikte topaklar oluşturup kritik yarıçapa ulaşarak çekirdeklenmeleri meydana getirdiği ve böylece büyüme olayı gerçekleşerek ideal kristal yapıyı oluşturduğu düşünülmektedir. Şekil 3.80'de ise K5 sisteminde meydana gelen farklı türde bir araya gelmiş polyhedronların görüntüsü verilmektedir.



Şekil 3.80. 500 K sıcaklıkta K4 sistemi içerisinde farklı bölgelerde meydana gelen polyhedronların atomik olarak gösterimi



Şekil 3.81. K5 sisteminde bir araya gelen farklı türdeki polyhedronların oluşturduğu atomik topaklar (diğer atomların boyutları küçültülmüştür)

4. SONUÇ VE ÖNERİLER

Bu tez çalışmasında, farklı Pd ve Pt konsantrasyonları oluşturularak Cu-Pd ve Cu-Pt ikili alaşımları ile Cu-Pd-Pt üçlü alaşımı moleküler dinamik yöntem kullanılarak modellenmiştir. Atomik etkileşimler Gömülmüş Atom Metodu (GAM) ile hesaplanmış ve model sistemler faz uzayında dengelenmiştir. Modellemenin doğruluğunun tespiti amacıyla modelleme sonucu elde edilen bazı fiziksel sonuçların deneysel veriler ile uyumlu olduğu belirlenmiştir

A- İkili model alaşım sistemleri

1. Pt ve Pd gibi iki önemli metalik sistemin Bakır (Cu) gibi fiziksel özellikleri oldukça önemli bir metal ile alaşımlar oluşturulmuştur. Cu-Pd ve Cu-Pt alaşımları farklı oranlarda oluşturulmuştur. Malzemeler, süper örgü noktalarına yerleştirilerek yapılar oluşturulmuştur. 4000 atomlu ikili alaşım sistemleri bakır için dört farklı kompozisyon oranı oluşturularak modellenmiştir. $\text{Cu}_{90}\text{Pt}_{10}$, $\text{Cu}_{80}\text{Pt}_{20}$, $\text{Cu}_{70}\text{Pt}_{30}$, $\text{Cu}_{60}\text{Pt}_{40}$ ve $\text{Cu}_{90}\text{Pd}_{10}$, $\text{Cu}_{80}\text{Pd}_{20}$, $\text{Cu}_{70}\text{Pd}_{30}$, $\text{Cu}_{60}\text{Pd}_{40}$. Burada Cu ağırlıklı alaşım sistemleri tercih nedeni amorf yapıdan kristalleşme sürecinde Pt ve Pd etkisinden ziyade Cu etkisinin incelenmek istenmesidir.
2. Pt ve Pd gibi iki önemli metalik sistemin Bakır (Cu) gibi fiziksel özellikleri oldukça önemli bir metal ile alaşımların oda sıcaklığından itibaren deneysel olarak bilinen erime sıcaklıklarına kadar ısıtılarak erime sıcaklıkları MD yöntemle belirlenmeye çalışılmıştır.
3. Bu erime sıcaklıklarında model sistemlerde iki farklı MD adımı bekletilerek soğutulup amorf faza dönüşümü gerçekleştirildi. Amorf fazda ($T_2 - T_1 = \Delta T$) 1000 MD adımı bekletilerek sistemlerin kristal faza dönüşüp dönüşmediği incelendi. Sistemlerin tespit edilen erime sıcaklıklarından itibaren 10^3 K/s soğutma hızı uygulanarak 300 K sıcaklık değerine kadar soğutma işlemi gerçekleştirilmiştir.
4. Amorf fazda 50000 MD adımı bekletilme sonucunda model alaşım sistemlerinin (Cu-Pd ve Cu-Pt) herhangi bir kristal faza dönüşüme uğramadığı RDF ile analiz edildi. Daha sonra ise 500000 MD adımı bekletilerek amorf fazdan kristal faza dönüşümün gerçekleştiği RDF ile analiz edildi. Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemlerinde kristal bağlı çift sayısı (1441, 1421, 1422 ve 1661) %10 civarında değerler almıştır.

5. Model sistemlere ait amorf bağılı çift sayısından 1551, ise ortalama %20 civarında toplam değerlere ulaşmıştır, sıvı fazda ve yüksek sıcaklıklarda minimum değerde olduğu belirlenmiştir. Düşük sıcaklarda ise 1541 ve 1431 bağılı çiftlerin sayısı en yüksek değerlerine ulaşmıştır. Bu sonuç, defekte olmuş icos türü topakların amorf fazda daha çok yaygın olduğunu göstermektedir. Amorf oluşturma yeteneği ideal ICOS türü ve buna bağılı olarak 1551 bağılı çiftlerin sayısı ile orantılıdır. Bu durumda, amorf yapı oluşturma yeteneğinin en fazla Cu₉₀Pd₁₀ alaşımında gözlemlendiği görülmektedir.
6. Model sistemler için tavlama süreci şu aşamalardan meydana gelmektedir.
1. aşamada, sıvı fazdan itibaren 3×10^{13} K/s soğutma hızı uygulanarak model sistemlerin amorf faz dönüşümü sağlandı. Amorf fazdan itibaren sıcaklıklar sırasıyla 400 K, 500 K, 600 K ve 700 K sıcaklıklarına ulaştırıldı.
 2. aşamada, amorf fazdan itibaren 50000 MD adımı bekletilerek kristalleşmenin olup olmadığı gözlemlendi.
 3. aşamada, 50000 MD adımında kristalleşme olayı gözlenmediğinden bekletme süresi 500000 MD adım olarak işlem tekrar edildi.
 4. aşamada, 500000 MD adımında kristalleşme gözlemlendiğinden kristalleşme özelliklerini belirleyen Avrami katsayıları tüm tavlama sıcaklıklarında hesaplandı. Son adımda ise yine tüm tavlama sıcaklıklarında meydana gelen polyhedron türü topakların kristalleşme mekanizmasına etkisi incelendi.
7. Tavlama sürecinde Cu-Pd model sistemi için 400 K, 500 K ve 600 K tavlama sıcaklıklarında kristal yapıdaki bağılı çiftlerin toplam sayısının zamanla değişimleri ele alındığında düşük tavlama sıcaklığında daha geç kristalleşme gerçekleştiği gözlemlenmiştir. Genel anlamda, tavlama sıcaklığı arttıkça kristalleşmenin daha kolay meydana geldiği anlaşılmıştır.
8. Cu-Pt model sisteminde Cu₆₀Pt₄₀ için 400 K tavlama sıcaklığının dışında tüm konsantrasyon değerlerinde kristalleşme gerçekleşmiş özellikle yüksek tavlama sıcaklıklarında ise tam kristalleşme görülmektedir. Veriler RDF eğrilerinden elde edilen sonuçlar ile karşılaştırıldığında uyumludur. 400 K tavlama sıcaklığında Cu₆₀Pt₄₀ model sistemi için en son zamanda kristal bağılı çiftlerin sayısı yaklaşık %30 civarında iken

Cu₈₀Pt₂₀ model sistemi için 500 K tavlama sıcaklığında kristal bağlı çiftlerin sayısı yaklaşık %45 civarındadır.

9. RDF eğrilerinin pik şiddetlerinin Cu-Pt model sistemlerinde daha belirgin ve şiddetli olduğu belirlenmiştir. Tüm model alaşım sistemleri için Pt katkılı alaşımlar Pd katkılı alaşımlara göre daha önceden kristalleşmeye başladığı gözlenmektedir. Bir başka ifadeyle, alaşım sistemine Pt katkısı amorf fazdan itibaren yeniden kristalleşme sürecini azaltmıştır.
10. Avrami katsayılarını hesaplamak için hacim kesitindeki değişim göz önüne alınarak, $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre grafiğinin eğimi alınmıştır ve deneysel olarak elde edilen sonuçlarda, Avrami katsayısı (n) nin alacağı değerler 1 ile 4 arasında olmaktadır. Cu-Pt ve Cu-Pd model sistemine ait elde edilen Avrami katsayı değerleri, Çizelge 4.2 ve 4.3'de verilmiştir.
11. Buna göre, Cu₉₀Pd₁₀ model sistemi için 400 K, 500 K ve 600 K sıcaklıklarının hepsinde hacimsel ve iki boyutta büyüme (n=3) gözlenirken, Cu₈₀Pd₂₀ model sistemleri için sadece 600 K tavlama sıcaklığında Avrami katsayısı n=3 değerini alarak iki boyutta hacimsel kristalleşmenin olduğu görülmektedir. Cu₇₀Pd₃₀ model sisteminde ise (n=4) Avrami katsayısı ile 500 K sıcaklığında hacimsel ve üç boyutta büyümenin görüldüğü tek model sistem olmuştur. Cu₆₀Pd₄₀ alaşım sisteminde 600 K tavlama sıcaklığı değerinde n=3 değerini alarak iki boyutta hacimsel büyüme gözlenmiştir.
12. Cu₉₀Pt₁₀ model sistemleri 500 K ve 600 K tavlama sıcaklıklarında n=3 değeri iken, 400 K tavlama sıcaklığı için n=4 değerini alarak hacimsel olarak üç boyutta büyüme gerçekleşmiştir. Cu₈₀Pt₂₀ model sistemleri için genelde kristalleşme değerlerinin çok zayıf olduğu görülmüş sadece 600 K sıcaklığında n=2 hacimsel tek boyutta büyüme gerçekleşmiştir. Cu₇₀Pt₃₀ model sistemi ele alındığında ise 400 K ve 600 K tavlama sıcaklığında n=4 değeriyle hacimsel üç boyutta büyüme gözlenmiştir. Cu₆₀Pt₄₀ model sisteminde en yüksek değerler 500 K ve 600 K tavlama sıcaklıklarında n=2 değeriyle sonuçlanmıştır.
13. Cu-Pd ve Cu-Pt model sistemleri için elde edilen Avrami katsayısı değerleri ile RDF grafikleri beraber ele alındığında kristalleşme mekanizması hakkında çok daha anlaşılır ve net fikirler elde edilebilir.

- 14.** Kristalleşme sürecinde atomik grupların bir araya gelerek faz içinde çekirdekleri meydana getirmesi ve bu çekirdeklerin oluşturduğu grupların kritik bir yarıçapa ulaşması kristalleşmenin temelini oluşturur. Kritik yarıçapa sahip olan topakların sayısı artmış ve kristalin büyüyerek kararlı kristal fazın oluşumunu sağlamıştır.
- 15.** Cu-Pd sisteminin 400 K sıcaklıkta bakırın %60, %70 ve %80 oranında olduğu yapıların kristalleşme sürecini tamamlamadan amorf fazda kaldığı ve diğer sıcaklıklardaki polyhedronların sayılarından özellikle defekte olmuş icos türü polyhedronların sayısının düşük kaldığı gözlenmektedir. Cu-Pd alaşımının Pd'nin belirli bir konsantrasyon aralığında kısa-mesafe düzeninin meydana getiren yapıların varlığının daha fazla olduğunun sonucunu verdiği Bölüm 4'te açıklanmıştır. Bu durum Cu-Pd nin kristalleşme meydana gelmeden amorf fazda kararlı kalmasının bir göstergesidir.
- 16.** Cu-Pt model sistemi için 600 K sıcaklıkta $\text{Cu}_{70}\text{Pt}_{30}$, $\text{Cu}_{80}\text{Pt}_{20}$ ve $\text{Cu}_{90}\text{Pt}_{10}$ sistemlerinin hızlı bir kristalleşmiştir, aynı sıcaklıktaki polyhedronların sayısı ile karşılaştırıldığında, defekte olmuş icos türü polyhedronların sayısında bakırın %60 oranından sonra çok ani artmıştır. 400 K sıcaklıkta iken 873 olan değerler 600 K 1273 değerine ulaşmış ve defekte olmuş icos türü polyhedronların etkisini açıkça göstermesini sağlamıştır.
- 17.** Cu-Pd model sistemine ait yapılarda Frank-Kasper (FK) ve Bernal polyhedron türlerinin bakır konsantrasyonları arttıkça arttığı görülmektedir. İdeal icos polyhedron türü ise konsantrasyona göre çok az da olsa artış eğiliminde olduğunu gösterirken Kristal polyhedron ise ancak %90 Cu model sisteminde %10 değerine ulaşarak en yüksek değerindedir.
- 18.** Cu-Pt model sistemi; Frank-Kasper (FK) ve ideal icos polyhedron türü ise tavlama süreçlerinde tüm konsantrasyon değerleri için artış göstermiştir. Bernal türü polyhedron ise sadece %80 ve %90 olan konsantrasyon oranlarında yaklaşık 15'e ulaşarak varlığını göstermiştir. Kristal polyhedron türü ise 600 K tavlama sıcaklığında en yüksek değeri olan 40 sayısına ulaşmıştır.

A- Üçlü model alaşım sistemleri

Cu, Pt ve Pd model sistemleri, farklı konsantrasyon değerlerine göre oluşturulmuştur. Yapılara ait kodlar oluşturularak tanımlamalar kısaltılmıştır. Buna göre yapılar; K1= Cu₅₀Pt₁₀Pd₄₀ K2= Cu₅₀Pt₄₀Pd₁₀, K3= Cu₇₀Pt₁₀Pd₂₀, K4= Cu₇₀Pt₂₀Pd₁₀, K5= Cu₉₀Pt₁₀Pd₁₀. Yapılar oluşturulduktan sonra 300 K sıcaklıktan başlayarak 2000 K sıcaklığına kadar bir ısıtma süreci uygulanmış ve sistemlerin erime sıcaklıkları tespit edilmiştir. Daha sonra amorf fazı elde etmek amacıyla sıcaklık hesaplanan erime sıcaklıklarından itibaren başlayarak 3×10^{13} K/s soğutma hızı ile 100 K sıcaklık azaltılması ile 300 K'ne kadar azaltılmıştır. 500000 MD adımı ile farklı sıcaklık değerlerinde tavlama işlemi gerçekleştirilmiştir. Tavlama işlemiyle model sistemlerin amorf fazdan kristal faza dönüşüm süreçleri gözlenmiştir.

1. Çizelge 3.4'de Cu-Pd-Pt model sistemleri için potansiyel enerjinin sıcaklıkla değişiminden elde ettiğimiz erime sıcaklıklarının bakırın konsantrasyonuna göre değişimi gösterilmiştir.
2. Şekil 3.60, 3.61 3.62, 3.63 ve 3.64'de tavlama sürecinde model sistemler için farklı tavlama sıcaklıklarına karşılık RDF eğrilerinin değişimi 400 K, 500 K, 600 K ve 700 K olarak verilmiştir.
3. K1 ve K2 model sistemleri için sadece 300 K sıcaklığından 700 K sıcaklığına çıkarılan tavlama sıcaklığından model sistemin kristal örgü düzenine geçtiği açıkça gözlenmektedir, diğer tavlama sıcaklığına ait pikler zayıftır.
4. K3 model sisteminde ise 4 farklı tavlama sıcaklığı değeri için de amorf fazın zamanla kristal faza geçiş eğiliminde olduğu pik şiddetlerinden gözlenmektedir. 700 K tavlama sürecinde pik şiddetlerinin keskinliği hızla artarak sistemin kristal örgü düzeni varlığı açıkça ortadadır.
5. K4 model sistemi incelendiğinde diğerlerinden farklı olarak en yüksek kristalleşme sıcaklığının 500 K olduğu tespit edilmiştir.
6. K5 model sisteminde diğer sistemlerden farklı olarak 400 K sıcaklığında süreç diğer tavlama sıcaklıklarına göre daha yavaş ilerlemiştir.
7. 700 K tavlama sıcaklığında ikili sistemlerin sıvı faza dönüştüğü belirlenirken, üçlü model sistemde ise 700 K sıvı faza dönüşüm gözlenmemiştir.
8. 400 K, 500 K, 600 K ve 700 K tavlama sıcaklıklarında kristal bağlı çiftlerin toplam sayısının zamanla değişimi Şekil 4.55, 4.56, 4.57, 4.58 ve 4.59'da gösterilmiştir. İlgili değişim noktaları Bölüm 4'te açıklanmıştır.
9. Cu-Pd-Pt model sistemleri farklı tavlama sıcaklıkları için $\ln[-\ln(1-x)]$ 'nin $\ln(t)$ 'ye göre grafikleri Şekil 4.63, Şekil 4.64, Şekil 4.65 ve Şekil 4.66'de gösterilmiştir.

10. Cu-Pd-Pt model sistemleri bakırın farklı konsantrasyonlarında için hacim kesitinin (x) zamanla değişiminden elde edilen eğim (Avrami katsayısı) değerleri Çizelge 4.5’de listelenmiştir. Elde edilen Avrami katsayısı değerleri ile RDF grafikleri birlikte incelendiğinde daha net şekilde durum analizi yapılmıştır.
11. Cu-Pd-Pt model sistemleri için çizelge 4.6’da bakırın farklı konsantrasyonlarında farklı türde polyhedron topakların sayısının tavlama sıcaklıklarına göre değişimi verilmiştir. Buna göre tüm polyhedronların sayısı tavlama sıcaklığının artmasıyla artmaktadır. Bununla birlikte, Bernal, FK, idicos, deficos türü polyhedronların sayısı Pt ve Pd’nin yada Cu’nun konsantrasyon oranı ile orantısızdır. Ancak kristal türü polyhedron sayısı bakırın konsantrasyonu arttıkça düzenli şekilde artış eğilimindedir.
12. 500K tavlama sıcaklığında elde edilen RDF eğrileri incelendiğinde, K4 model sistemine ait eğriler en keskin pik şiddetine sahip olduğu görülmektedir. Aynı zamanda bu sıcaklıkta ve K4 sistemin için Avrami katsayısı da 3 olduğu için iyi bir kristalleşme meydana geldiğinin kanıtıdır.
13. K4 sistemi için 400 K tavlama sıcaklığında elde edilen kristal türü polyhedronların sayısı 18 den 49’a hızlı şekilde artmıştır. Kristal türü polyhedron sayısındaki bu hızlı artışın bu kristalleşmeye etkisi olduğu söylenebilir.
14. Kristalleşme piklerinin en yüksek olduğu yapılar 700 K tavlama sıcaklığında K1 ve K3, 500 K tavlama sıcaklığında K4 olarak anlaşılmıştır. Tüm model sistemler için RDF eğrileri incelendiğinde, 700 K tavlama sıcaklığında kristalleşmenin meydana geldiği görülmektedir. Polyhedron türü topaksı yapıların en çok arttığı tavlama sıcaklığı ise 700 K’dir. 700 K tavlama sıcaklığında tüm model sistemler için bütün polyhedron topaklarının sayısı en fazla değerini göstermektedir. Özellikle, en yüksek polyhedron sayısı değerlerine K5 model sisteminde 700 K tavlama sıcaklığında var olduğu görülmüştür.
15. 500 K sıcaklıkta K4 sistemi için Avrami katsayısı $n=3$ olarak hesaplanmıştır. Sistem içinde farklı türde polyhedronların meydana geldiği veya bir arada bulunduğu görülmüştür. Buna göre sistem içerisinde farklı türde polyhedronların bir araya gelerek küçük yapıda embriyoları oluşturduğu anlaşılmıştır. Embriyoların da bir grup oluşturup kritik yarıçapa ulaşarak çekirdeklenmeleri meydana getirdiği ve böylece büyüme olayı gerçekleşerek ideal kristal yapıyı oluşturduğu varsayılmaktadır.

5. KAYNAKLAR

- [1] Sauvage F, Schymkowitz J, Rousseau F, Schmidt BZ, Remaut K, Braeckmans K, De Smedt SC, 2020. Nanomaterials to avoid and destroy protein aggregates. *Nano Today*, 100837.
- [2] Wang X, Dong S, Ashour A, Zhang W, Han B, 2020. Effect and mechanisms of nanomaterials on interface between aggregates and cement mortars. *Construction and Building Materials*, 240: 117942.
- [3] Jana M, Xu R, Cheng XB, Yeon JS, Park JM, Huang JQ, Park HS. 2020. Rational design of two-dimensional nanomaterials for lithium–sulfur batteries. *Energy & Environmental Science*.
- [4] Kazanc S, Ozgen S, Adiguzel O, 2003. Pressure Effects on Martensitic Transformation under Quenching Process in a Molecular Dynamics Model of NiAl Alloy, *Physica B*. 334 :375-381.
- [5] Hui L, Xiufang B, Jingxiang Z, 1999. Computation of liquid Cu₇₀Ni₃₀ alloy structure using EAM in rapid cooling and heating process. *Mat.Sci. and Eng. A*,271: 116-121.
- [6] Celik FA, Yildiz A, 2015. Molecular dynamics simulation of crystallization kinetics and homogenous nucleation of Pt–Rh alloy. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 415: 36-41.
- [7] Liu L, Wu ZF, Zhang J, 2002. Crystallization kinetics of Zr₅₅Cu₃₀Al₁₀Ni₅ bulk amorphous alloy. *Journal of Alloys and Compounds*, 339: 90–95.
- [8] Maksoud, Elgarahy MA, Farrell AM, Ala'a C, Rooney H, DW, Osman AI. 2020. Insight on water remediation application using magnetic nanomaterials and biosorbents. *Coordination Chemistry Reviews*, 403: 213096.
- [9] Kasyanova AV, Lyagaeva JG, Farlenkov A S, Vylkov A I, Plaksin SV, Medvedev DA, Demin AK, 2020. Densification, morphological and transport properties of functional La_{1–x}BaxYbO_{3–δ} ceramic materials. *Journal of the European Ceramic Society*, 40(1): 78-84.
- [10] Zadpoor AA. 2020. Meta-biomaterials. *Biomaterials Science*, 8(1): 18-38.
- [11] Otitoju TA, Okoye PU, Chen G Li Y, Okoye MO, Li S. 2020. Advanced Ceramic Components: Materials, Fabrication, And Applications. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*.
- [12] Nascimento CO, Mattos BB, Fialho RL, Cabral-Albuquerque EC, Benites VM, 2020. The effect of different ceramic materials to improve hardness of organomineral fertilizer granules. *International Journal of Applied Ceramic Technology*, 17(1):153-161.

- [13] Kazanc S, 2007. Molecular dynamics study of pressure effect on crystallization behavior of amorphous CuNi alloy during isothermal annealing. *Physics Letters A*, 365: 473-477.
- [14] Garbacz H, Mizera J, Laskowski Z, Gierej M, 2011. Microstructure and mechanical properties of a Pt–Rh alloy. *Powder Technology*, 208: 488–490.
- [15] Luyten J, De Keyzer J, Wollants P, Creemers C, 2009. Construction of modified embedded atom method potentials for the study of the bulk phase behaviour in binary Pt–Rh, Pt–Pd, Pd–Rh and ternary Pt–Pd–Rh alloys. *CALPHAD: Computer Coupling of Phase Diagrams and Thermochemistry*, 33: 370-376.
- [16] Rdzawski ZM, Stobrawa JP, 2004. Microstructure and properties of the new Pt–Rh based alloys for high-temperature applications. *Journal of Materials Processing Technology*, 153: 681–687.
- [17] Clay JP, Greeley JP, Ribeiro FH, Delgass WN, Schneider WF, 2014. DFT comparison of intrinsic WGS kinetics over Pd and Pt. *Journal of Catalysis*, 320: 106–117.
- [18] Yuge K, Seko A, Kuwabara A, Oba F, Tanaka I, 2006. First-principles study of bulk ordering and surface segregation in Pt–Rh binary alloys. *Phys. Rev. B.*, 74: 174202.
- [19] Celik FA, 2015. The investigation of nucleation rate and Johnson–Mehl–Avrami model of Pt–Pd alloy using molecular dynamics simulation during heat treatment processes. *Journal of Alloys and Compounds*, 632: 116-121.
- [20] Belyakova OA, Slovokhotov L, 2003. Structures of large transition metal clusters. *Russian Chemical Bulletin*, 52: 2299-2327.
- [21] Qi Y, Çağın T, Johnson WL, Goddard III. WA, 2001. Melting and crystallization in Ni nanoclusters: The mesoscale regime. *J. Chem. Phys.*, 115: 385-394.
- [22] Zhu X, Chen K, 2005. Molecular dynamics simulation of homogeneous nucleation of KBr cluster. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 66: 1732-1738.
- [23] Hui L, Guanghou W, Jijun Z, Xiufang B, 2002. Clusters structures and dynamics of liquid aluminum under cooling conditions. *American Institute of Physics*, 18: 491-498.
- [24] Wang Y, Dellago C, 2003. Structural and morphological transitions in gold nanorods: A computer simulation study. *J. Phys. Chem. B.*, 107: 9214-9219.
- [25] Ozgen S, Duruk E, 2004. Molecular Dynamics Simulation of Solidification Kinetics of Aluminium Using Sutton-Chen Version of EAM. *Materials Letters*, 58: 1071-1075.
- [26] Desgranges C, Delhommelle J, 2009. Molecular simulation of the nucleation and growth of gold nanoparticles. *J. Phys. Chem*, 113: 3607- 3611.

- [27] Wang Y, Teitel S, Dellago C, 2004. Melting of icosahedral gold nanoclusters from molecular dynamics simulations. *The Journal of Chemical Phys.*, 122: 1-14.
- [28] Zhu X, You X, Zhu D, Zhou Z, 1999. Molecular dynamics study of phase transition and nucleation in supercooled clusters of potassium iodide. *Chemical Physics*, 250: 303-309.
- [29] Zhu JB, Wang S, Qiao MH, Wang WN, Fan KN, 2007. First-principle molecular dynamics study of the structural and electronic properties of liquid and amorphous Ni–Al alloys. *J. Non-Cryst Solids*, 27 : 2638-2645.
- [30] Ding X, Suzuki T, Ren X, Sun J, Otsuka K, 2006. Precursors to stress-induced martensitic transformations and associated superelasticity: Molecular dynamics simulations and an analytical theory. *Phys. Rev. B*. 74 : 104111,1-10.
- [31] Kazanc S, Ozgen S, 2008. Thermal and pressure-induced martensitic phase transformations in a Ni–Al alloy modelled by Sutton–Chen embedded atom method, *Mol. Simulat.* 34 : 251-257.
- [32] Yu Da-Qi, Chen M, and Xiu-Jun Han, 2005. Structure analysis methods for crystalline solids and supercooled liquids. *Physical Review E*, 72: 051202-1.
- [33] Tanaka H, 2005. Relationship among glass-forming ability, fragility, and short-range bond ordering of liquids. *J. Non-Cryst. Solids*, 351: 678-690.
- [34] Zhang F, Hui W, Zhang Y, Ren X, Zhang D, 2012. Molecular dynamics simulation for the rapid solidification process of MgO–Al₂O₃–SiO₂ glass–ceramics. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 538: 1465-1473.
- [35] Halicioğlu T, Bauschlicher CW, 1988. Physics of microcluster. *Rep.Prog.Phys.*, 51: 883-921.
- [36] Honeycutt JD, Andersen HC, 1987. Molecular dynamics study of melting and freezing of small Lennard-Jones clusters. *J. Phys. Chem.*, 91: 4950-4963.
- [37] Qi D, Wang WS, 1991. *Phys. Rev. B*, 44: 884.
- [38] Yu BY, Liang YC, Tian ZA, Liu RS, Gao TH, Xie Q, Mo YF, 2020. MD simulation on crystallization mechanisms of rapidly supercooled Fe-Ni alloys. *Journal of Crystal Growth*, 535: 125533.
- [39] Su Y, Mohr M, Wunderlich RK, Wang X, Cao Q, Zhang D, Jiang JZ. 2020. The relationship between viscosity and local structure in liquid zirconium via electromagnetic levitation and molecular dynamics simulations. *Journal of Molecular Liquids*, 298: 111992.

- [40] Abbas HG, Hahn JR, 2020. Crystallization mechanism of liquid tellurium from classical molecular dynamics simulation. *Materials Chemistry and Physics*, 240: 122235.
- [41] Pham AV, Fang TH, Tran AS, Chen TH, 2020. Effect of annealing and deposition of Cu atoms on Ni trench to interface formation and growth mechanisms of Cu coating. *Superlattices and Microstructures*, 139: 106402.
- [42] Celik FA, Kazanc S, Yildiz AK, Ozgen S, 2008. Pressure effect on the structural properties of amorphous Ag during isothermal annealing. *Intermetallics*, 16: 793-800.
- [43] Celik, FA, 2014. Molecular dynamics simulation of polyhedron analysis of Cu–Ag alloy under rapid quenching conditions. *Physics Letters A*, 378(30-31): 2151-2156.
- [44] Yang Y, Lin YA, Yan X, Chen F, Shen Q, Zhang L, Yan N, 2019. Cooperative Atom Motion in Ni–Cu Nanoparticles during the Structural Evolution and the Implication in the High-Temperature Catalyst Design. *ACS Applied Energy Materials*, 2(12): 8894-8902.
- [45] Zhang H, Ou X, Wei B, Ni S, Song M, 2020. Strain direction dependency of deformation mechanisms in an HCP-Ti crystalline by molecular dynamics simulations. *Computational Materials Science*, 172: 109328.
- [46] Sengul S, Celtek M, Domekeli U, 2020. The structural evolution and abnormal bonding ways of the $Zr_{80}Pt_{20}$ metallic liquid during rapid solidification under high pressure. *Computational Materials Science*, 172: 109327.
- [47] Davoodi J, Ahmadi M, 2010. Thermal properties of Cu–Pd alloy under high pressure. *Computational materials science*, 49(1): 21-24.
- [48] Yang F, Zhang Y, Liu PF, Cui Y, Ge XR, Jing QS, 2016. Pd–Cu alloy with hierarchical network structure as enhanced electrocatalysts for formic acid oxidation. *International Journal of Hydrogen Energy*, 41(16): 6773-6780.
- [49] Dai L, Zou S, 2011. Enhanced formic acid oxidation on Cu–Pd nanoparticles. *Journal of Power Sources*, 196(22): 9369-9372.
- [50] Banhart J, Kuentzler R, Pfeiler W, Christ T, Weinberger P, Voithländer J, 1991. Changes of the electronic structure of Cu–Pt due to order-disorder transitions. *Physical Review B*, 44(21): 11624.
- [51] Abe T, Sundman B, Onodera H, 2006. Thermodynamic assessment of the Cu–Pt system. *Journal of Phase Equilibria and Diffusion*, 27(1): 5-13.
- [52] Nahm TU, Han M, Oh SJ, Park JH, Allen JW, Chung SM, 1993. Influence of matrix element effects in determining the density of states from photoemission spectra: Cu–Pd alloy. *Physical review letters*, 70(23): 3663.

- [53] Luyten J, Schurmans M, Creemers C, Bunnik BS, Kramer GJ, 2007. Construction of modified embedded atom method potentials for Cu, Pt and Cu–Pt and modelling surface segregation in Cu₃Pt alloys. *Surface science*, 601(14): 2952-2961.
- [54] Davoodi J, Ahmadi M, Rafii-Tabar H, 2010. Molecular dynamics simulation study of thermodynamic and mechanical properties of the Cu–Pd random alloy. *Materials Science and Engineering: A*, 527(16-17): 4008-4013.
- [55] Kart SÖ, Erbay A, Kılıç H, Cagin T, Tomak M, 2008. Molecular dynamics study of Cu-Pd ordered alloys. *Journal of Achievements in Materials and Manufacturing Engineering*, 31(1): 41-46.
- [56] Haile JM, 1992. *Molecular Dynamics Simulation, Elementary Methods*, Wiley, Canada.
- [57] Andersen HC, 1980. Molecular dynamics simulations at constant pressure and temperature. *J. Chem. Phys.*, 72: 2384-2391.
- [58] Özgen S, 1997. Sayısal hesaplama yöntemlerinin şekil hatırlamalı alaşımlarda difüzyonsuz faz dönüşümlerine uygulanması. Doktora Tezi, Fırat Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Elazığ.
- [59] Parrinello M and Rahman A, 1980. Crystal structure and pair potentials: a molecular-dynamics study. *Phys. Rev. Lett.*, 45: 1196-1199.
- [60] Daw S, Baskes ML, 1984. Embedded-atom method: derivation and application to impurities, surfaces and other defects in metals. *Phys. Rev. B.*, 29: 6443-6453.
- [61] Kazanç S, 2004. Bakır bazlı alaşımlarda termoelastik dönüşümlerin moleküler dinamik benzetimi. Doktora Tezi, Fırat Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Elazığ.
- [62] Sutton AP, Chen J, 1990. Long-range Finnis-Sinclair potentials. *J. Philosophical Magazine Letter*, 61: 139-146.
- [63] Qi Y, Cagin T, Kimura Y, Goddard III WA, 1999. Molecular-dynamics simulations of glass formation and crystallization in binary liquid metals: Cu-Ag and Cu-Ni. *Phys. Rev. B.*, 59: 3527-3533.
- [64] Janot C, 1992. *Quasicrystals*, Claredon Press. Oxford, UK.
- [65] Mizutani U, 2001. *Introduction to The Electron Theory of Metals*, Cambridge University Press.
- [66] Eryürek M, 1996. Moleküler dinamik simülasyonları ile N_n (N=4,5,6) kümelerinin katı-sıvı faz geçişleri, Yüksek Lisans Tezi, Zonguldak Karaelmas Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Zonguldak.
- [67] Haberland H, 1994. *Clusters of Atoms and Molecules I*, Springer Verlag Berlin.

- [68] Morse MD, 1986. Clusters of transition-metal atoms, Chem Rev., 86, 1049-1109.
- [69] <https://quantbiolab.com/research/growth-mechanisms-and-stability-of-atomic-clusters> (Eriřim tarihi: 05.07.2020)
- [70] Yu W, Xiu-xi W, Hai-long W, 2006. Atomic simulation on evolution of nano-crystallization in amorphous metals. Tran. Nonferrous Met .Soc. China, 16: 327-331.
- [71] Celik FA, 2010. Geiř metali alařımlarında amorf yapıdan kristal yapıya dnüşümün moleküler dinamik yöntemi ile incelenmesi, Fırat Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü
- [72] Qi L, Feng S, Xu N, Ma M, Jing Q, Li G and Liu R, 2015. Materials Research, 18: 78.
- [73] R.S. Liu, K.J. Dong, J.Y. Li, A.B. Yu, R.P. Zou, 2005. Formation and description of nano-clusters formed during rapid solidification processes in liquid metals, 351: 612.
- [74]<https://cnx.org/contents/havxkyvS@12.2:EWNgnft@9/Lattice-Structures-in-Crystalline-Solids> (Eriřim tarihi :07.07.2020).
- [75] Porter DA and Easterling KE, 1982. Phase transformations in metals and alloys, Second edition, Chapman&Hall. T.J. Press (Padstow) Ltd, UK.
- [76] Smith WF, 2001. Malzeme bilimi ve mühendislięi, çeviri: Kınıkoęlu, N.G., üçüncü basımdan çeviri, İstanbul.
- [77] Herlach MD, 2004. Solidification and crystallization, Wiley-VCH Verlag, Weinheim, Germany.
- [78] Schuh CA, Hufnagel TC and Ramamurty U, 2007. Mechanical behavior of amorphous alloys, Acta Materialia, 55: 4067-4109.
- [79] Lu K, 1996. Nanocrystalline metals crystallized from amorphous solids: nonocrystallization, structure, and properties. Materials Science and Engineering, R16: 161-221.
- [80] Schmelzer JWP, 2005. Nucleation theory and applications, Wiley –Vch Verlag GmbH&Co., Weinheim.
- [81] Avrami M, 1939. Kinetics of Phase Change. I. General Theory, J.Chem Phys., 7: 1103-1112.
- [82] Johnson WA and Mehl KF, 1939. Trans Am. Inst. Min. Met. Eng.,135: 419.
- [83] Jang JSC, Tsao SF, Chang LJ, Chen GJ & Huang JC, 2006. Crystallization kinetics of the $Zr_{61}Al_{7.5}Cu_{17.5}Ni_{10}Si_4$ alloy using isothermal DSC and TEM observation. Journal of non-crystalline solids, 352(1): 71-77.
- [84] Xie X and Gao H, 1998. Calorimetric studies on the crystallization of $Li_2S-B_2O_3$ glasses. J .Non-Cryst. Solids, 240: 166-176.

- [85] Kaygılı Ö, 2005. Radyasyonun cam-seramik maddelerin kristalleşme ve mekanik özellikleri üzerine etkisi. Yüksek Lisans Tezi, Fırat Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Elazığ.
- [86] Akbarzadeh H, Shamkhali AN, Abbaspour M, Salemi S, Attaran Z, 2016. A molecular dynamics study of the effect of the substrate on the thermodynamic properties of bound Pt–Cu bimetallic nanoclusters. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 18(31): 21730-21736.
- [87] Popov AA, Shubin YuV, Plyusnin PE, Sharafutdinov MR, Korenev SV, 2019. *Journal of Alloys and Compounds* 777: 204-212.
- [88] Huang W, Opalka SM, Wang D, Flanagan TB, 2007. Thermodynamic modelling of the Cu-Pd-H system, *CALPHAD*, 31: 315-329.
- [89] Potekaev AI, Klopotov AA, Starostenkov MD, Klopotov VD, Markova TN & Morozov MM, 2013. Structure-phase states in the Cu-Pd-Pt system. *Steel in Translation*, 43(4): 184-187.
- [90] Nakahigashi K, 1986. L₁₁-Type Ordered Phase in Cu-Pt-Pd Ternary Alloys. *Japanese journal of applied physics*, 25(9R): 1284.
- [91] Stukowski A, 2010. Visualization and Analysis of Atomic Simulation Data with OVITO-the Open Visualization Tool. *Modelling Simulation Material. Science Engineering*, 18: 15012.
- [92] Skauvik I, Hansen JP, Matthey T, 2008. Dynamics of clustering in a binary Lennard-Jones material, *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.* 8: 665-676.
- [93] Watanabe D, 1959. On the Superstructure of the Ordered Alloy Cu₃Pd. HI. High Temperature Electron Diffraction Study, *J. Phys. Soc. Jp~*, 14(4): 436-443.

ÖZGEÇMİŞ

1988 Kütahya doğumluyum. Lisans eğitimimi Pamukkale Üniversitesi Fen-Edebiyat Fakültesi Fizik Bölünde tamamladım. Lisans eğitiminin bir yarıyılını Polonya-Katowice şehrinin Silesia Üniversitesinde okudum. Aynı dönem Pedagojik formasyon sertifikasını aldım. Yüksek Lisans eğitimini de Pamukkale Üniversitesi'nde tamamladım. Doktora eğitimime Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Fizik Anabilim dalında başladım, burada 3 yarıyıl ders dönemini ve ardından Doktora Yeterlilik Sınavını geçtikten sonra şehir değişikliği sebebiyle yatay geçiş ile Bitlis Eren Üniversitesinde tez dönemi ile devam ettim. Doktora eğitimi sırasında 5. Uluslararası ISPEC-Mühendislik ve Fen Bilimleri Kongresinde 2 adet farklı çalışma ile sözlü sunum gerçekleştirdim. Uluslararası hakemli makalelerimizden bazıları ise;

- Özdemir Kart, S., Tanboğa A. E., Söyleyici H.C., Ak, M. and Kart, H., H., “Theoretical study of the structure-properties relationship in new class of 2,5-di(2-thienyl)pyrrole compounds“, Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy, 137, 1174-1183, (2015).
- Çelik, F.Ahmet, Tanboğa Korkmaz, E., “The concentration effect of Pd and Pt-doped Cu on short range order formation in the rapid cooling process with molecular-dynamics simulation“, Bitlis Eren University Journal of Science and Tecnology 9(2) 83–87, (2019).
- Çelik, F.Ahmet, Tanboğa Korkmaz, E., “ Molecular dynamic investigaion of the effect of atomic polyhedrons on crystallization mechanism for Cu-based Cu-Pd and Cu-Pt alloys” Journal of Molecular Liquids, 314: 113636, (2020).

Şeklinde sunulmuştur. Yabancı dilim İngilizcedir.

Ebru TANBOĞA KORKMAZ