

T.C.
SAKARYA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**TEK KRİSTAL PEROVSKİT YAPILI SrTiO_3 İÇEREN
BNT ESASLI SERAMİK KOMPOZİT ÜRETİMİ VE
ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Nergis OĞUZ

Enstitü Anabilim Dalı : METALURJİ VE MALZEME
MÜHENDİSLİĞİ
Tez Danışmanı : Prof. Dr. Uğur ŞEN

Ağustos 2022

T.C.
SAKARYA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**TEK KRİSTAL PEROVSKİT YAPILI SrTiO_3 İÇEREN
BNT ESASLI SERAMİK KOMPOZİT ÜRETİMİ VE
ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Nergis OĞUZ

**Enstitü Anabilim Dalı : METALURJİ VE MALZEME
MÜHENDİSLİĞİ**

**Bu tez 18.08.2022 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından oybirliği / oyçokluğu ile
kabul edilmiştir.**

BEYAN

Tez içindeki tüm verilerin akademik kurallar çerçevesinde tarafımdan elde edildiğini, görsel ve yazılı tüm bilgi ve sonuçların akademik ve etik kurallara uygun tade sunulduğunu, kullanılan verilerde herhangi bir tahrifat yapılmadığını, başkalarının eserlerinden yararlanılması durumunda bilimsel normlara uygun olarak atıfta bulunulduğunu, tezde yer alan verilerin bu üniversite veya başka bir üniversitede herhangi bir tez çalışmasında kullanılmadığını beyan ederim.

Nergis OĞUZ

18.05.2022

TEŞEKKÜR

Yüksek lisans eğitimim boyunca değerli bilgi ve deneyimlerinden yararlandığım, çalışmanın planlanmasından yazılmasına kadar tüm aşamalarında yardımlarını esirgemeyen, beni yönlendiren değerli danışman hocam Prof. Dr. Uğur ŞEN'e teşekkürlerimi sunarım.

Laboratuvar olanakları konusunda anlayış ve yardımlarını esirgemeyen Arş. Gör. Mustafa DURMAZ'a teşekkür ederim.

Ve ailem maddi, manevi bu hayattaki en büyük destekçilerim... Her zaman yanımda olduğunuz için binlerce kez teşekkür ederim.

İÇİNDEKİLER

TEŞEKKÜR	i
İÇİNDEKİLER	ii
SİMGELER VE KISALTMALAR LİSTESİ	v
ŞEKİLLER LİSTESİ	vi
TABLolar LİSTESİ	vii
ÖZET	viii
SUMMARY	ix
BÖLÜM 1.	
GİRİŞ	1
BÖLÜM 2.	
LİTERATÜR ARAŞTIRMASI	3
2.1. Seramik Nedir?	3
2.1.1. Geleneksel seramikler	3
2.1.2. İleri teknoloji seramikler.....	4
2.2. Elektronik Seramikler	5
2.3. Dielektrik Özellikler.....	5
2.3.1. Dielektrik sabit	5
2.3.2. Dielektrik kayıp	6
2.3.3. Polarizasyon mekanizmaları.....	7
2.3.3.1. Eletronik polarizasyon	7
2.3.3.2. İyonik polarizasyon	8
2.3.3.3. Moleküler (Yönsel) polarizasyon	8
2.3.3.4. Uzay yükü polarizasyon.....	8

2.4. Perovskit Yapı	8
2.5. Kurşunsuz Seramikler ve Özellikleri.....	9
2.5.1. Bizmut sodium titanat (BNT).....	9
2.5.2. Baryum titanat (BT)	10

BÖLÜM 3.

MATERYAL VE YÖNTEM	11
3.1. Çalışmanın Amacı	11
3.2. BNT-ST Seramiklerin Üretiminde Kullanılan Tozlar	11
3.3. SrTiO_3 Tek Kristalin Üretilmesi	13
3.4. Tozların Hazırlanması	14
3.5. Kalsinasyon İşlemi	14
3.6. Şekillendirme ve Sinterleme	15
3.7. Metalografik Hazırlık	15
3.8. Hammadde ve Seramik Malzemelerin Karakterizasyonu	15
3.8.1. X- ışınları difraktometresi (XRD)	15
3.8.2. Mikroyapısal analizler (SEM)	15
3.8.3. Enerji saçılımlı spectral analizler (EDS)	16
3.8.4. Yoğunluk ölçümü	16
3.9. Seramik Malzemelerin Elektriksel Karakterizasyonu	16
3.9.1. Dielektrik özelliklerin ölçümü	16

BÖLÜM 4.

DENEYSEL SONUÇLAR VE TARTIŞMA	18
4.1. Ham Tozlara Ait SEM Analizi	18
4.2. Ham Tozlara Ait XRD Analizi	19
4.3. Tek Kristal Malzeme (SrTiO_3)' ye Ait SEM Analizi	19
4.4. Tek Kristal Malzeme (SrTiO_3)' ye Ait EDS Analizi	20
4.5. Tek Kristal Malzeme (SrTiO_3)' ye Ait XRD Analizi	21
4.6. Sinterleme Öncesi BNT Seramik Tozların SEM Analizi	21
4.7. Sinterlenmiş Numunelerin SEM Analizi	22

4.8. Sinterleme Sonrası Enerji Saçılımlı Spektral Analizler	24
4.9. Sinterlenmiş Numunelerin XRD Analizleri	26
4.10. Sinterlenmiş Numunelerin Yoğunluk Analizi	27
4.11. Dielektrik Analiz	28

BÖLÜM 5.

SONUÇLAR	30
----------------	----

KAYNAKLAR	31
-----------------	----

ÖZGEÇMİŞ	34
----------------	----

SİMGELER VE KISALTMALAR LİSTESİ

%	: Yüzde
°	: Derece
°C	: Derece Santigrat
°C/dk	: Derece Santigrat/dakika
Θ	: Theta
ϵ_0	: Vakumun Geçirgenliği (8.85×10^{-12} F/m)
E_r	: Malzeme geçirgenliği (F/m)
$\mu\text{C}/\text{cm}^2$	: Mikrokulomb/santimetrekare
MPa	: Mega Paskal
N/m^2	: Newton/metrekare
Mm	: Milimetre
Gr	: Gram
Hz	: Hert
kHz	: Kilohertz
F/m	: Farad/metre
T_c	: Curie sıcaklığı
C	: Kapasitans
A	: Alan
PZT	: $(1-x)\text{PbZrO}_3-x\text{PbTiO}_3$
BNT-ST	: $\text{Bi}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{TiO}_3 - \text{SrTiO}_3$
BKT-ST	: $\text{Bi}_{0,5}\text{K}_{0,5}\text{TiO}_3 - \text{SrTiO}_3$
KNN	: $\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3$

ŞEKİLLER LİSTESİ

Şekil 1.1. Bozulmamış bir perovskit yapısının birim hücresi (A ve B katyonlardır ve O oksijen anyonudur)	1
Şekil 2.1. Geleneksel seramik örneği tencere	4
Şekil 2.2. Jet motoru	4
Şekil 2.3. Uygulanan gerilim, şarj, kayıp ve toplam akımların vektörel gösterimi	7
Şekil 2.4. İyonik kutuplaşma. (a) Dengede olan iyon pozisyonları. (b)Elektrik alan sonucunda eksi	8
Şekil 2.5. Perovskit yapısının birim hücresi. A, B katyonlar ve O anyondur [4]	9
Şekil 3.1. Çalışmada takip edilen işlemlerin sıralaması	12
Şekil 4.1. Başlangıç tozlarına ait tozların 1000x büyütmedeki SEM görüntüleri a) Bi ₂ O ₃ , b) K ₂ CO ₃ , c) Na ₂ CO ₃ , d) SrO, e) TiO ₂	18
Şekil 4.2. Ham tozlara ait XRD sonuçları	19
Şekil 4.3. BNT-ST a) 5000x – 1000x büyütme, BNKT-ST b) 5000x – 1000x büyütme, BKT-ST c) 5000x – 1000x büyütme	20
Şekil 4.4. Sinter sonrası numunelerin SEM analizleri a) BNT-ST 5000x Büyütme b) BNT-ST 1000x Büyütme c) BNKT-ST 5000x Büyütme d) BNKT-ST 1000x Büyütme e) BKT-ST 5000x Büyütme f) BKT-ST 1000x Büyütme.....	22
Şekil 4.5. Sinterlenmiş numunelerin EDS analizleri a) BNT-ST b) BNKT-ST c) BKT-ST	24
Şekil 4.6. Sinterlenmiş numunelerin XRD diyagramları	25
Şekil 4.7. Artan frekansa bağlı dielektrik sabiti değişimi	27
Şekil 4.8. Frekansa bağlı değişen dielektrik kayıp değerleri	27

TABLÖLAR LİSTESİ

Tablo 3.1. Bileşimleri hazırlamak için kullanılan tozların özellikleri	11
Tablo 3.2. % ağırlıkça bileşim reçetesi (100 g için)	14
Tablo 4.1. Sinterlenmiş seramik numunelerin yoğunluk değerleri	26
Tablo 4.2. Artan frekanslara bağlı dielektrik sabit ve dielektrik kayıp değerleri ...	26

ÖZET

Anahtar kelimeler: Dielektrik, BNT, Perovskit

Kurşun (Pb) içeren perovskit yapılı seramikler çağımızda en çok tercih edilen seramiklerdir. Kurşun kirliliğinin doğamıza verdiği zarar günden güne artmaktadır ve insan sağlığını tehdit etmektedir. Çevresel sorunlara ilişkin küresel farkındalık, son yıllarda geleneksel Pb bazlı seramiklere bir alternatif olarak kurşunsuz piezo seramiklerin araştırılmasını teşvik etmiştir. Avrupa Birliğinin Kurşun Zirkonat Titanat (PZT) malzemeye alternatif olacak malzemeler üretilmesi isteği üzerine $\text{Bi}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{TiO}_3$ (BNT) ve $\text{Ka}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3$ (KNN) yeni bulunan malzemelerdir. Yapılan çalışmada BNT malzemeye SrTiO_3 tek kristal bileşiği ilave edilmiştir. SrTiO_3 tek kristal malzeme ilavesiyle BNT seramik malzemenin elektriksel özelliklerinde ki değişim incelenmiş, faz analizleri yapılmıştır. İlk olarak tek kristal malzeme olan SrTiO_3 üretilmiştir. Ardından BNT seramik malzemeyi oluşturan tozlarla sitokiyometrik oranlarda bir araya getirilmiştir. Bilyeli değirmen ile öğütme işlemi yapılmıştır. Öğütmenin ardından kurutma işlemi ve kalsinasyon işlemi uygulanmıştır. Bu işlemlerin ardından ikinci öğütme gerçekleştirilmiştir. Hazırlanan toz bileşimleri 200 MPa'lık basınç ile soğuk izostatik presleme işlemine tabii tutulmuştur. Pelet halindeki numuneler 1180 °C'de 1 saat 5 °C/dk sinterlenmiştir. Elde edilen seramik malzemede meydana gelen fazlar X-Işını Difraktometresi (XRD) ile analiz edilmiştir. Tane morfolojilerinde meydana gelen değişimler Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) kullanılarak incelenmiştir. Arşimet tekniği kullanılarak malzemelerin yoğunlukları ölçülmüştür. Sonuç kısmında çalışmaya dair elde edilen veriler değerlendirilmiştir.

PRODUCTION OF BNT BASED CERAMIC COMPOSITE CONTAINING SrTiO_3 SINGLE CRYSTAL PEROVSKITE AND INVESTIGATION OF THEIR PROPERTIES

SUMMARY

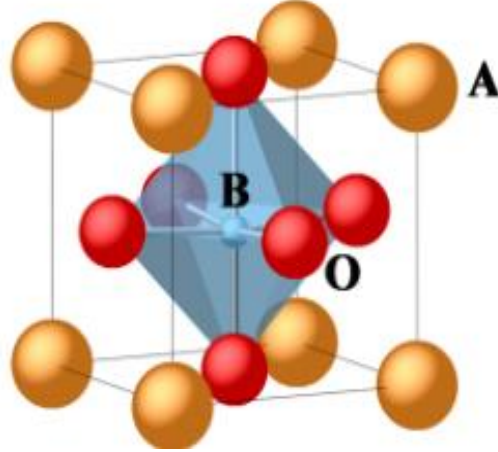
Keywords: Dielectric, BNT, Perovskite

Perovskite ceramics containing lead (Pb) are the most preferred ceramics in our time. The damage caused by lead pollution to our nature is increasing day by day and threatens human health. Global awareness of environmental issues has stimulated the search for lead-free piezo ceramics as an alternative to traditional Pb-based ceramics in recent years. $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ (BNT) and $\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3$ (KNN) are newly found materials upon the request of the European Union to produce materials that will be an alternative to Lead Zirconate Titanate (PZT). In this study, SrTiO_3 single crystal compound was added to the BNT material. With the addition of SrTiO_3 single crystal material, the change in the electrical properties of the BNT ceramic material was examined and phase analyzes were made. First, the single crystal material SrTiO_3 was produced. Then, BNT was combined with the powders that make up the ceramic material in stoichiometric ratios. Grinding was done with a ball mill. After grinding, drying process and calcination process were applied. After these processes, the second grinding was carried out. The prepared powder compositions were subjected to cold isostatic pressing with a pressure of 200 MPa. The pelleted samples were sintered at 1180 °C for 1 hour at 5 °C/min. The phases formed in the obtained ceramic material were analyzed by X-Ray Diffractometry (XRD). Changes in grain morphology were examined using Scanning Electron Microscopy (SEM). Densities of materials were measured using the Archimedeian technique. In the conclusion part, the data obtained from the study were evaluated.

BÖLÜM 1. GİRİŞ

Fiziksel etkileşimler sonucu dönüşüme uğrayan malzemelere akıllı malzemeler denir. Günümüzde mevcut olan akıllı malzemelere örnek; piezoelektrik malzemeler ve elektriksel boyut değiştiren malzemeler verilebilir [1].

Önemli piezoelektrik seramikler perovskit yapısında kristalleşir. Perovskit yapılı piezoelektrik malzemelerin diğer malzeme türlerine nazaran daha büyük bir piezoelektrik etkiye sahip oldukları söylenebilir [2]. Perovskit yapıda, yapısal atamlar oldukça simetrik olarak dağılmıştır. Bu durum birim hücrenin kolay deforme olmasına izin verir. Perovskit yapısındaki malzemelerin yaygın kimyasal formülü ABO_3 'tür. (Deforme olmayan ABO_3 yapısı Şekil 1.1.'de açıklanmıştır.)



Şekil 1.1. Bozulmamış bir perovskit yapısının birim hücresi (A ve B katyonlardır ve O oksijen anyonudur) [2].

İstenilen özelliklere sahip piezoseramikler, birçok önemli ve yararlı uygulamada kullanılan yüksek teknoloji ürünü gelişmiş malzemeler sınıfına aittir. Yakıt enjeksiyonu, ultrasonik motorlar, vb. örnek olabilir. Kurşun (Pb) içeren piezoelektrik seramikler bugünlerde Dünya'da en çok tercih edilen seramiklerdir. Piezoelektrik

malzemelerin çoğunluğu Pb (kurşun) içermektedir. Avrupa Birliğinin Kurşun Zirkonat Titanat (PZT) malzemeye alternatif olacak malzemeler üretilmesi isteği üzerine $\text{Bi}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{TiO}_3$ (BNT) ve $\text{Ka}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3$ (KNN) yeni bulunan malzemelerdir [3].



BÖLÜM 2. LİTERATÜR ARAŞTIRMASI

2.1. Seramik Nedir?

Metal ve metal olmayan elementlerin birbirleriyle iyonik ve/veya kovalent bağlarla bağlanarak oluşturdukları inorganik malzemelerdir. Yunanca pişirilmiş eşya anlamına gelen ‘keramos’ kelimesinden türetilmiştir [4]. Yüksek mukavemetli malzemelerdir. Genellikle porozite ihtiva ederler. Erozyon ve aşınmaya karşı dayanıklıdırlar. Gevrek malzemelerdir ve basma mukavemetleri yüksektir.

Seramikler kullanımına ve yapılarına göre sınıflandırılırlar. Yapılarına göre kristal yapılı seramikler ve cam esaslı seramikler olarak ikiye ayrılırlar. Kullanım alanları bakımından, geleneksel seramikler ve ileri teknoloji seramikleri olarak sınıflandırılırlar.

2.1.1. Geleneksel seramikler

Geleneksel seramikler denince akla ilk olarak çömlekler gelir. Çömlekler genellikle kil ve hayvansal ürünlerin harmanlanması ile elde edilirler. Geleneksel seramikler üç temel elemandan oluşurlar; kuvars (silika), kil ve feldspat. Geleneksel seramiklere örnek; tabak, bardak, fayans, kiremit, tuğla verilebilir.



Şekil 2.1. Geleneksel seramik örnekleri [5].

2.1.2. İleri teknoloji seramikler

İleri teknoloji seramiklere mühendislik seramikleri de denir. İleri teknolojik seramikler oksit bileşikler, oksit olmayan bileşikler ve her ikisinin kombinasyonundan elde edilirler. Oksit bileşiklere alümina (Al_2O_3) ve zirkonya (ZrO_2); oksit olmayan bileşiklere de karbürler, nitrürler ve silisitler örnek verilebilir. İleri teknoloji seramiklere; biyomalzemelerde, uçuş pist platformlarında, jet motoru türbin kanatlarının kaplamalarında, rulmanlarda ve pek çok ileri teknoloji alanında rastlayabiliriz. Son 100 yıldır kullanılmaktadırlar [6].



Şekil 2.2. Jet motoru [7].

2.2. Elektronik Seramikler

Düşük kayıp faktörlü, üstün yalıtım özellikleri olan, mükemmel termal ve kimyasal kararlılık gösteren seramiklerdir. Ferroelektrik, dielektrik, piezoelektrik ve piroelektrik özellikleri en önemlileridir [8].

2.3. Dielektrik Özellikler

İyi elektriksel yalıtımı olan seramik malzemeler, dielektrik malzemeler olarak adlandırılır [9]. Dielektrik malzemeler uygulanan elektriksel alandan etkilenen, serbest elektronu bulunmayan yalıtkan malzemelerdir.

Malzemelerin tamamı atomlardan ve moleküllerden oluşmaktadır. Bu nedenle artı ve eksi yüklü parçacıklar tüm malzemelerin bünyesinde vardır. İletken malzemelerde iyonlar serbestçe hareket edebilirken dielektrik malzemelerdeki iyonların hareket kabiliyetleri sınırlıdır. Dielektrik malzemelerin diğer malzemelerden üstün olan yanları; dielektrik sabiti, dielektrik kayıp faktörü ve dielektrik dayanımıdır [10].

2.3.1. Dielektrik sabit

Herhangi iki iletkenin oluşan eşit ve zıt yükler taşıyan herhangi iki iletkenin oluşan elektronik elemanlar kapasitörlerdir [9].

Kapasitör üzerine voltaj uygulandığı zaman, elektrik alan artı kutuptan eksi kutba yönelir. Plakalar da artı ve eksi olarak yüklenmektedir.

$$C = Q / V \quad (2.1)$$

C kapasitans, Q her iki levhada depolanan şarj miktarını ve V, kondansatör boyunca uygulanan voltajı gösterir. V ve Q doğru orantılıdır.

Plakalar arasında kalan bölgeye vakumlu paralel plakalı kondansatör yerleştirildiğinde Eşitlik 2.2'deki gibi gösterilir.

$$C = \varepsilon_0 A/d \quad (2.2)$$

Burada C: kapasitans, A: plakaların alanı, d:levhalar arası mesafe, ε_0 ise vakuma ait geçirgenlik olarak adlandırılan sabittir, değeri 8.85×10^{-12} F/m'dir. Plakaların arasındaki bölgeye bir dielektrik malzeme yerleştirildiğinde Eşitlik şu şekilde gösterilir;

$$C = \varepsilon A/d \quad (2.3)$$

ε değeri, bu dielektrik ortamın geçirgenliğidir. ε değeri, ε_0 değerinden büyüktür. Bir malzemenin elektrik yükünü depolama yeteneğinin ölçüsüne dielektrik sabiti denir. ε_r ile gösterilmektedir.

$$\varepsilon_r = \varepsilon/\varepsilon_0 \quad (2.4)$$

Eşitlik 2.4'te gösterilen oran 1'den büyüktür. p levhalar arasına dielektrik malzemenin yerleştirilmesi ile yük depolamasında artış olduğunu ifade eder [11].

Elektrik alan formülü Eşitlik 2.5'te gösterilmiştir.

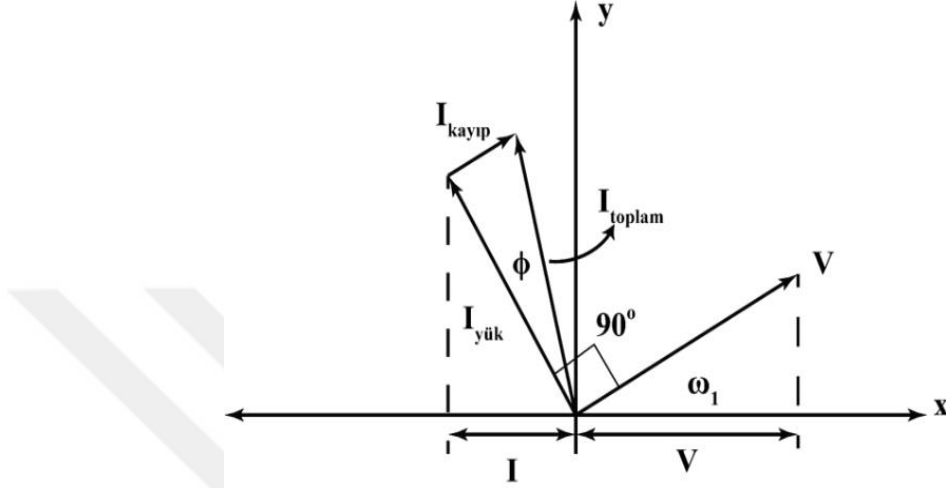
$$D = \varepsilon. E \quad (2.5)$$

D, yüzeydeki yük yoğunluğunu (C/m^2) gösterir, E, elektrik alandır (V/m).

2.3.2. Dielektrik kayıp

İstenen özelliklere sahip dielektrik malzemede elektriksel yük kaybının en az seviyede olması istenmektedir. Bir sinüs eğrisi şeklinde olan kapasitör üzerindeki yükü sağlayan gerilim, kapasitör levhaları ortasında kayıpsız bir elektriksel iletken bulunmadığı

zaman akım gerilimi 90° yönlenir [12]. Ancak gerçekte bu yönlenme gerçekleşmez. 90° 'lik yönlenmenin olmamasına neden olan iki ana sebep vardır. İlk neden, hareket eden yüklerin momentinin sebep olduğu enerjinin dağılmasıdır. İkinci neden de yüklerin uzun mesafelere sıçrayabilmeleridir.



Şekil 2.3. Uygulanan gerilim, şarj, kayıp ve toplam akımların vektörel gösterimi.

ϕ , kayıp açısıdır. Dielektrik kayıp, sapma açısının tanjantıdır [1]. Kayıp açısının yüksek olması iletimin yüksek olduğunu göstermektedir.

2.3.3. Polarizasyon mekanizmaları

Dielektrik malzemelerde dört çeşit polarizasyon mekanizmasından bahsedilebilir. Bunlar; Elektronik polarizasyon, İyonik polarizasyon, Moleküler (Yönsel) polarizasyon ve Uzay yükü polarizasyondur.

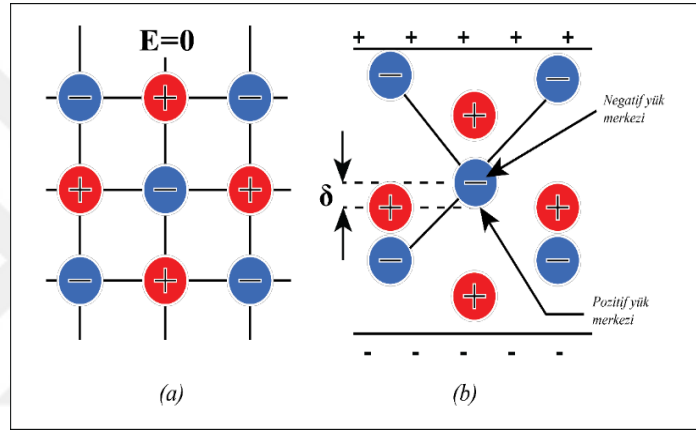
2.3.3.1. Elektronik polarizasyon

Atom çekirdeğine göre, atomdaki elektronlar ile uygulanan elektrik alanın daha fazla yer değiştirmesi ile oluşur. Elektrik alanın pozitif olduğu bölgelere elektronlar yönelir. Bu nedenle atom geçici uyarılmış gibi davranır [13]. Uygulanan elektrik alan kaldırıldığında çekirdekler ve elektronlar orijinal dağılımlarına geri dönerler buna bağlı olarak polarizasyon ortadan kalkar [14]. Yüklerin yer değiştirme miktarı bu polarizasyon türünde çok düşüktür. Bu nedenle toplam polarizasyon miktarı diğer

polarizasyon mekanizmalarına göre en düşüktür. Elektronik polarizasyon tüm dielektrik malzemelerde gerçekleşir [13].

2.3.3.2. İyonik polarizasyon

Sadece iyonik olan malzemelerde gerçekleşir. Elektrik alan uygulandığında; katyonlar bir yönde, anyonlar zıt yönde hareket ederek yer değiştirir. Bu şekilde net dipol momentini oluştururlar [15]. Genellikle 10 - 100 Å aralığında iyon yer değişimleri gerçekleşir [10].



Şekil 2.4. İyonik kutuplaşma. (a) Denge durumunda olan iyon pozisyonları. (b) Elektrik alan uygulanması sonucunda eksi yükün merkezi artı yükün merkezi ile çakışmaz, kutuplaşma oluşur [13].

2.3.3.3. Moleküler (Yönsel) polarizasyon

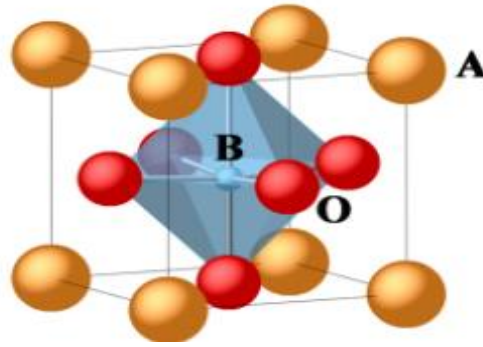
Bu polarizasyon türü dışsal elektrik yokluğunda kalıcı dipol momente sahip parçacıklardan oluşan dielektrik malzemelerde görülür [13]. Elektrik alan uygulandığı zaman dipoller elektrik alan yönünde yönelirler. Elektrik alan kaldırıldığında zaman bu dipoller yönelmiş halde kalırlar ve polarizasyon oluşmasına sebep olurlar.

2.3.3.4. Arayüzey polarizasyon

Elektrik alan sayesinde yük taşıyıcılar uzak yerlere taşınırlar. Bu şekilde yük hareketi ile malzemenin bazı bölgelerinin pozitif (+) yükle yüklenirken diğer bölgelerinin negatif (-) yükle yüklenmesi sonucu oluşur (12×10^{27}).

2.4. Perovskit Yapı

Kalsiyum titanat (CaTiO_3) perovskit mineralinin adıdır [16]. Kimyasal formülü ABO_3 olan malzemeler perovskit yapılıdır. Burada A ve B farklı boyutlardaki katyonlardır. A atomları genellikle daha büyüktür. Bu yapıda kafesin köşelerindeki A iyonları çoğunlukla nadir toprak veya alkali toprak elementlerdir. Kafesin merkezindeki B iyonları 3d, 4d ve 5d geçiş metal elementleri olabilir. ABO_3 yapısı, oktahedral boşlukları dolduran küçük katyon ve on iki yüzlü boşlukları dolduran daha büyük katyon ile köşeye bağlı oksijen oktahedra ağıdır [3]. ABO_3 süper iletken malzeme grubundandır. BaTiO_3 , PbTiO_3 , SrTiO_3 , $\text{PbZr}_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_3$, $\text{KxNa}_{1-x}\text{NbO}_3$, $\text{KTaxNb}_{1-x}\text{O}_3$, KNbO_3 gibi oksit seramikler ABO_3 kimyasal formülünü gösterirler.



Şekil 2.5. Perovskit yapının birim hücresi. A, B katyonlar ve O anyondur [2].

Önemli piezoelektrik seramikler perovskit yapısında kristalleşir. Perovskit yapılı piezoelektrik malzemelerin diğer malzeme türlerine nazaran daha büyük bir piezoelektrik etkiye sahip oldukları söylenebilir.

2.5. Kurşun İçermeyen Seramikler ve Özellikleri

2.5.1. Bizmut sodyum titanat (BNT)

Önemli piezoelektrik özelliklere sahip olan bizmut sodyum titanat (BNT) kurşunsuz seramikler arasında yer alır. BNT bazlı seramiklerde hem yüksek polarizasyon hem de yüksek termal kararlılık gözlemlenir. BNT seramikler yüksek iletkenliğe sahiptir.

Ancak katkısız BNT seramiklerin oda sıcaklığında kutuplanmaları zordur [17]. Bu nedenle genellikle katkı malzemeler ilave edilir.

BNT bazlı ferroelektrik seramiklerdeki piezoelektrik aktiviteler, KNN ve BT bazlı sistemlerden daha düşük olmasına rağmen, BNT bazlı ferroelektrik seramikler, ultra yüksek elektrik alan kaynaklı gerilmeler (elektrostrainler) sergiler [18–19].

BNT seramik malzemeler iki çeşit faz dönüşümü gösterir. Birincisi, 200°C-350°C arasında ortorombik fazdan tetragonal faza geçiş ve ikincisi 520°C-540°C arasında tetragonal fazdan paraelektrik yüksek sıcaklık kübik faza geçiştir [20]. BNT bazlı seramiklerde hem yüksek polarizasyon hem de yüksek termal kararlılık gözlemlenir.

BNT seramikler yüksek Curie sıcaklığına (120°C) sahiptir. Kurşun Zirkonat Titanat kadar iyi piezoelektrik özelliklere sahip olması zordur. Oda sıcaklığında ferroelektrik özellik gösterirler [21]. Katı hal yöntemiyle üretimi yapılabilir.

Valfler, mikro pompalar, yüzey akustik dalga ölçerler, sonarlar, tıbbi teşhislerde kullanılan görüntüleme cihazları kullanım alanlarından bazılarıdır.

2.5.2. Baryum titanat (BT)

BT, piezoelektrik ve ferroelektrik malzeme sınıfına girer [22]. BT seramikler bir elektrik alana maruz kalmadan polarize olabilirler. Doğal polarizasyon iyon konumlarında gerçekleşmektedir [1].

BT seramiği Curie sıcaklığı altında kalıcı dipol momenti oluşturur. Curie sıcaklığının üzerindeki sıcaklıklarda kübik formdadır. Curie sıcaklığının üzerine çıkıldığında malzemenin yapısı değişir. Curie sıcaklığının üzerine çıkıldığında BT seramiği perovskit yapıdadır, ferroelektrik özelliğini kaybeder.

Aynı doğrultuda sıralanmış sürekli dipol momentlerinin arasındaki etkileşim neticesinde doğal polarizasyon meydana gelmektedir. BaTiO_3 'ün ϵ_r değeri 5000'dir [10].

BÖLÜM 3. MATERYAL VE YÖNTEM

3.1. Çalışmanın Amacı

Yapılan çalışmada, tuz banyolarında SrTiO_3 tek kristallerin üretilmesi Bi_2O_3 , Na_2O , TiO_2 içeren oksitlerle karıştırılarak sinterlenmesi, edinilen seramik kompozitlerin yapısal faz analizlerinin yapılması ve özelliklerinin araştırılması hedeflenmiştir.

3.2. BNT-ST Seramiklerin Üretiminde Kullanılan Tozlar

BNT-ST seramiklerin üretiminde Bi_2O_3 , Na_2CO_3 , K_2CO_3 , TiO_2 bileşikleri, ilave malzeme olan SrTiO_3 üretiminde SrO ve TiO_2 bileşikleri kullanılmıştır. Hammaddeler, temin edilen firma ve tozların saflık dereceleri Tablo 3.1.'de verilmiştir.

Tablo 3.1. Bileşimleri hazırlamak için gerekli olan tozların özellikleri

Hammaddeler	Temin edilen firma	Saflık derecesi
Bi_2O_3	aber GmbH , Germany	99,975 %
Na_2CO_3	Carlo Erba	99,5 %
K_2CO_3	Carlo Erba	99,0 %
TiO_2	Alfa Aesar Company	99,5 %
SrO	aber GmbH , Germany	99,5 %

BNT-ST Seramiklerin üretilmesinde izlenen işlem basamakları Şekil 3.2.'de verilmiştir.

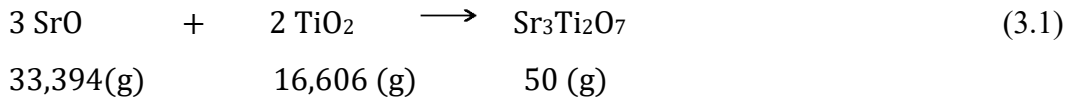
1	•Hammadde temini
2	•Tek kristal malzeme üretimi (SrTiO_3)
3	•Tozların hazırlanması
3.1	•24 saat bilyalı değirmende ilk öğütme işlemi (Etil alkol yardımı ile)
3.2	•100 °C'de 24 saat etüvde kurutma
3.3	•Kalsinasyon işlemi (840 °C'de 2 saat)
3.4	•24 saat bilyalı değirmende ikinci öğütme (Etil alkol yardımı ile)
3.5	•100 °C'de 24 saat etüvde kurutma
3.6	•Soğuk izostatik presleme (200 MPa)
3.7	•Peletlerin aynı bileşime tozlarla örtülüp alümina pota içerisine yerleştirilmesi
3.8	•Sinterleme (1180 °C 1 saat 5 °C/dk)
4	•Karakterizasyon
4.1	•Tek kristal malzeme (SrTiO_3) için; •SEM Analizi •X-Işınları Analizi
4.2	•Ham tozlar için; •SEM Analizi •X-Işınları Analizi
4.3	•Stokiypmetrik karışan tozlar için; •SEM Analizi •X-Işınları Analizi
4.4	•Sinterlenmiş numuneler için; •X-Işınları Analizi •SEM Analizi •Dielektrik Sabit ve Kayıp •Yoğunluk ölçümü

Şekil 3.2. BNT-ST Seramiklerin üretilmesinde izlenen işlem basamakları

3.3. SrTiO₃ Tek Kristalin Üretilmesi

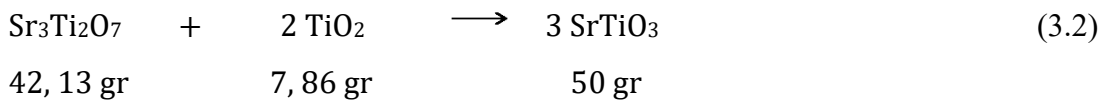
SrTiO₃ üretimi iki aşamalı bir işlemle gerçekleştirilmiştir. Birinci aşamada Sr₃Ti₂O₇ elde edilmiş ve ilave tozlarla ikinci aşamanın sonunda SrTiO₃ üretilmiştir.

1'nci aşama (100 g için):



Eşitlik 3.1'e göre hazırlanan tozlara etanol ilave edilmiştir ve 8 saat bilyeli değirmende ZrO₂ bilyeler ile karıştırılmıştır. Karışan tozlar 100 °C'de 24 saat etüvde kurutulmuştur. Toz karışımının %50'si kadar KCl ilave edilmiş ve nihai karışım ZrO₂ bilyeler ile 3 saat daha değirmende öğütülmüştür. Elde edilen karışım 100 °C'de 24 saat etüvde kurutulmuştur. Kuru toz karışımı kapaklı Al₂O₃ pota içerisinde (10 °C / dk ısıtma hızında) 1300 °C'de 4 saat fırında kurutulmuştur. Elde edilen ürün, KCl' yi uzaklaştırmak için sıcak deiyonize su ile defalarca yıkanmıştır ve ikinci aşamaya geçilmiştir.

22'nci aşama (100 g için):



Bu karışıma ağırlıkça 1:1 oranında KCl ilave edilmiştir. Tabular Sr₃Ti₂O₇' ye zarar gelmemesi için plastik (polipropilen) bilye kullanılmıştır. Karışım etanol ile bilyeli değirmende 1 saat karıştırılmıştır. Karışan tozlar 100 °C'de 24 saat etüvde kurutulmuştur. 1'nci aşamada olduğu gibi karışan bu tozlar kapaklı Al₂O₃ pota içerisinde (10 °C / dk ısıtma hızında) 1200 °C'de 4 saat fırında kurutulmuştur. Yine tozlar 1'nci aşamada olduğu gibi KCl' yi uzaklaştırmak için saf deiyonize su ile defalarca yıkanmıştır ve Eşitlik 3.2'de görüldüğü gibi SrTiO₃ elde edilmiştir.

3.4. Tozların Hazırlanması

Tablo 3.2. % ağırlıkça bileşim reçetesi (100 g için)

Bileşimler	Bi ₂ O ₃ (gr.)	Na ₂ CO ₃ (gr.)	K ₂ CO ₃ (gr.)	TiO ₂ (gr.)	SrTiO ₃ (gr)
BNT-ST	40,57	9,20	0	27,80	22,44
BNKT-ST	40,01	4,53	5,89	27,43	22,13
BKT-ST	39,46	0	11,66	27,05	2183

Tablo 3.2.'de gösterilen % ağırlıkça bileşim reçetesi göz önünde bulundurularak hazırlanan tozlar bilyeli değirmende öğütölmek üzere karıştırma kabına (HDPE nalgane kap) alınmıştır.

Toz karışımına 24 saat 180 dev/dk yaş öğütme işlemi uygulanmıştır. Karıştırma süresi sonlandıktan sonra bilyeler karışımdan ayrılmıştır. Karıştırma işlemini kolaylaştırmak için kullanılan alkolün uzaklaştırılması işlemi 24 saat 100 °C'de etüvde gerçekleştirilmiştir.

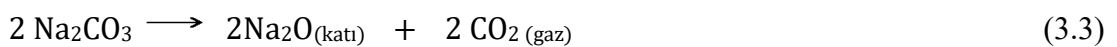
Toz karışımı 100µm'lik elekten geçirilmiştir. Bu işlemle en kaba tane boyutunun 100µm olması sağlanmıştır.

3.5. Kalsinasyon İşlemi

Bileşimlerdeki karbonatlı bileşiklerden karbondioksit (CO₂) gazının uzaklaştırılması gerekmektedir. Bunun için kalsinasyon işlemi gerçekleştirilmiştir.

Kalsinasyon işleminin gerçekleştirilmesi için tozlar, direnç fırında 840 °C'de 2 saat tutulmuştur.

Toz karışımında meydana gelen kimyasal reaksiyon Eşitlik 3.3'de verilmektedir.



3.6. Numunelere Şekil Verme ve Sinterleme

Paslanmaz çelikten yapılan silindirik kalıp kullanılarak şekillendirme yapılmıştır. %5'lik çinko stearat ile yağlanan kalıp içerisine aktarılan tozlar ve 200 MPa basınç altında tek yönlü pres ile preslenmiştir.

Şekillendirilen numuneler aynı bileşime sahip toz karışımı ile örtülmüştür. Bizmut (Bi) ve Sodyum' un (Na) uçarak bünyeden uzaklaşmasını engellemek için peletler aynı bileşime sahip tozlarla örtülmüştür.

Şekil verilen numuneler fırına yerleştirilmiştir ve 10 °C/dk ısıtma rejimiyle 1180 °C'ye çıkarılmış, bu sıcaklıkta hiç beklenmeden 5 °C/dk soğutma hızıyla 1130 °C'ye düşürülmüştür. 1130 °C'de 60 dk açık atmosferde sinterlenmiştir.

3.7. Numunelerin Metalografik Hazırlık

SEM ve Dielektrik sabiti ve Dielektrik kaybı ölçümünde kullanılacak numuneler klasik metalografik işlemlerle hazırlanmıştır. Zımparalamada; 600 grid'lik zımpara ile başlanmış, sırasıyla 800, 1000 ve 1200 grid'lik SiC zımparadan geçirilmiş ve daha sonra 0.05 µm'lik alümina ile parlatılmıştır. Sonrasında parlatılmış numuneler %10'luk HF asit çözeltisi ile dağlama işlemine tabii tutulmuştur.

3.8. Hammadde ve Seramik Malzemelerin Karakterizasyonu

3.8.1. X- ışınları difraktometresi (XRD)

1130 °C'de 60 dakika boyunca sinterlenen üç farklı bileşimdeki numunelerin X-ışınları difraksiyon analizi RIGAKU marka bir cihazla CuK α ($\lambda = 1.54056$ Å) radyasyonu kullanılarak 5-90° 2 θ değerleri arasında gerçekleştirilmiştir.

3.8.2. Mikroyapısal analizler (SEM)

Yapılan çalışmada kullanılan 3 farklı bileşimdeki tozların; sinterleme öncesi ve sinterleme sonrası SEM görüntüleri alınmıştır. SEM görüntüleriyle tozlar ve

sinterlenmiş numunelerin; tane yapıları, dağılımları ve morfolojileri hakkında bilgi edinilmiştir. Bu çalışmalar JEOL 6060-LV markalı bir taramalı elektron mikroskobu ile gerçekleştirilmiştir.

3.8.3. EDS Analizleri

Kimyasal bileşimlerin belirlenmesi için EDS analizleri gerçekleştirilmiştir. EDS (EDS, Oxford-Inca-7274) analizi taramalı elektron mikroskobu (SEM) üzerindeki EDS kullanılarak alınmıştır.

3.8.4. Yoğunluk ölçümü ve hesaplamaları

Sinterlenmiş seramik numunelerin yoğunlukları oda sıcaklığında Archimedes tekniği kullanılarak ölçülmüştür. Sinterlenen numunelerin kuru tartımları (W_a) hassas terazi ile yapılmıştır. Kuru tartımı yapılan numuneler saf su ile doldurulmuş beherler içine alınmıştır. Numuneler 10 dakika boyunca kaynatılmış ve soğumaya bırakılmıştır. Soğuyan malzemeler saf su içerisinde askıda (W_b) tartılmıştır. Bu tartımdaki ağırlık suyun kaldırma kuvvetinden dolayı kuru tartımdan (W_a) daha düşük çıkmaktadır. Daha sonra numuneler nemli bir bezle silinmiş, üzerindeki su damlacıkları giderilmiş ve havada tartım (W_c) işlemi gerçekleştirilmiştir. Hesaplamalar yapılırken kullanılan formüller Eşitlik 3.5, 3.6 ve 3.7’de verilmektedir.

$$\rho_{\text{Bulk yoğunluk}} = w_a / (w_c - w_b) \times \rho_{\text{su}} \quad (3.5)$$

$$\% \text{pgörel} = (\rho_{\text{bulk yoğunluk}} / \rho_{\text{teorik}}) \times 100 \quad (3.6)$$

$$\text{Su emme (\%)} = [(W_c - W_a) / W_a] \times 100 \quad (3.7)$$

3.9. BNT Esaslı Kompozit Malzemelerin Elektriksel Karakterizasyonu

3.9.1. Dielektrik özelliklerin ölçümü

Üretilen üç farklı bileşimdeki numunelerin dielektrik ölçümleri için yaklaşık 12 mm çapında 2 mm yüksekliğinde silindirik numuneler hazırlanmış; hazırlanan numunelerin iki yüzeyi zımparadan geçirilmiş gümüş pasta ile kaplanmıştır. Sonrasında 5 °C/dk ısıtma-10 °C/dk soğutma hızıyla 650 °C’de 30 dakika süreyle ısıtma işlemi tabii tutulmuştur. Numunelerin dielektrik özellikleri oda sıcaklığında 1 kHz-1MHz frekans aralığında bir LCR Meter (Hioki 3532-50 LCR, Japan) ile tespit edilmiştir. Cihazdan ölçülen kapasitans değerlerinden yararlanılarak dielektrik sabiti Eşitlik 3.8 ve Eşitlik 3.9’da ki formüller vasıtasıyla hesaplanmıştır.

$$C = \epsilon \frac{A}{\ell} \quad (3.8)$$

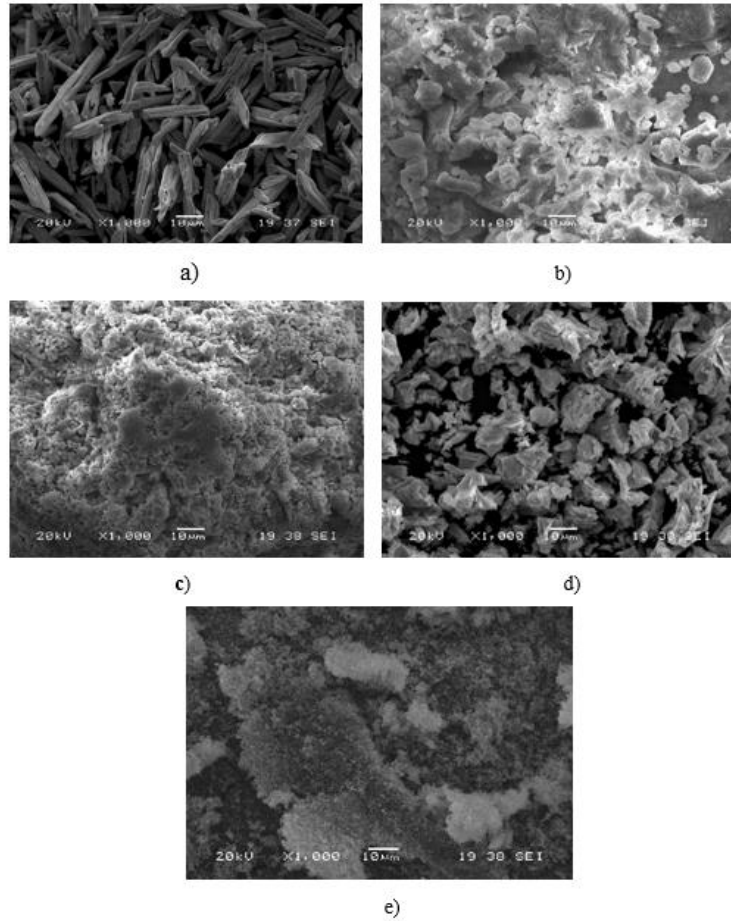
$$\epsilon_r = \frac{\epsilon}{\epsilon_0} \quad (3.9)$$

Burada C: kapasitans, A: levhanın alanı, ℓ :levhalar arası mesafe, ϵ : dielektrik ortamın geçirgenliği, ϵ_r : dielektrik sabiti ve ϵ_0 ise vakuma ait geçirgenlik olarak adlandırılan sabittir (8.85×10^{-12} F/m).

BÖLÜM 4. DENEYSEL SONUÇLAR VE TARTIŞMA

4.1. Ham Tozlara Ait SEM Analizi

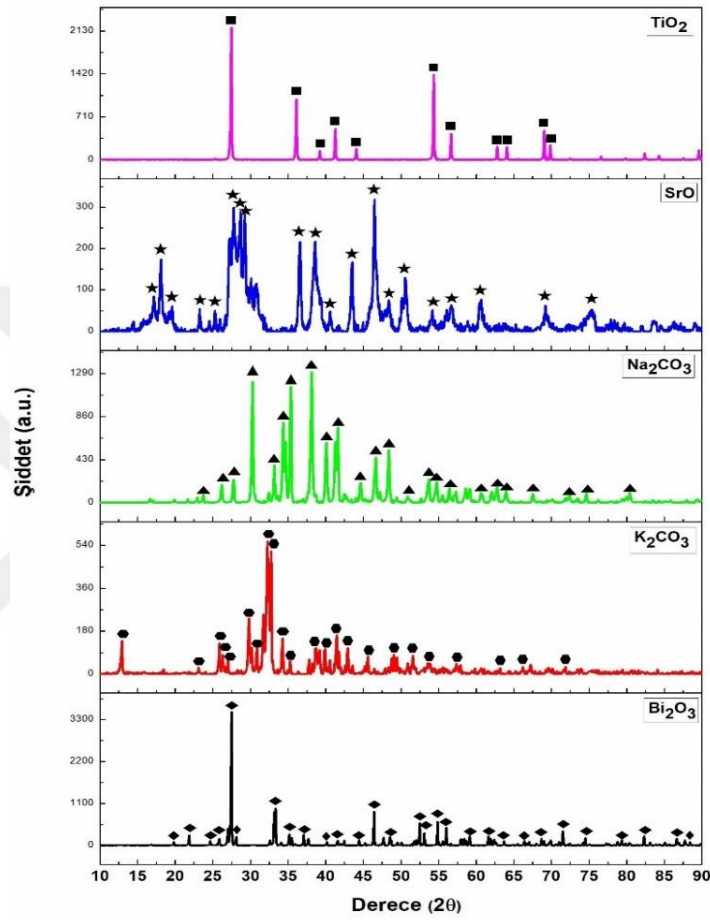
Bileşimleri hazırlanmak için kullanılan ham tozlarının SEM mikroyapı görüntüleri Şekil 4.1.'de verilmiştir. SEM mikroyapı görüntüleri incelendiğinde; a) Bi_2O_3 ve d) SrO 'nun keskin köşeli tanelere sahip olduğu, e) TiO_2 tozunun ince tane boyutunda olduğu ve b) K_2O_3 ve c) Na_2CO_3 'ün iri taneler olduğu tespit edilmiştir.



Şekil 4.1. Başlangıç tozlarına ait tozların 1000x büyütmedeki SEM görüntüleri a) Bi_2O_3 , b) K_2CO_3 , c) Na_2CO_3 , d) SrO , e) TiO

4.2. Ham Tozlara Ait XRD Analizi

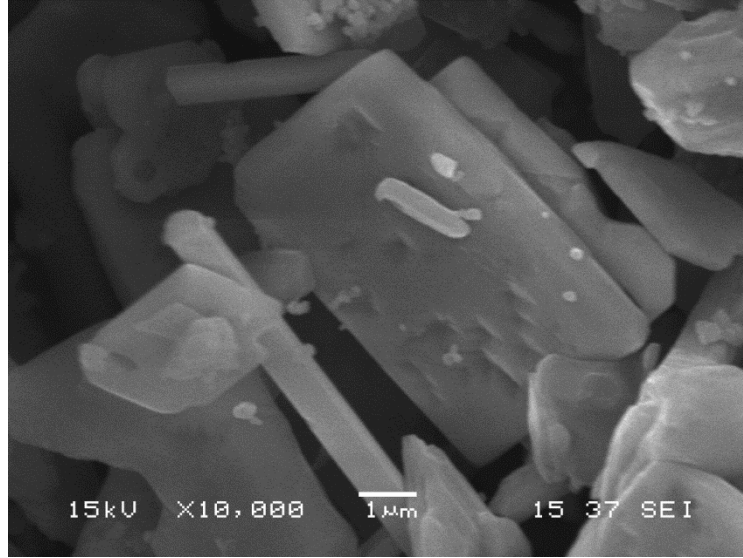
Bu çalışmada kullanılan ham tozlara ait XRD sonuçları Şekil 4.2.'de gösterilmiştir. XRD sonuçlarındaki pikler ile referans piklerin uyumlu olduğu belirlenmiştir.



Şekil 4.2. Ham tozlara ait XRD sonuçları

4.3. Tek Kristal Malzeme (SrTiO₃)'ye Ait SEM Analizi

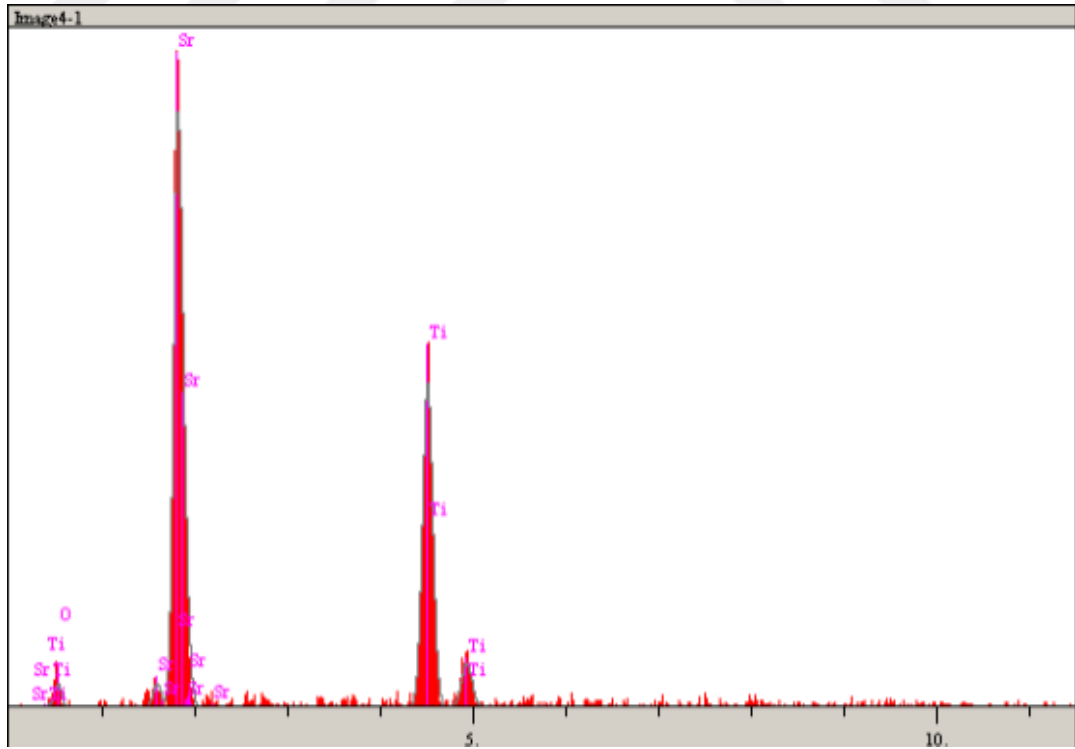
Bu çalışmada ilave malzeme olarak kullanılan tek kristal malzemeye ait SEM mikroyapı görüntüsü Şekil 4.3.'de verilmiştir. Tane yapısının dikdörtgen şeklinde olduğu söylenebilir.



Şekil 4.3. Tek kristal malzemeye ait SEM mikro yapı görüntüsü

4.4. Tek Kristal Malzeme (SrTiO_3)'ye Ait EDS Analizi

Tek kristal malzeme olan SrTiO_3 'e ait enerji saçılımlı spektral analizi (EDS) Şekil 4.4.'de verilmiştir.



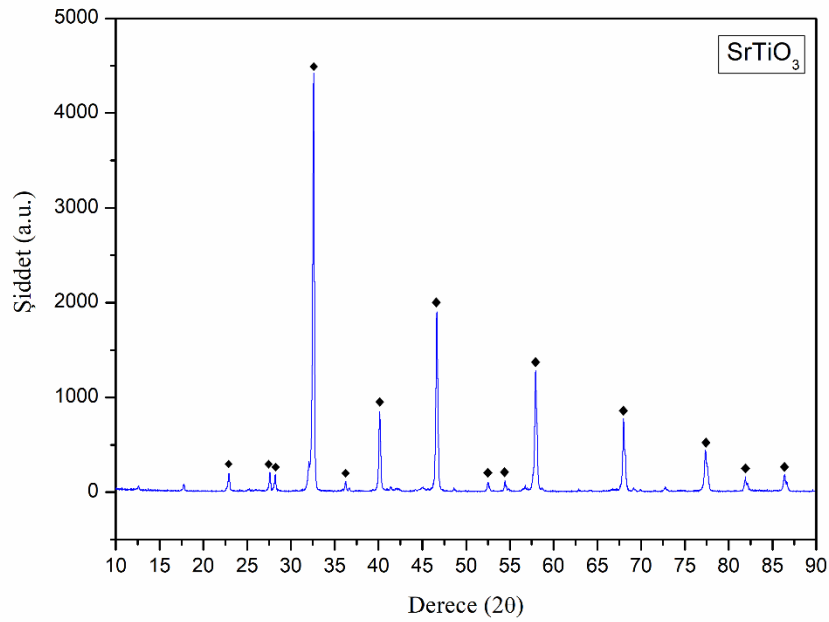
Şekil 4.4. SrTiO_3 'e ait enerji saçılımlı spektral analizi (EDS)

Element	Bileşim (ağ.%)
O	6,726
Ti	40,011
Sr	53,262
	100,0
	Toplam

Şekil 4.4. (Devamı)

4.5. Tek Kristal Malzeme (SrTiO_3)'ye Ait XRD Analizi

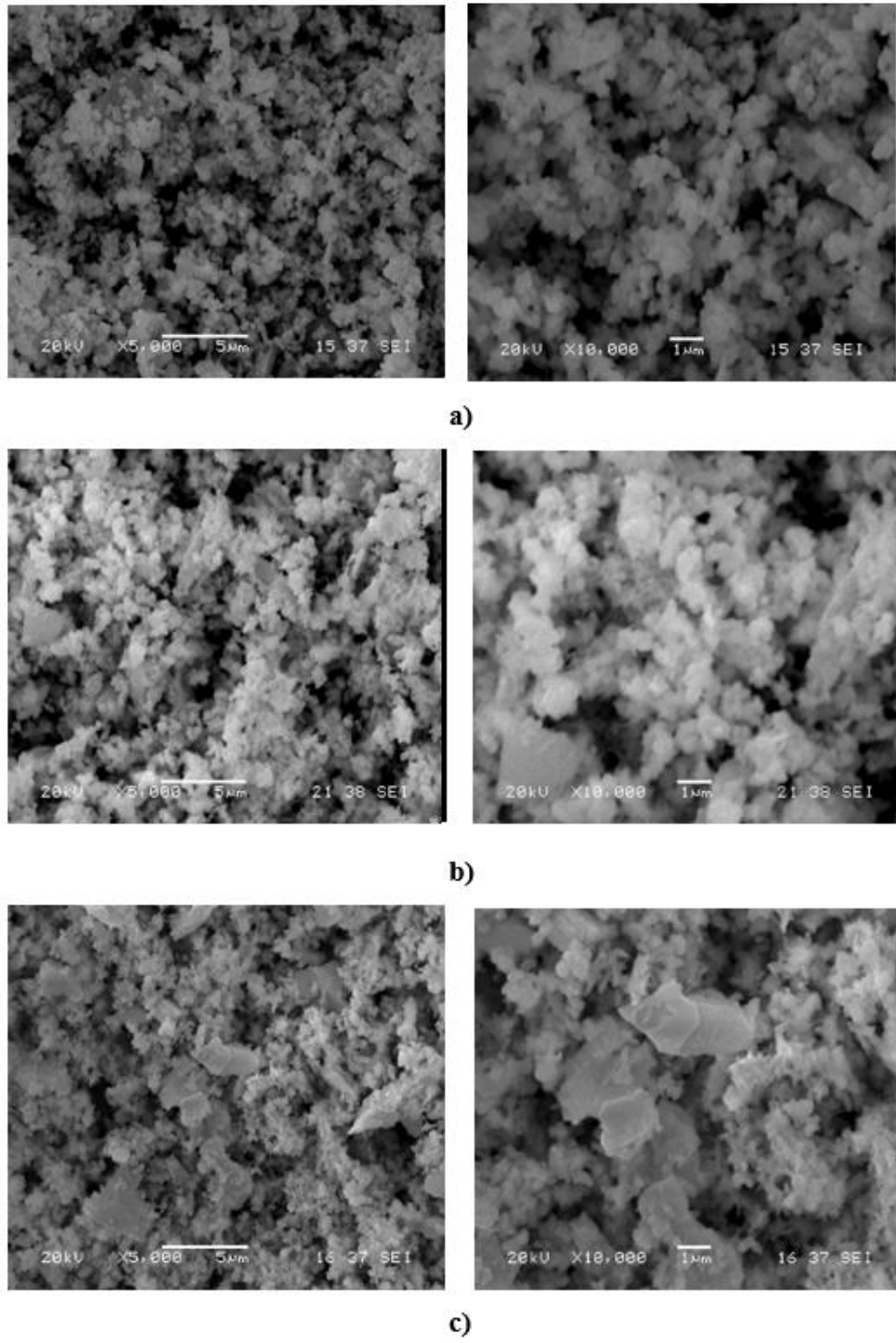
Tek kristal malzemeye ait XRD diyagramı Şekil 4.5.'de verilmiştir. En şiddetli pik 30-35° arasındaki piktir. XRD sonuçlarındaki pikler ile referans piklerin uyumlu olduğu belirlenmiştir.



Şekil 4.5. Tek kristal malzemeye ait XRD diyagramı

4.6. Sinterleme Öncesi BNT Seramik Tozların SEM Analizi

Sinterleme öncesi BNT-ST, BNKT-ST ve BKT-ST seramik malzemelere ait SEM görüntüleri Şekil 4.6.'da verilmiştir. Tane yapılarının ince ve benzer olduğu görülmüştür. BNKT-ST bileşiminin sert köşeli tanelere de sahip olduğu söylenebilir.

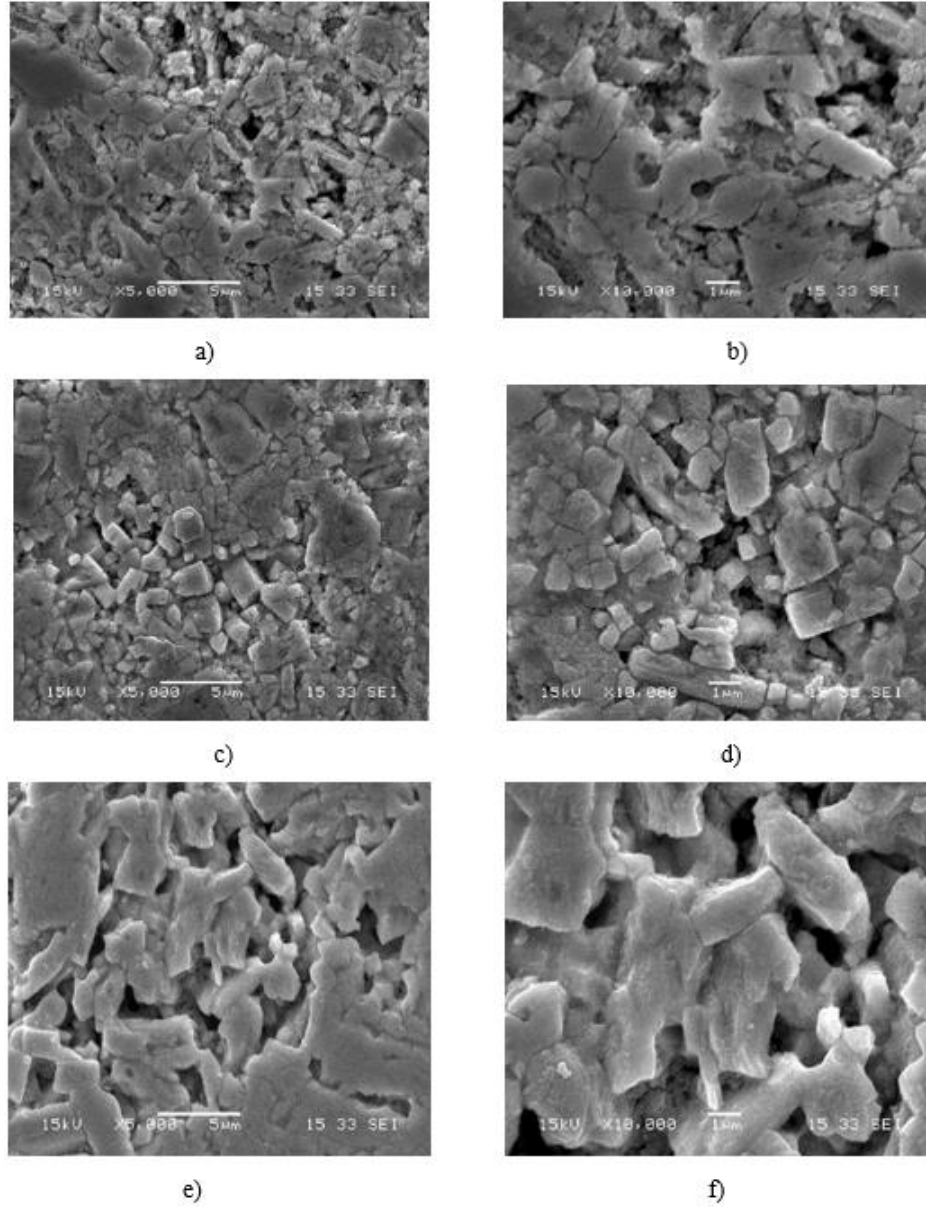


Şekil 4.6. BNT-ST a) 5000x – 1000x büyütme, BNKT-ST b) 5000x – 1000x büyütme, BKT-ST c) 5000x – 1000x Büyütme

4.7. Sinterlenmiş numunelerin SEM Analizi

Sinterleme işleminden sonra malzemelerin SEM görüntüleri Şekil 4.7.'de gösterilmiştir. a) BNT-ST, numunesinin iri tanelere sahip olduğu, c) BNKT-ST ve e)

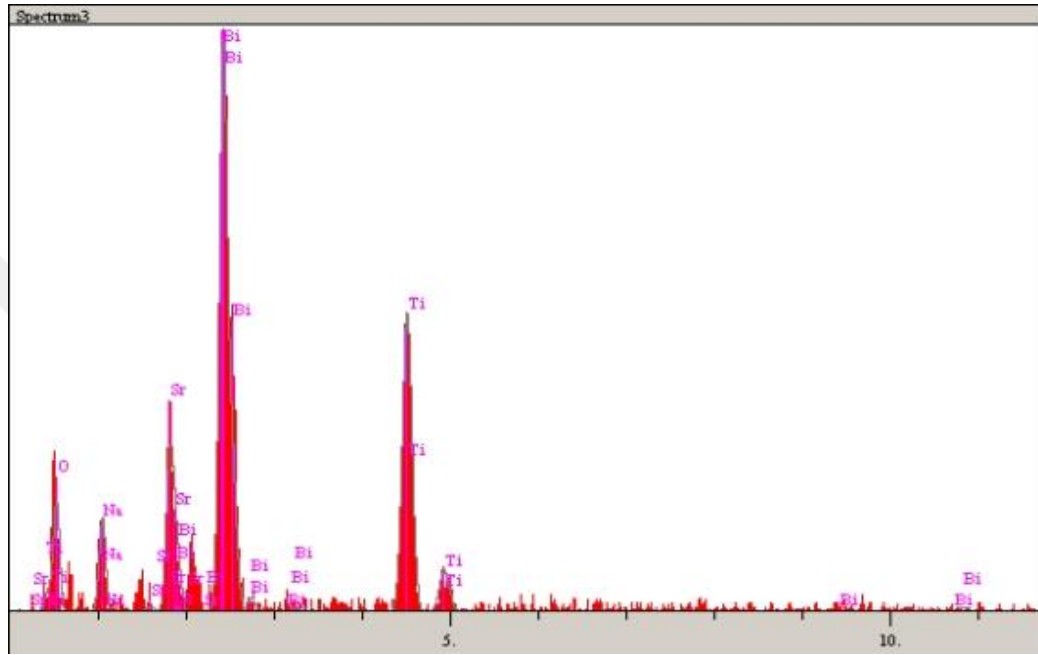
BKT-ST malzemelerinin köşeli tanelere sahip olduğu görülmektedir. Amei Zhang ve ark. yapmış oldukları çalışmalarda SEM görüntülerinde de BNT-ST malzemelerinin iri tanelere sahip olduğu görülmüştür ve bu çalışma ile benzerlik göstermektedir [23]. Yapılan diğer çalışmalarda SEM görüntüleri bu çalışmadaki görüntüleri destekler şekildedir [24,25]. BNT-BT seramiklerin tane yapılarıyla BNT-ST seramiklerin tane yapılarının benzer olduğu söylenebilir [26].



Şekil 4.7. Sinter sonrası numunelerin SEM analizleri a) BNT-ST 5000x Büyütme b) BNT-ST 10000x Büyütme c) BNKT-ST 5000x Büyütme d) BNKT-ST 10000x Büyütme e) BKT-ST 5000x Büyütme f) BKT-ST 10000x Büyütme

4.8. Sinterleme Sonrası EDS Analizleri

Kimyasal bileşimlerin tespit edilmesi için EDS analizleri yapılmıştır. Şekil 4.8.'de BNT-ST, BNKT-ST ve BKT-ST malzemelerine ait enerji saçılımlı spektral analizleri (EDS) verilmiştir. Elde edilen veriler literatürdeki verilerle uyum içerisindedir [27].

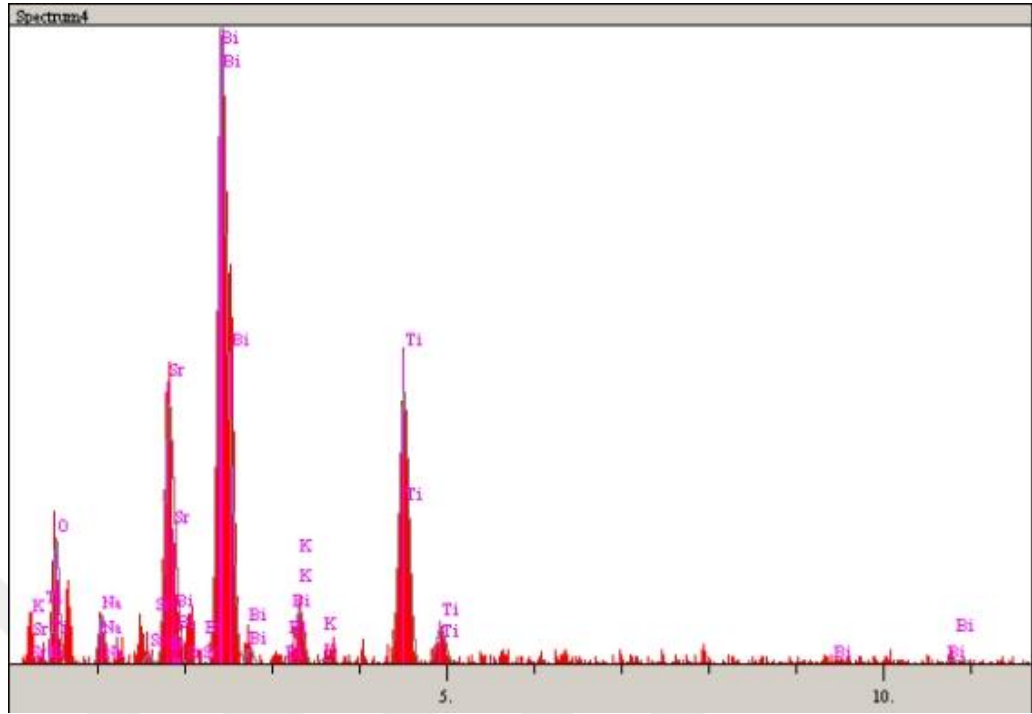


a)

Element	Bileşim (ağ.%)
O	11,64
Na	3,730
Ti	21,949
Sr	9,173
Bi	54,543
	100,0
	Toplam

a)

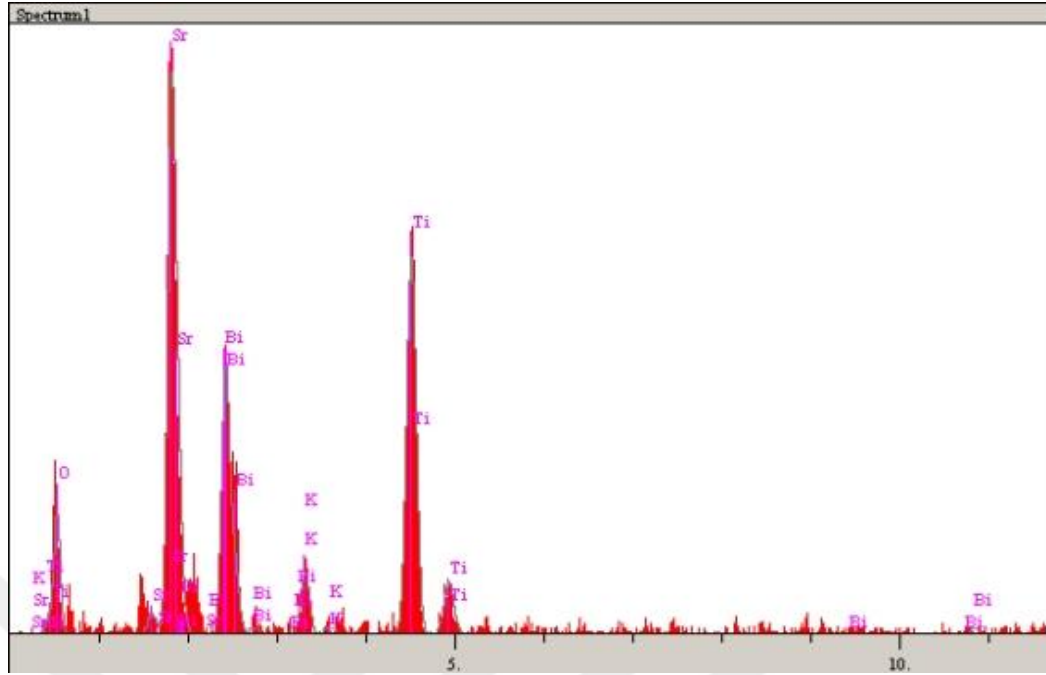
Şekil 4.8. Sinterlenmiş numunelerin EDS analizleri a) BNT-ST b) BNKT-ST c) BKT-ST



Element	Bileşim (ağ.%)
O	10,768
K	2,331
Ti	21,240
Sr	23,423
Bi	42,238
Na	1,287
	100,0
	Toplam

b)

Şekil 4.8. (Devamı)



Element	Bileşim (ağ.%)
O	10,768
K	2,331
Ti	21,240
Sr	23,423
Bi	42,238
	100,0
	Toplam

c)

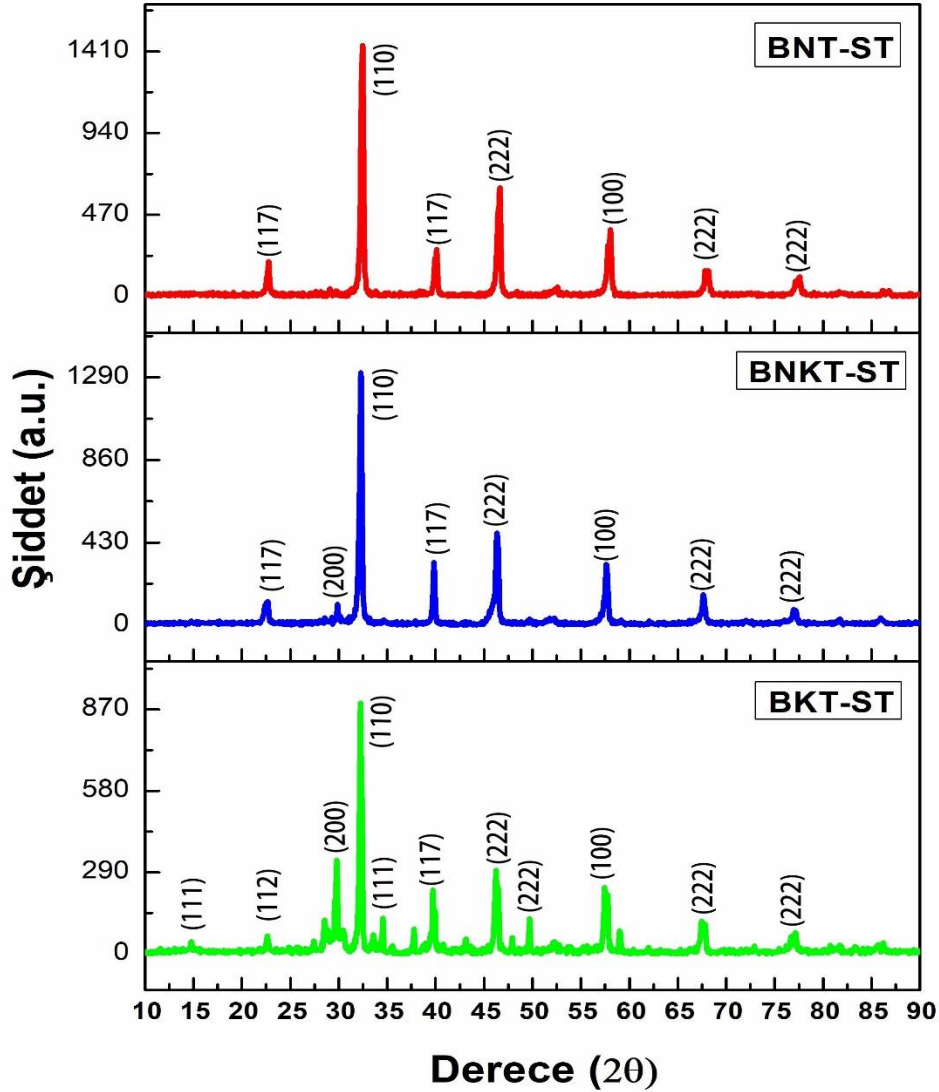
Şekil 4.8. (Devamı)

4.9. Sinterleme Sonrası Numunelerin XRD Analizleri

Bu analizler BNT-ST, BNKT-ST ve BKT-ST malzemelerinin analizleridir. 1180 °C’de sinterlenen numunelere ait XRD diyagramları Şekil 4.9.’da gösterilmiştir. En fazla şiddete sahip pik BNT-ST malzemesine ait 30-35° deki (110) pikidir. BNKT-ST ve BKT-ST malzemelerinin de en şiddetli pikleri 30-35° deki (110) pikidir. 45-50° ve 65-75.5° açılarında stronsiyum titanat yapısının oluşumu görülmektedir.

BKT-ST malzemesinde diğer malzemelerden farklı olarak 15° de (111) piki ve 20-25° de (112) piklerinin oluşumu görülmüştür.

Amei Zhang ve ark. yapmış olduğu çalışma referans alındığında, BNT-ST ve BNKT-ST bileşimlerinin %100 perovskit yapısında olduğu görülmektedir [23].



Şekil 4.9. Sinterlenmiş BNT-ST, BNKT-ST ve BKT-ST seramiklerin XRD diyagramları

4.10. Sinterlenmiş Numunelerin Yoğunluk Analizi

Arşimet tekniğinden yararlanarak numunelerin yoğunlukları oda sıcaklığında ölçülmüştür. Sinterlenme sonrası seramik numunelerin yoğunlukları Tablo 4.1.'de verilmiştir BNT ve BKT bileşimlerine ait teorik yoğunluklarının tespitini Jean-François Trelcat ve ark. yapmıştır [28]. BNT bileşimine ST ilavesinin teorik yoğunluğu arttırdığı, BKT bileşimine ST ilavesinin teorik yoğunluğu

önemsenmeyecek kadar azalttığı görülmüştür. Thomas Schulz ve ark. çalışmalarında, BaTiO_3 ilave edilen BNT bileşiminin teorik yoğunluğu 5,71 ($\pm 0,03$) olarak hesaplanmıştır [29]. ST ilaveli BNT seramik malzemenin, BaTiO_3 ilaveli BNT seramik malzemeye göre yoğunluğu arttırdığı tespit etmiştir. BNT-BCZT-BFCO kurşunsuz piezoelektrik seramiklere göre BNT-ST seramik malzemenin yoğunluğunun fazla olduğu tespit edilmiştir [30].

Tablo 4.1. Sinterlenmiş seramik numunelerin yoğunluk değerleri

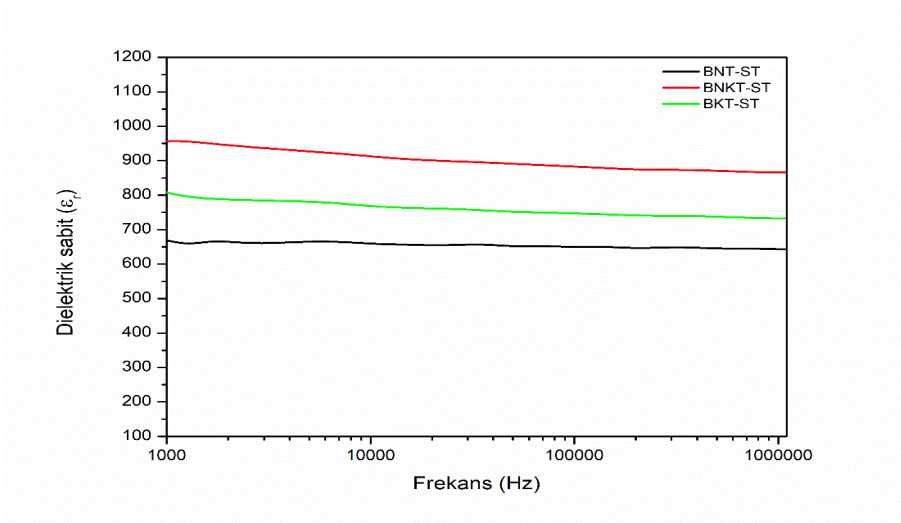
Bileşimler	Bulk yoğunluk (g/cm^3)	Nispi yoğunluk (%)	Su emme (%)
BNT-ST	5,084	83,481	0,095
BNKT-ST	4,339	92,912	2,169
BKT-ST	3,779	75,526	2,310

4.11. Dielektrik Analiz

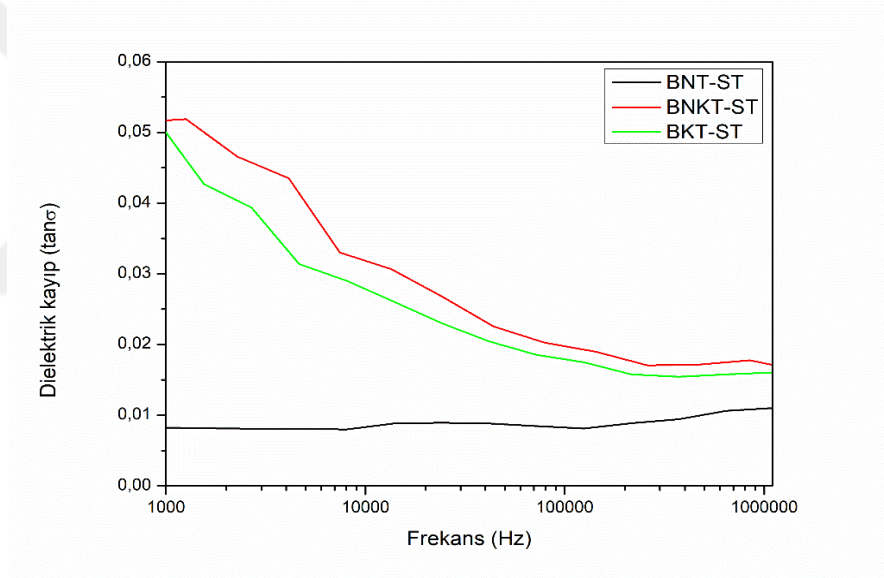
Artan frekanslara bağlı dielektrik sabit ve dielektrik kayıp değerleri Tablo 4.2.'de verilmiştir. Artan frekanslara bağlı dielektrik sabitlerinin küçük bir miktar düştüğü görülmüştür. 1 kHz, 10 kHz, 100 kHz ve 1000 kHz frekans değerlerinde en yüksek dielektrik sabitine BNKT-ST malzemesinin sahip olduğu görülmüştür. Dielektrik sabiti değeri azaldıkça Dielektrik kaybının artması beklenmektedir. Her üç numuneye ait frekansa bağlı dielektrik sabiti değişimi Şekil 4.10.'da gösterilmiştir. Adem Tataroğlu'nun yapmış olduğu çalışmada yararlandığı dielektrik kayıp hesaplamaları kullanılarak çizilen Frekansa bağlı değişen dielektrik kayıp değerleri grafiği Şekil 4.11.'de gösterilmiştir [31]. Frekans artışıyla beraber BNKT-ST ve BKT-ST malzemelerinde dielektrik kayıp miktarında azalış, BNT-ST malzemesinde artış olduğu görülmüştür. Bi Chen ve ark. yapmış olduğu çalışmada BNT seramik malzemeye BaTiO_3 ilavesi yapılmış, ST ilavesine göre artan frekans değerlerinde dielektrik kaybın daha az olduğu görülmüştür [21].

Tablo 4.2. Artan frekanslara bağlı dielektrik sabit ve dielektrik kayıp değerleri

Bileşimler	ϵ_r (1kHz)	ϵ_r (10kHz)	ϵ_r (100kHz)	ϵ_r (1000kHz)	$\tan\delta$ (%)
BNT-ST	673,46	657,46	649,15	642,87	2,7
BNKT-ST	967,18	906,60	879,35	863,46	2,9
BKT-ST	803,38	765,20	745,69	731,69	3,2



Şekil 4.10. Artan frekansa bağlı dielektrik sabiti değişimi



Şekil 4.11. Frekansa bağlı değişen dielektrik kayıp değerleri

BÖLÜM 5. SONUÇLAR

Yapılan çalışmada, SrTiO_3 tek kristal malzeme ilavesiyle elde edilen BNT seramik kompozitlerin yapısal faz analizleri incelenmiştir.

- a. SrTiO_3 tek kristal bileşiği bilyeli değirmende öğütme, etüvde kurutma ve fırınlama işlemleri yapılarak elde edilmiştir.
- b. BNT-ST, BNKT-ST ve BKT-ST malzemelerinin SEM analizleri benzer tane yapısına sahip olduklarını göstermiştir.
- c. BNT-ST bileşiminin %100 perovskit yapıda olduğu söylenebilir.
- d. Literatürdeki çalışmaların EDS analizleri bu çalışmadaki EDS analizlerini desteklemektedir.
- e. SrTiO_3 ilavesi ile BNT seramiklerin yoğunluklarının arttığı görülmüştür.
- f. ST ilaveli BNT seramiklerin BaTiO_3 ilaveli BNT seramiklere nazaran yoğunluğu arttırdığı görülmüştür.
- g. ST ilavesi yapılmış BNT seramik malzemelerin BaTiO_3 ilavesi yapılmış seramik malzemelere göre, artan frekans değerlerinde dielektrik kaybın daha fazla olduğu görülmüştür.
- h. Yapılan çalışmalar sonucunda literatürdeki kurşunsuz piezoelektrik seramik malzemelere benzer sonuçlar tespit edilmiştir. Literatürde BNT-ST ve BKT-ST kurşunsuz seramik malzemeler ile ilgili çalışmalara rastlanmıştır. BNKT-ST ile ilgili çalışmaya rastlanmamıştır.

KAYNAKLAR

- [1] Midilli, T. “Kurşun İçermeyen BNBT6 Piezoelektrik Seramiklerin Elektriksel Özellikleri Üzerine Fe_2O_3 , Nb_2O_5 Ve Ta_2O_5 İlavelerinin Etkisinin Araştırılması” Sakarya Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Yüksek Lisans Tezi, Ocak, 2020.
- [2] Jigong Hao, Wei Li, Jiwei Zhai , Haydn Chen, Materials Science & Engineering R 135, (2019), 1–57.
- [3] Alexander, R.D. Rawlings and J.M. Leaver, J.C. Anderson, K.D. Materials Science, 1990, Chapman and Hall, 4.Education, USA, 608-294.
- [4] Carter C.B. and Norton M.G. “Ceramic Materials- Science and Engineering”, Springer, 2007.
- [5] <http://malzemebilimi.net/seramikler.html> Erişim Tarihi: 08.08.2017.
- [6] Barsoum M.W. “Fundamentals of Ceramics”, IOP Publishing Ltd. 2003.
- [7] <http://malzemebilimi.net/ileri-teknoloji-seramikleri.html> Erişim Tarihi: 21.02.2022.
- [8] Öksüz K.E. “ BaTiO_3 Esaslı Seramiklere Çeşitli Oksit İlavelerinin Elektriksel Özellikler Üzerine Etkisi” Sakarya Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Doktora Tezi, Ocak, 2018.
- [9] Kingery W.D. Bowen H. K. and Uhlman D. R. “Introduction to Ceramics” John Wiley and Sons Inc., 1990.
- [10] William D. Callister, Jr. David G. Rethwisch, “Material Science and Engineering an Introduction”, Wiley, 2010.
- [11] Barsoum M.W. “Fundamentals of Ceramics”, IOP Publishing Ltd., 2003.

- [12] Berksoy, A. Bakır Oksit ve Lityum Oksit Katkılı Kurşunsuz Piezoelektrik Potasyum Sodyum Niyobatın Elektriksel Özelliklerinin İncelenmesi, Gebze Yüksek Teknoloji Enstitüsü, Mühendislik ve Fen Bilimleri Enstitüsü, Malzeme Bilimi ve Mühendisliği Anabilim Dalı, Yüksek Lisans Tezi, 2011.
- [13] Aksoy R. “BaCO₃-SrCO₃-TiO₂ Seraamik Tozlarından Mekanik Aktivasyonla Üretilen Elektro Seramiklerin Elektriksel ve Mikroyapısal Özelliklerinin İncelenmesi” Sakarya Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Yüksek Lisans Tezi, Ekim, 2017.
- [14] Uzun, M. Katı Hal Reaksiyonu ile Sentezlenen Ba_xSr_{1-x}TiO₃’in Elektriksel Özellikleri, Dumlupınar Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Seramik Mühendisliği Anabilim Dalı, Yüksek Lisans Tezi, 2005.
- [15] Özyoldaş, O. Production and Characterisation of Bi_{1,5}Zn_{0,92}Nb_{1,5}O_{6,92} Pyrochlore Ceramics With Precious Metal Oxide Additives, Marmara University, İnstitute For Graduate Studies In Pure and Applied Sciences, Departmen Of Metallurgical And Materials Science, 2010.
- [16] Zorlu, H. Katkılı Bi_{1,5}Zn_{0,92}Nb_{1,5}O_{6,92} Dielektrik Seramiklerinin Üretimi ve Karakterizasyonu, Marmara Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Fizik Anabilim Dalı, Fizik Programı, Yüksek lisans Tezi, 2009.
- [17] Yağız, Ö. Ayşe, B.- Y.Sedat A. Ebru M.A. Sci. Eng. 14(2004) OZ5172 (73-78)
- [18] S.-t. Zhang, A.B. Kouna, E. Aulbach, H. Ehrenberg, J. Rodel, Giant strain in Lead Free Piezoceramics Bi_{0,5}Na_{0,5}TiO₃-BaTiO₃- K_{0,5}Na_{0,5}NbO₃ System, Apply. Phys. Lett. 91 (2007) 112906
- [19] X. Liu, X Tan, Giant Strains in Non-Textured (Bi_{1/2}Na_{1/2})TiO₃- Based Lead-Free Ceramics, Adv. Malter. 28 (2016) 574-578
- [20] Lin, Y., Zhao S., Cai, N., Wu J., Zhou, X., Nan, C.W. 2003. Effects of doping Eu₂O₃ on the phase transformation and piezoelectric properties of Na_{0,5}Bi_{0,5}TiO₃-based ceramics. Material. Sci. and Eng. B, 99, 449-452
- [21] Bi Chen, Mengshu Niu, Zhanhui Peng, Xiaoshuang Qiao, Pengfei Liang, Zupei Yang , Xiaolian Chao, Materials Chemistry and Physics 256 (2020) 123639.
- [22] Carter C.B. and Norton M.G. Ceramic Materials- Science and Engineering Springer. 2007

- [23] Amei Zhang, Ruiyi Jing, Meng Zhuang, Hongping Hou, Leiyang Zhang, Jie Zhang, Xu Lu, Yangxi Yan, Honliang Du, Li Jin, “Nonstoichiometric Effect of A-site Complex Ions On Structural, Dielectric, Ferroelectric, And Electrostrain Properties of Bismuth Sodium Titanate Ceramics” *Ceramics International*
- [24] Shuangho Wu, Pan Chen, Jiwei Zhai, Bo Shen, Peng Li, Feng Li, “Enhanced Piezoelectricity and Energy Storage Performances of Fe-Doped BNT–BKT–ST Thin Film”, *Ceramics International* 44 (2018) 21289-21294
- [25] Gang Liu, Ying Wang, Guiyu Han, Jinghui Gao, Linjiang Yu, Mingyang Tang, Yang Li, Jinzhu Hu, Li Jin, Yan Yan, “Enhanced Electrical Properties and Energy Storage Performances of NBT-ST Pb-Free Ceramics Through Glass Modification” *Journal of Alloys and Compounds*, 2020, 154961
- [26] Peng Li, Baihui Liu, Bo Shen, Jiwei Zhai, Lingyu Li, Huarong Zeng, “Large Strain Response In Bi₄Ti₃O₁₂ Modified BNT-BT Piezoelectric Ceramics”, *Ceramics International* 43(2017) 1008-1021
- [27] Hai-Long Liu, Qing Liu, Jia-Jun Zhou, Ke Wang, Jing-Feng Li, Hang Liu, Jing-Feng Li, Hong Liu, Jing-Zhong Fang, “Grain Size Dependent Electrostrain in Bi_{1/2}Na_{1/2}TiO₃-SrTiO₃ Incipient Piezoceramics”, *Journal of the European Ceramic Society* 36 (2016) 2849–2853
- [28] Jean- François Trelcat, Christian Courtois, Mohamed Rguiti, Anne Leriche, Paul-Henri Duvihneaud, Triana Segato, “Morphotropic Phase Boundary in the BNT-BT-BKT System”, *Ceramics International* 38 (2012) 2823-2827
- [29] Thomas Schulz, Vignaswaran Veerapandiyan, Marco Deluca, Jörg Töpfer, “Synthesis and Properties of Lead-Free BNT-BT-xCZ Ceramics As High-Temperature Dielectrics”, *Materials Research Bulletin*. (2022), 111560
- [30] Pichitra Thawong, Chittakorn Kornham, Sasiporn Prasertpalichat, Supree Pinitsoontorn, Suphornpun Chootin, Thetachi Bongkarn, “Effect of Firing Temperatures on Properties of BNT-BCTZ-0.007 mol % BFCO Lead Free Piezoelectric Ceramics Synthesized By The Solid State Combustion Method” *Ceramics International* 43 (2017) S172-S181
- [31] Tataroğlu, A. 2013. Dielectric Permittivity, AC Conductivity and Electric Modulus Properties of Metal/ Ferroelectric/ Semiconductor (MFS) Structures. *Gazi University Journal of Science*, 26(3):501-508

ÖZGEÇMİŞ

Adı Soyadı : Nergis OĞUZ

ÖĞRENİM DURUMU

Derece	Eğitim Birimi	Mezuniyet Yılı
Yüksek Lisans	Sakarya Üniversitesi / Fen Bilimleri Enstitüsü / Metalurji ve Malzeme Mühendisliği	Devam ediyor
Lisans	Sakarya Üniversitesi / Mühendislik Fakültesi / Metalurji ve Malzeme Mühendisliği	2016
Lise	Şehit Üsteğmen Selçuk Esedoğlu Anadolu Lisesi	2011

İŞ DENEYİMİ

Yıl	Yer	Görev
2017-2017	Kardeşler Alüminyum	Proje Mühendisi

YABANCI DİL

İngilizce

ESERLER (makale, bildiri, proje vb.)

- Oğuz, N. (2022). Tek Kristal Perovskit Yapılı SrTiO_3 İçeren BNT Esaslı Seramik Kompozit Üretimi ve Özelliklerinin İncelenmesi. Metal Dünyası, 346, 52-56.