

T.C.
SAKARYA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**POLİMERİK TABANLI SPİNEL NANOKOMPOZİT
(Ni_{0.5}Zn_{0.4}Cu_{0.1}Fe₂O₄)_x(CoFe₂O₄)_{3-x} FERRİTLERİNİN
DİELEKTRİK VE İLETKENLİK ÖZELLİKLERİ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Salih AKBULUT

Enstitü Anabilim Dalı : FİZİK

Tez Danışmanı : Yrd. Doç. Dr. Erdoğan ŞENTÜRK

Ağustos 2011

T.C.
SAKARYA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

POLİMERİK TABANLI SPİNEL NANOKOMPOZİT
(Ni_{0.5}Zn_{0.4}Cu_{0.1}Fe₂O₄)_x(CoFe₂O₄)_{3-x} FERRİTLERİNİN
DİELEKTRİK VE İLETKENLİK ÖZELLİKLERİ

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Salih AKBULUT

Enstitü Anabilim Dalı : FİZİK

Tez Danışmanı : Yrd. Doç. Dr. Erdoğan ŞENTÜRK

Bu tez 05 /08/2011 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından Oybirliği/Oyçokluğu ile kabul edilmiştir.

Prof. Dr. İbrahim OKUR Yrd. Doç. Dr. Erdoğan ŞENTÜRK Yrd. Doç. Dr. Yılmaz UYAROĞLU
Jüri Başkanı Jüri Üyesi Jüri Üyesi







TEŞEKKÜR

Yüksek lisans tez konumun belirlenmesi, planlanması ve tez haline getirilmesinde en büyük paya sahip olan, çalışmamın her aşamasında bilimsel birikimlerinden ve deneyimlerinden istifade ettiğim danışman hocam Yrd. Doç. Dr. Erdoğan ŞENTÜRK'e,

İncelenen malzemelerin teminini sağlayan Doç. Dr. Yüksel KÖSEOĞLU'na ve Do Kyung Kim'e,

Ölçümler esnasında yardımcı olan Arş. Gör İsa ŞEKER'e ve Arş Gör Furkan ALAN'a,

Kıymetli arkadaşlarım araştırma görevlileri Battal Gazi YALÇIN, Halil ARSLAN, Emre TABAR, Emre DİL ve Tamer KAMIŞ'a,

Desteklerini her zaman yanımda hissettiğim aileme,

Ve varlığı ile bana maddi manevi güç katan değerli eşime sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

İÇİNDEKİLER

TEŞEKKÜR.....	ii
İÇİNDEKİLER.....	iii
SİMGELER VE KISALTMALAR LİSTESİ.....	v
ŞEKİLLER LİSTESİ.....	vii
TABLolar LİSTESİ.....	ix
ÖZET.....	x
SUMMARY.....	xi
BÖLÜM 1.	
GİRİŞ.....	1
BÖLÜM 2.	
MANYETİK MALZEMELER VE FERRİTLER.....	4
2.1. Manyetik Malzemelerin Sınıflandırılması.....	4
2.1.1. Diamanyetik malzemeler.....	4
2.1.2. Paramanyetik malzemeler.....	4
2.1.3. Ferromanyetik malzemeler.....	5
2.1.4. Antiferromanyetik malzemeler.....	5
2.1.5. Ferrimanyetik malzemeler.....	7
2.2. Ferritlerin Kristal Yapısı.....	8
2.2.1. Spinel ferritler.....	9
2.2.2. Garnet ferritler.....	11
2.2.3. Hegzagonal ferritler.....	12
2.3. Ferritlerin Sentezlenme Yöntemleri.....	13
2.4. Ferritlerin Kullanım Alanları.....	14
2.5. Bu Tez Çalışması Kapsamında İncelen Ferritler.....	17

2.5.1. (NiZnCu)Fe ₂ O ₄ kompleks ferrit.....	17
2.5.2. (CoFe ₂ O ₄) kobalt ferrit.....	17
BÖLÜM 3.	
DİELEKTRİK TEORİ	18
3.1. Giriş.....	18
3.2. Dielektrik Sabiti.....	18
3.3. Dielektrik Polarizasyon.....	20
3.4. Dielektrik Durulma.....	22
3.5. Dielektrik Durulma Mekanizmaları ve Modelleri	24
3.6. Elektriksel İletkenlik.....	31
BÖLÜM 4.	
DENEY SONUÇLARININ ANALİZİ.....	36
4.1. Numunelerin Hazırlanması.....	36
4.2. Dielektrik Ölçümler.....	37
4.3. Dielektrik Sabiti Analizi.....	37
4.4. Dielektrik Kayıp Faktörü Analizi.....	40
4.5. Dielektrik Durulma Analizi.....	46
4.6. Elektriksel İletkenlik Analizi.....	50
BÖLÜM 5.	
SONUÇLAR VE ÖNERİLER.....	57
KAYNAKLAR.....	59
ÖZGEÇMİŞ.....	64

SİMGELER VE KISALTMALAR LİSTESİ

ϵ'	: Dielektrik sabitinin gerçek kısmı
ϵ''	: Dielektrik sabitinin sanal kısmı
ϵ^*	: Kompleks dielektrik sabiti
ϵ_0	: Boşluğun dielektrik sabiti
μ_B	: Manyetik moment
ω	: Açısal frekans
$\tan\delta$: Dielektrik kayıp faktörü
α_e	: Elektronik polarizasyon
α_i	: İyonik polarizasyon
α_d	: Dipolar polarizasyon
τ	: Durulma zamanı
α	: Dielektrik dağılım parametresi
β	: Dielektrik eğrilik parametresi
ϵ_∞	: Yüksek frekanslardaki dielektrik sabiti
ϵ_0	: Düşük frekanslardaki dielektrik sabiti
δ	: Faz farkı
σ_{DC}	: DC iletkenlik
σ_{AC}	: AC iletkenlik
ν_{ph}	: Fonon frekansı
$\Delta\epsilon$: Dielektrik güç
A	: Numune alanı
A(t)	: Kutuplanabilirlik ölçüsü
C	: Kapasitans
CBH	: Enerji bariyeri ile ilişkilendirilmiş hoplama modeli
d	: Numune kalınlığı
D	: Yer değiştirme vektörü

E	: Elektrik alan
E_a	: Aktivasyon enerjisi
E_c	: Yükleme enerjisi
E_{yer}	: Yerel elektrik alan
G	: Kondaktans
H	: Madde içindeki manyetik alan
h	: Plank Sabiti
k	: Bariyer yüksekliği
k_B	: Boltzman sabiti
LFD	: Düşük frekans bağımlılığı
M	: Manyetizasyon
MLCI	: Çok katmanlı çip indüktörü
NCL	: Yaklaşık sabit kayıp
$N(E_F(T))$: Fermi enerji seviyesi civarında durumlar yoğunluğu
OLP	: Üstüste binen büyük polaron tünellemesi
$P(t)$: Polarizasyon
PEO	: Polipropilen oksit
PPO	: Polietilen oksit
QMT	: Kuantum mekaniksel tünelleme
R	: Hegzagonal yapı
R_{12}	: Siteler arası geçiş ihtimali
R_w	: Tünelleme mesafesi
S	: Spinel yapı
s	: İletkenlik kuvvet parametresi
SMD	: Sıva üztü cihazlar
SP	: Küçük polaron
W	: Potansiyel bariyeri yüksekliği
t	: Tünelleme bariyeri kalınlığı

ŞEKİLLER LİSTESİ

Şekil 2.1.	Süper deęiş tokuş mekanizması	7
Şekil 2.2.	Antiferromanyetik bir madde olan MnO'nun kristal yapısı.....	7
Şekil 2.3.	Farklı manyetik spin moment dizilimlerinin karşılık geldięi manyetik durumlar.....	8
Şekil 2.4.a	Spinel birim hücre	10
Şekil 2.4.b	Sekizyüzlü B sitesi (solda) ve dörtyüzlü A sitesi (saęda).....	10
Şekil 2.5.	Garnet ferrit birim hücrenin sekizde biri.....	11
Şekil 2.6.	Garnet birim hücrede yer alan katyon siteleri.....	12
Şekil 2.7.	M tipi BaFe ₁₂ O ₁₉ hegzagonal ferritinin birim hücresi.....	12
Şekil 2.8.	Sol tarafta sert, saę tarafta ise yumuşak bir ferritin histerezis eğrileri yer almaktadır.....	15
Şekil 3.1.	Yerelleşmiş sitelerdeki hoplayan yük taşıyıcılarının hareketi.....	21
Şekil 3.2.	Polarizasyon mekanizmaları ve etkin oldukları frekanslar.....	22
Şekil 3.3.	Yük taşıyıcı ve dipolar sistemlerin zamana karşı gösterdikleri davranış biçimleri.....	24
Şekil 4.1.	Soldan saęa sırasıyla 2A, 2B, 2C, 2D, 2E numuneleri için ε' nün frekans ve sıcaklıkla deęişim grafikleri.....	39
Şekil 4.2.	Soldan saęa sırasıyla 2A, 2B, 2C, 2D, 2E numuneleri için tanδ'nın frekans ve sıcaklıkla deęişim grafikleri.....	42
Şekil 4.3.	Soldan saęa sırasıyla 2A, 2B, 2C, 2D, 2E numuneleri için ε''nün frekansla ve sıcaklıkla deęişim grafikleri.....	45
Şekil 4.4.	Soldan saęa sırasıyla 2A, 2B, 2C, 2D, 2E numuneleri için 233 K ve 413 K de ε'' - ε' grafikleri.....	47
Şekil 4.5.	Soldan saęa sırasıyla 2A, 2B, 2C, 2D, 2E numuneleri için iletkenliğin frekansla ve sıcaklıkla deęişim grafikleri.....	51
Şekil 4.6.	2B, 2C, 2D, 2E numuneleri için lnσ _{DC} - 1000/T grafięi.....	53

Şekil 4.7.	Tüm numuneler için $N(E_F)$ 'nin sıcaklık ile değişimi.....	55
Şekil 4.8.	Oda sıcaklığında iletkenliğin ferrit oranına bağlı değişimi.....	56

TABLULAR LİSTESİ

Tablo 2.1.	Ferritlerin hazırlanmasında dört temel işlem.....	13
Tablo 2.2.	Bazı manyetik maddelerin direnç değerleri.....	16
Tablo 3.1.	Farklı durulma modellerinin öngördüğü ε'' - ε' grafikleri.....	30
Tablo 4.1.	Numunelerdeki malzemelerin katkı oranları.....	36
Tablo 4.2.	Tüm numuneler için hesaplanan α değerleri.....	49
Tablo 4.3.	Tüm numuneler için hesaplanan $\Delta\varepsilon$ değerleri.....	50
Tablo 4.4.	Numunelerin hesaplanan E_a değerleri.....	53
Tablo 4.5.	Bütün numuneler için farklı sıcaklıklarda hesaplanan s değerleri..	54

ÖZET

Anahtar kelimeler: Ferrit, Polimer, Nanokompozit, Dielektrik durulma, Elektriksel iletkenlik

Nanoboyutlarda malzeme tasarımı bilim ve teknolojinin birçok alanına olduğu gibi manyetizmaya da yeni bir soluk getirmiştir. Son yıllarda nanoboyutlarda tasarlanarak her açıdan daha verimli hale getirilen manyetik malzemeler günlük hayatta önemli ölçüde kullanılır olmuşlardır.

Ferrit polimer nanokompozitlerinin manyetik özellikleri sıklıkla araştırılmaktadır. Bu çalışma kapsamında ise içerisinde değişen oranlarda $\text{NiZnCuFe}_2\text{O}_4$ ve CoFe_2O_4 bulunan polimerik bir nanokompozitin dielektrik özellikleri araştırılmıştır. Ölçümler 1 Hz ile 1 MHz frekans aralığında ve 230 K ile 410 K sıcaklık aralığında gerçekleştirilmiştir. Elde edilen sonuçlar ışığında numunelerin durulma modeli Cole Cole modeline iletkenlik teriminin eklenmesi ile elde edilen ifade olarak belirlenmiştir. Serinin iletkenlik mekanizmasının açıklanabilmesi için QMT modeli önerilmiştir.

THE DIELECTRIC AND CONDUCTIVITY PROPERTIES OF POLYMERIC SPINEL $(\text{Ni}_{0.5}\text{Zn}_{0.4}\text{Cu}_{0.1}\text{Fe}_2\text{O}_4)_x(\text{CoFe}_2\text{O}_4)_{1-x}$ FERRITE NANOCOMPOSITES

SUMMARY

Key Words: Ferrite, Polymer, Nanocomposite, Dielectric relaxation, Electrical conductivity

Material design in nanoscale has given a great inspiration to magnetism like most of area of science and technology. Recently, materials which became more effective by designing in nanoscale, have been widely used in daily life.

Magnetic properties of polymeric ferrite nanocomposites are frequently investigated. However, in this study, the dielectric properties of a polymeric nanocomposite which include $\text{NiZnCuFe}_2\text{O}_4$ and CoFe_2O_4 in variable ratios, have been investigated. Measurements have been performed in the frequency range 1 Hz – 1 MHz and in the temperature range 230 K – 410 K. Due to the obtained results, the relaxation model of the samples have been defined as an equation which is Cole Cole model plus conductivity term. To explain the conductivity mechanism of the series the QMT model has been proposed.

BÖLÜM 1. GİRİŞ

Manyetizma, tarihi antik çağlara kadar uzanan eski bir olgudur. Öyle ki mıknatısın ilginç özelliklerinin daha o çağlarda gözlemlendiği bilinir. Manyetizma üzerine ilk çalışma 1600' lü yıllarda W. Gilbert tarafından yayımlanmıştır. Manyetizma alanında bu tarihten sonraki ilk ciddi ilerleme 1825'de H.C. Oersted'in manyetik alana elektrik akımlarının sebep olduğu gerçeğini ortaya koyması ile kaydedilmiştir. Daha sonraları İskoç fizikçi James Clerk Maxwell, 1855 yılında makroskobik alanlar cinsinden manyetizma ve elektrik arasındaki ilişkiyi ortaya koyan matematiksel denklemlerini yayınlamış, böylece sözgelimi akım yoğunluğu bilindiğinde üzerinden akım geçen bir telden belirli bir uzaklıkta oluşacak olan manyetik akı yoğunluğu kolayca hesaplanabilir hale gelmiştir. 20. Yüzyıla gelindiğinde Curie ve Weiss kendiliğinden manyetizasyon olayını ve bu olayın sıcaklık bağımlılığını açıklığa kavuşturmuşlardır [1].

Tüm bu gelişmeler manyetizma alanında yeni keşiflere, modellere ve teorilere kapı aralamış, ardından manyetizma uygulamalarında kullanılan manyetik maddeler büyük bir ivme ile günlük hayattaki yerlerini almışlardır. Manyetik malzemeler günlük hayatı kuşatmış durumdadırlar. AC ve DC motorları (modern bir arabada 20 taneden fazla DC motoru bulunmaktadır), güç dağıtım sistemleri, görüntü ve ses uygulamaları, bilgi teknolojileri (özellikle bilgi depolama sistemleri), iletişim teknolojileri, sağlık sektörü manyetik malzemelerin kullanıldığı alanlardan sadece bazılarıdır [2].

Tüm bunların yanı sıra özellikle son yıllarda nanoboyutlarda malzeme tasarımı, bilim ve teknolojinin diğer birçok alanına olduğu gibi manyetizmaya da yeni bir soluk getirmiştir. Geleneksel malzemeler mikron boyutundan santimetre boyutuna kadar değişebilen tanecik büyüklüğüne sahiptirler. Nanomalzemeler ise 100 nm'den daha küçük tanecik büyüklüğüne sahiptirler. Nanomalzemeleri iki kategoride incelemek

mümkündür. Tanecik boyutları 1 nm ile 10 nm arasında değişen malzemeler quantum noktaları kategorisinde incelenirken, 10 nm ile 100 nm arasında bir tanecik boyutuna sahip olan malzemeler ise nanotüpler veya nanokablolar kategorisinde yer alırlar. Tanecik boyutundaki bu küçülmenin bir sonucu olarak malzemeler güçlü fiziksel özellikler gösterirler [3]. Bilgi teknolojileri alanında büyük ilerlemelere sebep olan büyük manyetodirençlerin keşfinin, nanomanyetizma alanındaki gelişmelerin bir neticesi olması nanoteknolojinin manyetizma üzerine olan etkilerini göstermektedir [4].

Manyetik malzemeler içerdikleri manyetik momentlerin dizilişine göre farklı gruplara ayrılırlar. Manyetik momentleri birbirlerine paralel dizilen malzemeler ferromanyetik malzemeler, manyetik momentleri birbirlerinin etkisini yok edecek şekilde zıt dizilen malzemeler ise antiferromanyetik malzemelerdir. Manyetik momentleri birbirlerine zıt dizilen, ama birbirlerinin etkisini tam olarak götürmeyen malzemeler ise ferrimanyetik malzemeler olarak bilinirler. Ferritler ferrimanyetik özellik gösteren malzemelerin genel adıdır [5].

Manyetik malzemeler içinde ferritler, yalıtkanlık özellikleri itibarı ile öne çıkarlar. Hatta ferritleri yarı iletken ferromanyetik malzemeler olarak adlandırmak da mümkündür. Ferromanyetik malzemelerden daha yüksek direnç değerine sahip olduklarından dolayı özellikle düşük kayıplı manyetik malzeme gereksinimi duyulan teknolojik uygulamalarda ferritler ön plana çıkmaktadırlar [2].

Ferritlerin fiziksel özellikleri sentezlenme yöntemlerine kuvvetli biçimde bağlıdır. Bu konuda toz hazırlama için kimyasal çökeltme, sol jel gibi metotlara, sinterleme için ise mikrodalga sinterlemesi, sıvı hal sinterlemesi gibi metotlara sıklıkla başvurulmaktadır. Bu metotlar içerisinde, kimyasal çökeltme metodu nanoboyutta parçacıklara sahip malzeme üretimi için oldukça yaygın kullanılmaktadır [5].

Ferritler elektromanyetik dalgaları emebilme özellikleri ile dikkat çekmektedirler. Yapılan araştırmalar ferritlere polimer eklenmesinin, ferritlerin elektromanyetik dalgaları emebilme özelliğini artırdığını ortaya koymaktadır. Son yıllarda makul

fiyatlara etkili elektromanyetik dalga emiciler elde edebilmek için ferrit polimer nanokompozit sistemler üzerinde durulmaktadır [6].

Malzemelerin dielektrik özellikleri, teknolojide kullanılabilirlikleri açısından son derece önemlidir. Bu nedenle teknolojide karşılığı olan malzemelerin dielektrik özelliklerini belirlemeye yönelik çok sayıda çalışma göze çarpmaktadır. Bu çalışma kapsamında da içerdiği ferrit oranı $(\text{Ni}_{0.5}\text{Zn}_{0.4}\text{Cu}_{0.1}\text{Fe}_2\text{O}_4)_x (\text{CoFe}_2\text{O}_4)_{3-x}$ formülüyle ifade edilen bir ferrit polimer nanokompozit sisteminin dielektrik özellikleri ayrıntılı olarak incelenecektir.

BÖLÜM 2. MANYETİK MALZEMELER VE FERRİTLER

2.1. Manyetik Malzemelerin Sınıflandırılması

Bütün malzemeler belirli bir derecede manyetik alanlardan etkilenirler. Bazı malzemelerde bu durum gözle bile açıkça görülebilirken, bazı malzemelerde bu etkiyi gözleyebilmek için hassas ölçüm aletlerine ihtiyaç duyulur. Malzemelerin manyetik alanlarda nasıl bir davranış sergileyeceği, atomik yapılarıyla ilgilidir. Manyetik alana verdikleri cevap açısından malzemeler 5 farklı grupta incelenirler.

2.1.1. Diamanyetik malzemeler

Diamanyetik malzemeler üzerlerine dış bir manyetik alan uygulanmadığı zaman, atom veya iyonları net bir manyetik momente sahip olmayan maddelerdir. Çünkü diamanyetik malzemelerin elektronları çiftler halinde bulunurlar. Bu malzemeler dış bir manyetik alana yerleştirildiklerinde, manyetik alana ters yönde zayıf bir şekilde mıknatıslanırlar. Başka bir deyişle diamanyetik malzemeler zayıf ve negatif bir duyunluğa sahiptirler. Buradan diamanyetik malzemelerin manyetik alana maruz kaldıklarında zayıf bir şekilde itileceği sonucu ortaya çıkar. Diamanyetik malzemelerin üzerlerindeki manyetik alan kaldırıldığında, hiç alan olmadığı hallerindeki durumlarına geri dönerler. Bakır, gümüş ve altın en çok bilinen diamanyetiklerdir [5].

2.1.2. Paramanyetik malzemeler

Paramanyetik malzemeler üzerlerine dış bir manyetik alan uygulanmadığında dahi, atom veya iyonları net bir manyetik momente sahip olan maddelerdir. Çünkü paramanyetik malzemelerin bazı elektronları çiftler halinde bulunmazlar. Bu malzemeler dış bir manyetik alana yerleştirildiklerinde manyetik alanla aynı yönlü ve

zayıf bir şekilde mıknatıslanırlar. Bu durum bu malzemelerin zayıf ve pozitif bir uygunluğa sahip oldukları manasına gelir. Paramanyetik malzemeler manyetik alana maruz kaldıklarında, alana doğru zayıf bir şekilde çekilirler. Paramanyetik malzemelerde de, manyetik alan kaldırıldığında malzeme eski durumuna geri döner [7]. Magnezyum, lityum ve alüminyum paramanyetik maddelere örnek olarak gösterilebilirler.

2.1.3. Ferromanyetik malzemeler

Ferromanyetik malzemeler, çiftler halinde bulunmayan elektronlarından dolayı atom ve iyonları net bir manyetik momente sahip olan maddelerdir. Dış bir manyetik alana maruz kaldıklarında, manyetik alanla aynı yönde güçlü bir şekilde mıknatıslanırlar. Pozitif ve büyük bir uygunluk değerine sahiptirler. Manyetik alan tarafından güçlü bir şekilde çekilirler [7]. Ferromanyetik malzemelerin güçlü manyetik özellikleri içlerinde buldukları manyetik domenlere atfedilmiştir. Bu domenler malzeme içerisinde çok büyük sayıda manyetik moment içeren bölgelerdir. Ferromanyetik bir malzemenin manyetize olmadığı bir durumda domenler gelişigüzel dizilirler. Bu durumda malzemenin net manyetik alanı sıfırdır. Malzemeye bir dış manyetik alan uygulandığında ise, domenler hep aynı yöne yönelirler ve malzeme etrafında güçlü bir manyetik alan oluşturur [8]. Demir, nikel ve kobalt iyi bilinen ferromanyetiklerdendir.

Ferromanyetik malzemelerin diğer bir önemli özelliği ise, üzerlerine uygulanan manyetik alan kaldırıldıktan sonra bile manyetizasyonlarını belli bir ölçüde koruyabilmeleridir. Bu durum histerezis eğrileri ile gösterilir. Ferromanyetik malzemelerin sıcaklığı arttıkça, belirli bir sıcaklıktan sonra paramanyetik malzemeler gibi davranmaya başlarlar. Bu sıcaklık Curie sıcaklığı olarak adlandırılır [9].

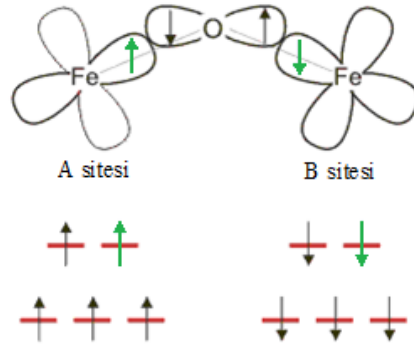
2.1.4. Antiferromanyetik malzemeler

Ferromanyetik maddelerde atom spinleri arasındaki etkileşim pozitifdir. Başka bir ifade ile manyetik domenlerdeki komşu spinler birbirlerine paralel bir şekilde dizilmişlerdir. 1932'de Neel tarafından yapılan araştırmalarda bazı alaşımlarda düşük

sıcaklıklarda çok düşük bir duygunluk değerine rastlanmıştır. Sıcaklık arttıkça bu tip maddelerde duygunluk değerinin belli bir sıcaklığa kadar arttığı, bu sıcaklıktan sonra ise paramanyetik malzemelerde olduğu gibi düştüğü gözlenmiştir. Bu tip alaşımlarda çok düşük sıcaklıklarda manyetik alan altında normal paramanyetik spin dizilimini engelleyen negatif bir değiş tokuş kuvveti vardır. Sıcaklık arttıkça bu kuvvet zayıflar ve Neel sıcaklığına ulaşıldığında negatif değiş tokuş etkileşimleri biter. Bu sıcaklıktan sonra spinler normal paramanyetik davranış gösterirler. Düşük sıcaklıklarda negatif değiş tokuş etkileşimleri gösteren maddeler antiferrmonayetikler olarak adlandırılırlar [5].

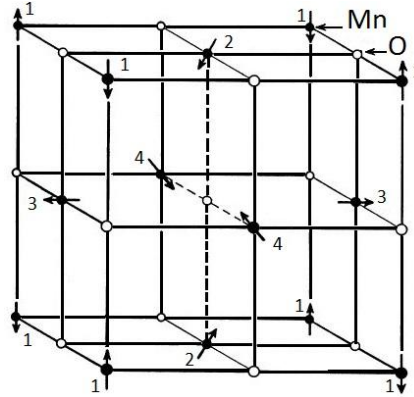
1948'de Neel oksitlerin manyetik davranışlarıyla ilgilenmeye başladı. Oksitlerdeki manyetik iyonlar sıkı paket oksijen örgünün aralıklarında yer almaktadır. Metal iyonları arasındaki mesafe çok büyük olduğundan, metal iyonları arasında elektronların direk değiş tokuş olma ihtimali çok düşüktür. Kramers 1934'de metal iyonları arasında, aralarda bulunan oksijen iyonları aracılığı ile bir elektron değiş tokuşunun olabileceğini önerdi. Neel kendisinin antiferromanyetizma üzerine olan teorisi ile Kramers'in dolaylı değiş tokuş üzerine olan fikirlerini birleştirerek antiferromanyetikler üzerine olan teorisini formülize etti. Anderson 1950'de bu teoriyi matematiksel bir temele oturtarak bu olayı süper değiş tokuş olarak adlandırdı [5].

Şekil 2.1 bu mekanizmayı göstermektedir. Buna göre oksijen iyonunda bulunan elektronlardan birisi, A sitesindeki metal iyonlarının çiftlenmemiş halde bulunan elektronlarından birisi ile etkileşebilir ya da bu ikisi arasında bir değiş tokuş durumu ortaya çıkabilir. Pauli dışarlama ilkesi gereği metal iyonundaki elektron ile oksijen iyonundaki elektronun çiftlenebilmesi için bu ikisinin spinleri birbirlerine zıt yönlü olmalıdır. Bu etkileşim sonucunda oksijen iyonunda çiftlenmemiş bir elektron kalır. Bu elektron, spini A sitesindeki zıt yönde olan B sitesindeki metal iyonunun çiftlenmemiş halde bulunan elektronlarından biri ile etkileşime girer. Oksijen iyonunun B sitesine verdiği elektronun spini A sitesine verdiği elektronun spini ile zıt yönlü olması gerektiğinden, açıkça A ve B sitelerindeki metal iyonlarının elektronlarının spinleri ters yönlüdür [5].



Şekil 2.1. Süper değiş tokuş mekanizması

Antiferromanyetik malzemelerin çoğu oksitlerden oluşmaktadır. Buna bir örnek olarak MnO verilebilir. Şekil 2.2 MnO'nun kristal yapısını göstermektedir [10].



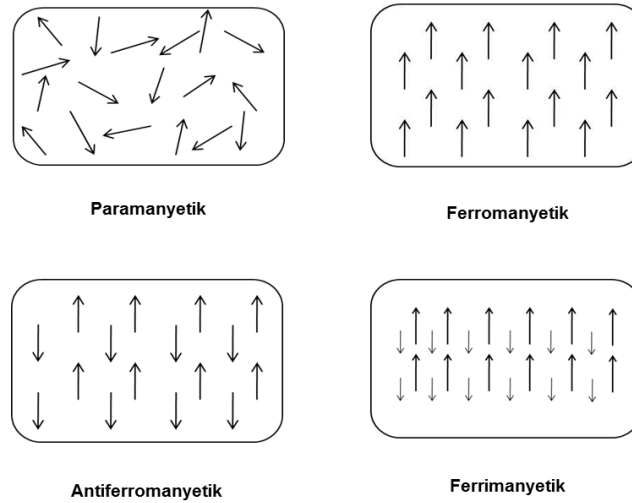
Şekil 2.2. Antiferromanyetik bir madde olan MnO'nun kristal yapısı [10]

2.1.5. Ferrimanyetik malzemeler

Neel antiferromanyetizma üzerine olan teorisini geliştirdiği sıralarda, Snoek Hollanda'da yeni bir oksit madde sınıfı keşfetti. Yüksek frekans uygulamalarında oldukça kullanışlı olan bu maddeler ferritler olarak adlandırıldı. Ferritlere örnek olarak aynı zamanda bilinen en eski manyetik malzeme olan mıknatıs taşı verilebilir. Mıknatıs taşının kimyasal formülü Fe_3O_4 'tür. Bu formül $\text{FeO} \cdot \text{Fe}_2\text{O}_3$ olarak da yazılabilir. Bu maddeye ait çiftlenmemiş elektron sayısı 14'tür. Bu nedenle maddenin manyetik momentinin $14\mu_B$ olması beklenir. Diğer taraftan yapılan deneyler sonucu maddenin manyetik momenti $4\mu_B$ olarak ölçülmüştür. Bunun üzerine Neel antiferromanyetik malzemeler üzerine olan teorisini içine ferritleri de alacak şekilde genişletmiştir. Ferritlerde de tıpkı antiferromanyetik malzemelerde

olduğu gibi iki farklı örgü sitesi ve bu sitelerdeki metal iyonları arasında negatif değiş tokuş etkileşimleri vardır. Feritlerin antiferromanyetik malzemelerden farkı ise birbirlerine karşıt sitelerde bulunan iyonların manyetik momentlerinin birbirlerine eşit olmayışdır. Bu eşit olmayış genellikle karşıt sitelerdeki manyetik iyon sayısının farklı olmasından kaynaklanır ve bu eşit olmayış sonucu maddenin net bir manyetik momenti olur. Bu durum ferrimanyetizma olarak adlandırılır [5].

Kısacası maddeler manyetik özelliklerine göre sınıflandırılırken öncelikle maddede çiftlenmemiş elektron olup olmadığına bakılmalıdır. Maddenin çiftlenmemiş elektronu yoksa spin manyetik momenti de yoktur ve madde diamanyetiktir. Eğer maddede spin manyetik moment var ise, bu manyetik momentlerin madde içinde nasıl dizildiği ve birbirleri ile olan etkileşimleri maddenin manyetik özelliklerini belirler. Şekil 2.3 farklı manyetik maddelerin sahip olduğu manyetik spin moment dizilimlerini göstermektedir.



Şekil 2.3. Farklı manyetik spin moment dizilimlerinin karşılık geldiği manyetik durumlar

2.2. Ferritlerin Kristal Yapısı

Bir ferritin kristal yapısı pozitif yüklü metal iyonları (Fe^{+2} , Mn^{+2}) ile negatif çift değerlikli oksijen iyonlarının (O^{-2}) birbirlerine kenetlenerek ağ yapmasına benzetilebilir. Manyetik seramiklerde farklı kristal yapılar oksijen iyonlarının farklı

dizilimlerinden kaynaklanırlar. Kristal yapılarına göre ferritler spinel, garnet ve hegzagonal olmak üzere 3 kısımda incelenirler [2].

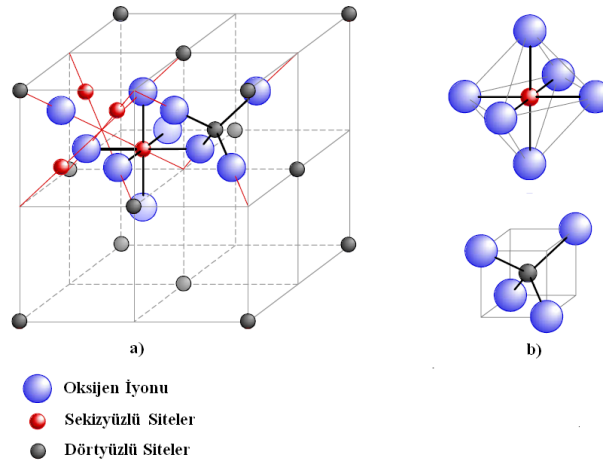
2.2.1. Spinel ferritler

Sıkı paket kübik yapıda kristalleşen ve genel formülü AB_2O_4 şeklinde olan malzemeler spinel malzemeler olarak bilinirler. Burada A, 2 değerlikli katyon, B ise 3 değerlikli katyondur. A ve B siteleri arasında negatif deęiş tokuş etkileşimleri mevcuttur. Malzemenin net manyetizasyonu bu iki sitedeki manyetik momentlerin farkına eşittir. Spinel ferritlerin kimyasal kompozisyonu $MeO.Fe_2O_3$ tür. Bu formüldeki Me, demir, mangan, magnezyum, nikel, çinko, kobalt, bakır, kadmiyum veya bu sayılanların birleşimi olan iki değerlikli bir metaldir [11].

Bir grup olarak spinel ferritler mıknatıs taşının (Fe_3O_4) çeşitli türevleri olarak görülebirlirler. Bu bölümde spinel yapılara iyi bir örnek olduęu için mıknatıstan etraflıca bahsedilecektir. Mıknatısta Fe atomlarından ikisi 3 değerlikli Fe^{+3} ve geri kalan teki ise 2 değerlikli Fe^{+2} iyonudur. Görüldüğü gibi her bir O^{2-} iyonuna iki Fe^{+3} ve bir Fe^{+2} iyonu düşer. Nötr bir demir atomunda 6 tane 3d elektronu vardır. Bu elektronlardan 4'ü çiftlenmemiş haldedir. Bağlanma esnasında Fe^{+3} iyonu iki 4s elektronunu ve bir 3d elektronunu kullanır ve bunun sonucu olarak Fe^{+3} 'de d kabuğunda 5 tane çiftlenmemiş elektron kalır. Fe^{+2} ise bağlanma esnasında iki 4s elektronunu kullanır ve d kabuğunda 4 tanesi çiftlenmemiş 6 elektron kalır. Fe^{+3} iyonları dört yüzlü A sitelerinin tamamına yerleşir, sekiz yüzlü B sitelerinin ise yarısına yerleşir. Fe^{+2} iyonları ise sekiz yüzlü B sitelerinin geri kalan yarısına yerleşir. Mıknatıs taşının net manyetik momentine 5 çiftlenmemiş elektronlu Fe^{+3} iyonları $5\mu_B$, 4 çiftlenmemiş elektronlu Fe^{+2} iyonları ise $4\mu_B$ 'lik bir katkı sağlayacaktır. Dört yüzlü sitelerdeki Fe^{+3} iyonlarından $-5\mu_B$, sekiz yüzlü sitelerdeki Fe^{+3} iyonlarından $+5\mu_B$ ve yine sekiz yüzlü sitelerdeki Fe^{+2} iyonlarından $+4\mu_B$ 'lik gelen katkılar sonucu Fe_3O_4 birim molekül başına $4\mu_B$ 'lik net bir manyetik momente sahip olur [12].

Mıknatıs üzerinden yukarıda da anlatılmaya çalışılan spinel yapıya ait birim hücre Şekil 2.4.a'da gösterilmiştir. Birim hücre 32 oksijen anyonu (toplamda -64 kulomb

yük), 16 üç değerlikli katyon (toplamda 48 kulomb yük) ve 8 iki değerlikli katyon içerir (toplamda 16 kulomb yük). Görüldüğü gibi birim hücredeki yük dengelenmiştir. Şekil 2.4.b ise spinel yapı içerisinde mevcut bulunan iki farklı kristalografik siteyi göstermektedir. Bu sitelerden bir tanesi dört oksijen iyonu tarafından çevrelenen dörtyüzlü A sitesidir. Diğeri ise altı oksijen iyonu tarafından çevrelenen sekizyüzlü B sitesidir [12].



Şekil 2.4. a. Spinel birim hücre

b. Sekizyüzlü B sitesi (solda) ve dörtyüzlü A sitesi (sağda) [12]

Spinel yapı normal spinel ve ters spinel olmak üzere ikiye ayrılır. Bir spinel yapının normal spinel veya ters spinel olmasını belirleyen faktör katyon dağılımının nasıl olduğudur. İki değerlikli bir katyon D harfi ile ve üç değerlikli bir katyon ise T harfi ile gösterilerek spinel yapıya ait bir katyon dağılımı $(D)[T_2]O_4$ şeklinde gösterilebilir. Bu gösterimde kare parantezler sekizyüzlü sitelerin, normal parantezler ise dörtyüzlü sitelerin kullanıldığını işaret eder. Başka bir deyişle bu gösterime sahip bir spinel yapıda iki değerlikli katyonların tamamı dörtyüzlü sitelerde, üç değerlikli katyonların tamamı ise sekizyüzlü sitelerde yer almaktadır. Bu normal spinel yapının sahip olduğu katyon dağılımıdır. Normal spinel yapıya $MgAl_2O_4$ ferriti örnek olarak verilebilir. Aynı kurallar kullanılarak ters spinel yapı $(T)[DT]O_4$ şeklinde gösterilebilir. Burada ise üç değerlikli katyonların yarısı dörtyüzlü sitelere, diğer yarısı ise sekizyüzlü sitelere yerleşmiştir. İki değerlikli katyonların tamamı ise sekizyüzlü siteleri kullanmaktadır. Açıkça görüldüğü gibi mıknatıs taşı ters spinel

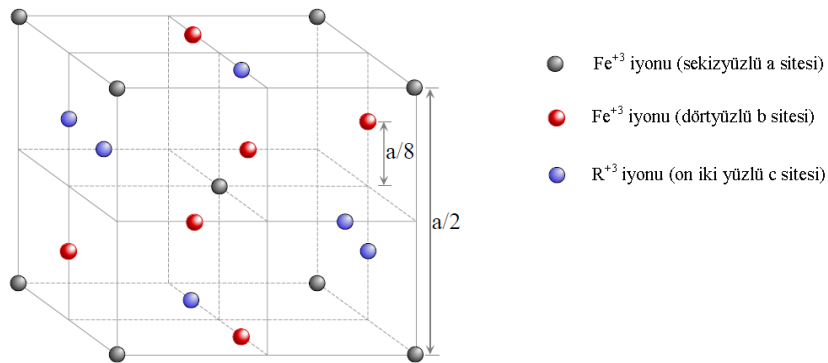
yapıdadır. Aynı zamanda ticari anlamda değerli olan ferritlerin birçoğu ters spinel yapıdadır [2].

Spinel yapıdaki ferritlerin fiziksel özellikleri yalnızca içerdikleri katyonların türüne değil, bu katyonların örgü içinde nasıl dağıldığına, maddenin normal spinel yapıda veya ters spinel yapıda olmasına da bağlıdır. Birçok durumda spinel yapının türü ferritin hazırlanış tekniğine, özellikle de sinterleme sonrası soğutulma hızına bağlıdır [2].

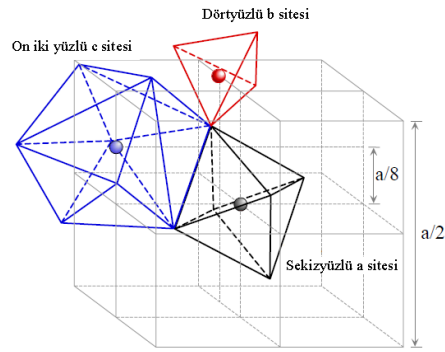
2.2.2. Garnet ferritler

Garnet ferritler ortorombik kristal yapıdadırlar. Bu tip ferritlerdeki katyonlar çok yüzlü oksijenler tarafından çevrenmiştir. Garnet ferritlerin genel formülü $R_3Fe_5O_{12}$ şeklindedir. Genel formül $3R_2O_3 \cdot 5Fe_2O_3$ şeklinde de yazılabilir. Burada R ya üç değerlikli nadir toprak katyonudur, ya da Y elementidir [2].

Garnet yapı sekizyüzlü (üç değerlikli katyonlar altı oksijen tarafından çevrenir), dörtyüzlü (üç değerlikli katyonlar dört oksijen tarafından çevrenir) ve on ikiyüzlü (üç değerlikli katyonlar sekiz oksijen tarafından çevrenir) sitelerin birleşmesi ile meydana gelir [13]. Garnet yapı bilinen en karmaşık kristal yapılarıdır. Öyle ki toplamda 160 iyonun yer aldığı garnet birim hücrenin gösterimi oldukça zordur. Bu nedenle Şekil 2.5’de garnet yapıya ait birim hücrenin yalnızca sekizde biri gösterilmiştir. Şekil 2.6’da ise bu birim hücre içerisinde bulunan üç farklı kristalografik siteler gösterilmektedir [12].



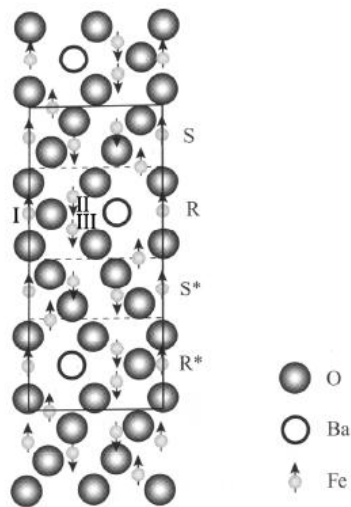
Şekil 2.5. Garnet ferrit birim hücrenin sekizde biri [12]



Şekil 2.6. Garnet birim hücrede yer alan katyon siteleri [12]

2.2.3. Hegzagonal ferritler

Hegzagonal kristal yapıya sahip olan ferrit grupları hegzaonal ferritler olarak adlandırılırlar. Hegzaonal ferritler M, W, Y ve Z serileri olarak adlandırılan dört farklı grupta incelenirler. Aslında sayılan bu seriler malzeme bileşiminin sırası ile 1:6, 3:8, 4:6, 5:12 oranlarında (BaO+MeO)/Fe₂O₃ maddelerinden oluşmasından ibarettir. Buradaki Me iki değerlikli bir katyon veya spinel yapıdaki gibi iki değerlikli birkaç katyonun birleşimi olabilir [14]. M tipi hegzaonal ferritlere aynı zamanda en iyi bilinen hegzaonal ferritlerden biri olan BaFe₁₂O₁₉ örnek olarak verilebilir. Şekil 2.7 ile gösterilen bu ferrite ait birim hücre sıralı olarak dizilmiş 4 bloktan oluşan 10 oksijen tabakası içermektedir. Bu bloklar sırası ile S (spinel), R (hegzaonal), S* ve R* yapılarıdır. S* ve R*, S ve R ile özdeş atomik dizilime sahiptir, ama S ve R nin c ekseninde 180° döndürülmüş halleridirler [15].



Şekil 2.7. M tipi BaFe₁₂O₁₉ hegzaonal ferritin birim hücresi [15]

2.3. Ferritlerin Sentezlenme Yöntemleri

Ferritler katı hal kimyasının hemen hemen bilinen bütün teknikleri ile sentezlenebilirler. Polikristal, ince film ya da tek kristal şeklinde hazırlanabilirler. Ferritlerin sentezlenmesinde bilinen en eski metot seramik metodudur. Son yıllarda ortaya çıkan birçok yeni metot, seramik metodun temel işlemlerinin geliştirilmesi esasına dayanır. Gerek seramik metot gerekse de yeni metotlar dört ana işlemde oluşurlar. Tablo 2.1 bu dört ana işlemi ve bu işlemler gerçekleştirilirken seramik metot ve yeni metotların uyguladığı teknikleri göstermektedir [2].

Tablo 2.1. Ferritlerin hazırlanmasında dört temel işlem [2].

Seramik Metot	Temel İşlemler	Yeni Metotlar
Ham Maddenin Öğütülmesi	Toz Hazırlama	Kimyasal Çökeltme Sol jel Metodu Yanmalı Bireşim Püskürtmeli Kurutma Dondurarak Kurutma
Tek Eksenli Presleme	Ön Maddenin Oluşturulması	İzostatik Presleme Döküm
Katı Hal Sinterlemesi	Sinterleme	Sıcak İzostatik Presleme Sıvı Hal Sinterlemesi Mikrodalga Sinterlemesi
Yüzey İşlemleri	Son Halin Verilmesi	Lazerle Tavlama

Seramik metotta toz hazırlanırken mineral oksit veya karbonat hammadde ezilir ve öğütülür. Bu metotla hazırlanan tozların tanecik büyüklükleri istenildiği ölçüde küçük olamayabilir. İdeal bir ferrit tozunda aranan özellikler aşağıdaki gibi sıralanabilir [2]:

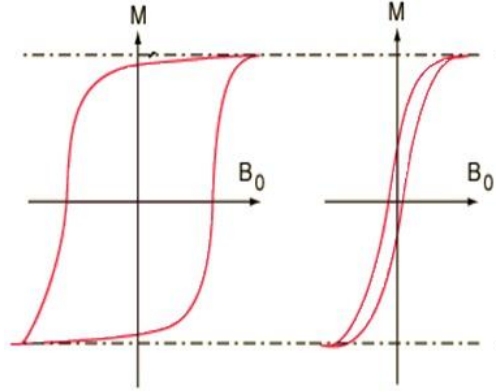
- Küçük tanecik büyüklüğü (mikron altı)
- Yüksek saflık
- Homojen bir bileşim
- Yayılmış parçacıklar

Yeni metotlar yukarıda sayılan özellikleri çoğu zaman karşılamaktadırlar. Yeni metotlarla hazırlanan tozların ortak özelliği karıştırılmanın atomik veya moleküler boyutlarda olmasıdır. Toz halindeki malzeme daha sonra yukarıda bahsedilen metotlar kullanılarak preslenir. Oluşan ön maddeye bu aşamadan sonra sinterleme işlemi uygulanacaktır. Sinterleme sıkıştırılmış bir tozu erime sıcaklığının altında belirli bir süre ısıtarak yoğun ve dayanıklı bir madde elde etme sürecine denir. Ama sıvı hal sinterlemesinde malzemenin küçük bir kısmının erimesine izin verilebilir. Sinterleme birçok değişkene bağlı karmaşık bir süreçtir. İdeal bir sinterleme süreci sonunda malzemedeki boşlukların tamamen elimine edilmesi ve yoğun bir madde elde edilmesi beklenir. Sinterlenen malzemeye son hali verilerek sentezleme işlemi tamamlanmış olur [2].

2.4. Ferritlerin Kullanım Alanları

Ferritler teknolojiye çok geniş kullanım alanlarına sahiptirler. Ferritler yumuşak ferritler ve sert ferritler olmak üzere iki kısımda incelenebilirler. Yumuşak ferritler üzerlerindeki manyetik alan kaldırıldığında çok düşük bir mıknatıslanmaya sahip olan ferritlerdir. Diğer taraftan sert ferritler üzerlerindeki manyetik alan kaldırıldığında dahi yüksek mıknatıslanmaya sahip olan ferritlerdir. Öyle ki sert ferritleri mıknatıssızlaştırmak için gerekli olan zorlayıcı kuvvet alanı 2000 Oersted civarlarında olurken, yumuşak ferritler için bu değer 0.5 ile 4 Oersted arasındadır [16]. Şekil 2.8 sert ferritler ile yumuşak ferritlerin histerezis eğrilerini temsili olarak göstermektedir. Sert ferritler otomobillerde marş motorlarında,

hoparlörlerde, yakıt pompalarındaki DC motorlarında, kredi ve ATM kartlarındaki manyetik şeritlerde kullanılırlar. Yumuşak ferritler ise manyetik kayıt ve veri saklama ortamlarında, telefonlardaki transformatörlerde, radyo ve televizyonlarda saptırma bobinleri, kanal arayıcı ve anten gibi birçok uygulamalarda kullanılmaktadırlar [17].



Şekil 2.8. Sol tarafta sert, sağ tarafta ise yumuşak bir ferritin histerezis eğrileri yer almaktadır

Ferritler, ferromanyetik malzemeler gibi pozitif ve büyük bir manyetik duygunluğa sahip olmasına karşılık, bu malzemelerden farklı olarak daha büyük elektriksel direnç özelliği gösteren malzemelerdir. Bu durum ferritlerin en önemli özelliği olarak gösterilebilir. Bu özelliğinin bir sonucu olarak ferritler yüksek frekans uygulamalarında kullanılacak en uygun malzemelerdendirler [18].

Manyetik bir madde bir manyetik alana maruz kaldığında madde içerisindeki manyetik momentler alan yönünde yönelirler. Eğer bu manyetik madde iletken ise ve manyetik alan zamanla değişen bir manyetik alan ise madde içerisinde girdap şeklinde bir indüksiyon akımı oluşur. Lenz kuralına göre oluşacak olan bu indüksiyon akımının yönü, kendisinin oluşmasına sebep olan değişen manyetik alandaki değişime ters yönde manyetik alan oluşturacak şekilde olur. Açıkça görüldüğü gibi bu akım madde içerisindeki enerjinin bir kısmının ısıya dönüşerek kaybolmasına ve manyetik malzemenin veriminin düşmesine sebep olacaktır. İndüksiyon akımı iletken malzemelerde yüksek, direnci yüksek malzemelerde ise düşük değerde olur. Bu ferritlerin yukarıda bahsedildiği gibi yüksek frekans uygulamalarında kullanılabilmek için uygun maddeler olmalarının temel sebebidir [19]. Tablo 2.2 bazı manyetik malzemelerin direnç değerlerini göstermektedir [5].

Tablodan da görüldüğü gibi ferritlerin dirençleri büyük iken, demir ve nikel gibi ferromanyetik maddelerin dirençleri çok küçüktür.

Tablo 2.2. Bazı manyetik maddelerin direnç değerleri [5]

Madde	Direnç (ohm.cm)
Zn Ferrit	10^2
Cu Ferrit	10^5
Fe Ferrit	4×10^{-3}
Mn Ferrit	10^4
NiZn Ferrit	10^6
Co Ferrit	10^7
İtriyum Demir Garnet	$10^{10} - 10^{12}$
Demir	9.6×10^{-6}
Nikel Demir	45×10^{-6}

Yüksek frekans uygulamalarında kullanılabilir ferritler mikrodalga ferritler olarak da adlandırılabilir. Bu ferritler mikrodalga cihazlardaki istenmeyen sinyallerin kesilmesinde kullanılırlar. Ayrıca üzerlerine düşen mikrodalgaları emebilme özelliklerinden dolayı radar gibi cihazlara yakalanması istenmeyen uçak gibi araçların yüzeylerinin kaplanmasında da yine bu ferritler kullanılırlar [20]. Son yıllarda ferritlerin mikrodalga emici özelliğinin artırılmasına yönelik çalışmalar büyük bir ivme kazanmıştır. Özellikle ferrit malzemelere polimer katılanmasının, bu malzemelerin mikrodalga emici özelliğini oldukça artırdığı gözlemlenmiştir. Yine bu kompozitlerin nanoboyutlarda inşa edilmesinin malzemenin hem manyetizasyonuna hem de direncine istenen yönde katkı yapabileceği gözlemlenmiştir [6].

2.5. Bu Tez Çalışması Kapsamında İncelenen Ferritler

2.5.1. (NiZnCu)Fe₂O₄ kompleks ferrit

NiZnCu ferritleri kolay hazırlanabilirliği ve geniş kapsamlı kullanılabilirliğinden dolayı ticari olarak oldukça önemlidirler. Düşük sıcaklıklarda sinterlenmiş NiZnCu ferritleri yüksek elektriksel iletkenlikleri ve yüksek frekanslardaki mükemmel yumuşak manyetik özelliklerinden dolayı çok katmanlı çip indüktörlerinde (MLCI) ve sıva üstü cihazlarda (SMD) sıklıkla kullanılırlar. Bu ferritler çok katmanlı LC filtrelerinin yapımında da kullanılırlar. Yapılan çalışmalar bu kompleks ferritteki Cu konsantrasyonunun artmasının sinterleme sıcaklığını düşürücü yönde etkisi olduğunu göstermiştir [21]. Düşük sıcaklıklarda sinterlenen NiZnCu ferritlerinin MLCI ve SMD uygulamalarında kullanılabilecek en optimum manyetik özelliklere sahip olabilmesinde soğutma hızının çok önemli bir faktör olduğu görülmüştür [22]. Yapılan literatür çalışmalarında bu ferrite özellikle Co ve Mn katyonu katkılayarak oluşacak yeni kompleks ferritlerin, ya da bu ferritin dielektrik özellik gösteren başka malzemelerle oluşturdukları bileşiklerinin son yıllarda önemli bir araştırma konusu olduğu görülmüştür.

2.5.2. (CoFe₂O₄) kobalt ferrit

Kobalt ferrit Co⁺² iyonları B sitelerine, Fe⁺³ iyonları ise A ve B sitelerine yerleşmiş ters spinel yapıda kübik bir ferrittir [22]. Manyetik nanoparçacıklar arasından kobalt ferrit yüksek elektromanyetik performansı, mükemmel kimyasal kararlılığı, mekanik sertliği ve yüksek kübik manyetokristal anizotropisi ile ön plana çıkmaktadır. Kobalt ferrit aynı zamanda yüksek zorlayıcı kuvveti ve yüksek manyetizasyonu ile bilinen en iyi sert ferritlerden biridir. Sayılan bütün bu özellikleri ile kobalt ferrit kalıcı mıknatıs uygulamalarında, manyetik kayıt uygulamalarında ve manyetik sıvılarda kullanılabilecek maddeler arasında iyi bir aday durumundadır [24]. Kobalt ferritin birçok manyetik özelliğinin, nanoparçacıklarının şekline ve boyutuna ve dolayısı ile malzemenin hazırlanma metoduna kuvvetli bir şekilde bağlı olduğu rapor edilmiştir [25]. Kobalt ferrit sayılan bu manyetik özelliklerine ilave olarak yüksek elektriksel direnci ve düşük dielektrik kayıpları ile de birçok araştırmaya konu olmuştur [26].

BÖLÜM 3. DİELEKTRİK TEORİ

3.1. Giriş

Malzemeler, üzerlerine uygulanan elektrik alana farklı şekilde cevap verirler. Bazı malzemelerde uygulanan elektrik alan sonucu elektronlar serbestçe hareket ederler. Elektriksel iletkenliği yüksek olan bu tip malzemeler iletkenler olarak adlandırılırlar. Yalıtkan ya da Faraday'ın deyiimi ile dielektrik malzemeler ise, uygulanan elektrik alana polarize olarak cevap verirler. Dielektrikler içerdikleri elektrik yüklerinin serbestçe hareketine izin vermeyen malzemelerdir. Bu tip malzemeler yalnızca elektrik yüklerinin denge konumlarından hafifçe kaymalarına izin verirler ki bu durum dielektrik polarizasyon olarak adlandırılır. Dielektrik polarizasyon sonucu pozitif yükler alan yönünde, negatif yükler ise alana zıt yönde hafifçe yer değiştirirler. Sonuç olarak dielektrik, molekülleri polarize olarak enerji depolayan maddelerin genel adıdır [27]. Dielektrik malzemelerin elektriksel iletkenlikleri 10^{-18} S/m ile 10^{-6} S/m aralığında değişebilir. Metaller ise yaklaşık 10^8 S/m mertebesinde bir iletkenliğe sahiptirler. Bazı malzemelerin ise uygulanan elektrik alana cevaplarının düşük seviyede bir iletim mi, ya da oldukça yavaş değişen bir polarizasyon mu olduğu tartışılabilir. Bu gruptaki malzemeler ise yarı iletkenler olarak adlandırılırlar. Önemli sayıda malzeme için elektriksel iletim ile dielektrik polarizasyon olgularını ayırt etmek mümkündür [28].

3.2. Dielektrik Sabiti

Her hangi bir dielektrik malzemenin dielektrik özellikleri kompleks bir büyüklük olan dielektrik sabiti ile tanımlanabilir. Kompleks dielektrik sabiti aşağıdaki gibi ifade edilebilir [28].

$$\epsilon^*(\omega, T) = \epsilon' - i\epsilon'' \quad (3.1)$$

Dielektrik sabitinin gerçek kısmı malzemenin yalıtkanlık özelliklerini, sanal kısmı ise iletkenlik özelliklerini gösterir. Dielektrik sabitinin gerçek kısmı malzemenin enerji depolayabilmesinin bir ölçüsüdür ve eşitlik 3.2 ile ifade edilir [28].

$$\varepsilon' = \left(\frac{C}{C_0} \right) = \left(\frac{Cd}{\varepsilon_0 A} \right) \quad (3.2)$$

Bu eşitlikteki C kapasitans, d ölçümü yapılan malzemenin konduğu plakalar arası mesafe, A plakaların alanı, ε_0 ise boşluğun dielektrik sabitidir. Dielektrik sabitinin sanal kısmı malzemedeki kayıpların bir ölçüsüdür ve denklem 3.3'de görüldüğü gibi iletkenlik ile doğru orantılıdır. İletkenlik bütün gerçek dielektrik malzemelerde vardır. Başka bir deyişle bir dielektrik malzemenin iletkenliği ne kadar büyükse malzeme de kayıplar o ölçüde fazladır [28].

$$\varepsilon'' = \left(\frac{G}{\omega C} \right) = \left(\frac{Gd}{\varepsilon_0 \omega A} \right) \quad (3.3)$$

Eşitlikteki G kondüktans olarak bilinir. Malzemenin uzunluk, alan gibi fiziksel parametrelerine bağlı olan iletkenliğidir. Bu noktada tanımlanması gereken ve pratik avantajları olan bir diğer parametre ise kayıp faktörüdür. Kayıp faktörü $\tan\delta$ ile gösterilir ve radyan başına dielektrikte harcanan enerjinin, dielektrikte polarizasyon pikinde depolanan enerjiye oranıdır [28]. Kayıp faktörü eşitlik 3.4 ile bulunur.

$$\tan\delta = \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'} \quad (3.4)$$

Malzemelerde kayıplar, elektronlar malzeme boyunca akarken çarpışmalar esnasında enerjinin ısıya dönüşmesinden ya da örgü titreşimlerindeki harmonik olmayan yapıdan kaynaklanabilir. Aslında farklı bir bakış açısıyla kayıplar iç ve dış olmak üzere iki kategoriye ayrılabilir. İç kayıplar malzemenin kristal yapısına ve uygulanan AC elektrik alan ile fonon etkileşimlerine dayanır. Dış kayıplar ise malzemedeki oksijen boşlukları gibi kusurlardan kaynaklanır. Sinterlenmiş palet yapısındaki

dielektriklerde kayıplar dış kusurlara oldukça bağlıdır, bu nedenle malzemedeki kayıplar sinterleme yöntemine göre değişmektedir [29].

3.3. Dielektrik Polarizasyon

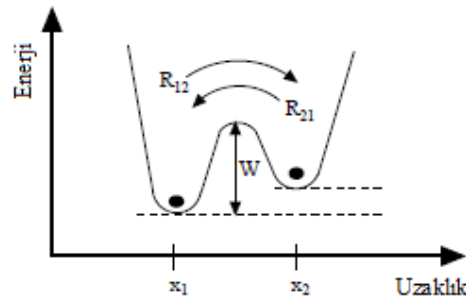
Polarizasyon dielektrik bir malzemedeki kalıcı veya indüklenmiş dipol momentlerin yoğunluğunu ifade eden bir vektör alanıdır ve $P(t)$ ile ifade edilir. Dielektrik bir malzemedeki polarizasyona sebep olan mekanizmaları incelemeye önce, polarizasyon ile iletkenlik arasındaki farkın iyice anlaşılması gerekmektedir. Polarizasyon elektrik alan altında yüklerin sonlu küçük yer değiştirmeler yapması hadisesi iken, iletkenlik elektrik alan altında yüklerin madde içerisinde sürekli hareket etmesi için kullanılan bir terimdir. Bu nedenle polarizasyon, malzemeye çok yüksek bir elektrik alan uygulanmadığı müddetçe iletkenliğe bir katkı sağlamayacaktır [30].

Bir dielektrik malzemedeki polarizasyon dört farklı mekanizmadan kaynaklanıyor olabilir. Bu mekanizmalardan en başta geleni elektronik polarizasyondur. Elektronik polarizasyon negatif elektron bulutunun merkezine pozitif atom çekirdeğine göre elektrik alan altında yer değiştirmesi olayıdır. Elektronik polarizasyonun dielektrik sabitine katkısı her zaman küçük değerlerde olur. İkinci polarizasyon mekanizması iyonik polarizasyondur ki, bu durum pozitif ve negatif iyonların birbirlerine göre yer değiştirmesidir. Dielektrik malzemelerdeki üçüncü polarizasyon mekanizması elektrik alan olmadığında dahi varlığını sürdürebilen kalıcı elektrik dipollerinin elektrik alan altında aynı yöne yönelmesi ile oluşan dipolar polarizasyondur. Kalıcı dipoller elektrik alan altında termal düzensizliğe ne derece karşı koyup tek bir yöne dizilebiliyorlarsa, malzemenin dipolar polarizasyonu o derece büyüktür. Polarizasyona katkı verebilecek son mekanizma ise yüzey yük polarizasyonudur [31].

Yüzey yük polarizasyonu kendi içerisinde ikiye ayrılır. Bunlardan birincisi Maxwell Wagner tipi polarizasyondur. Bu tip bir polarizasyon heterojen sistemlerde hareketli yük taşıyıcılarının yapısal yüzeylerde ya da yüzeyler arasında, toplanıp birikmesi ile malzemenin polarizasyonuna katkı sağlaması esasına dayanır. Yüzey yük polarizasyonunun ikinci çeşidi ise yük taşıma polarizasyonu olarak

adlandırılmaktadır. Bu polarizasyon ise yük taşıyıcılarının (elektronlar, protonlar gibi) yerleşmiş siteler arasında yaptıkları hoplama hareketi sonucu oluşur [32].

Yüzey yük polarizasyonunda bahsedilen yük taşıyıcıları indüklenmiş ve kalıcı dipoller ile serbest yükler arasında bir serbestiyete sahiptirler. Şekil 3.1 yerleşmiş sitelerde bulunan hoplayan yük taşıyıcılarının hareketini göstermektedir. Hoplayan yük taşıyıcıları zamanlarının büyük bir çoğunluğunu yerleşmiş sitelerde geçirmektedirler. Sıcaklığa yani ısısal titreşimlere ve siteler arası potansiyel bariyerine kuvvetli bir şekilde bağımlıdır. Siteler arası geçiş ihtimali R_{12} ve R_{21} , siteler arası uzaklığa ve potansiyel bariyerinin yüksekliği W 'ya bağlıdır [30].



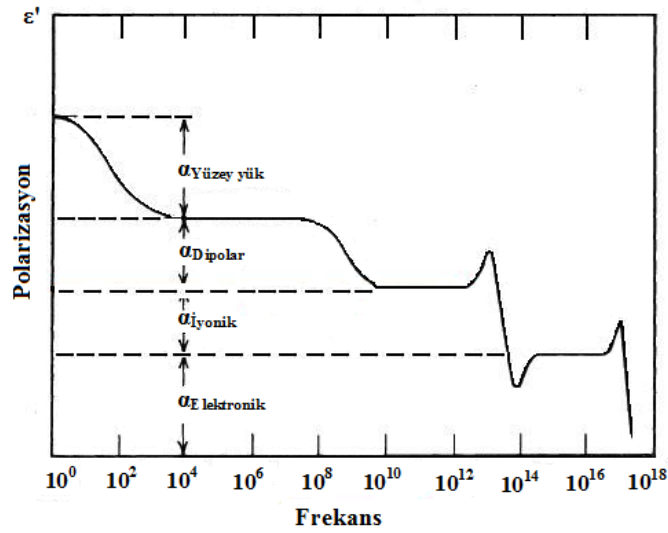
Şekil 3.1. Yerleşmiş sitelerdeki hoplayan yük taşıyıcılarının hareketi [30]

Elektronik polarizasyon bütün yalıtkan malzemelerde gözlenebilir. İyonik ve dipolar polarizasyon ise yalnızca sırasıyla iyonlara ve kalıcı dipollere sahip olan malzemelerde gözlenebilir. Diğer yandan yüzey yük polarizasyonu heterojen yapıdaki malzemelerde ve/veya yerleşmiş siteleri arasında hoplayan yük taşıyıcıları barındıran malzemelerde gözlenebilecek bir durumdur. Bu bilgiler ışığında malzemelerdeki toplam polarizasyon eşitlik 3.5 ile ifade edilebilir [28].

$$p_{\text{top}} = \alpha_e E_{\text{yer}} + \alpha_i E_{\text{yer}} + \alpha_d E_{\text{yer}} + \alpha_y E_{\text{yer}} \quad (3.5)$$

Bu eşitlikteki α_e , α_i , α_d , α_y sırası ile elektronik, iyonik, dipolar ve yüzey yük polarize olabilirliği belirtir. E_{yer} ise her bir molekül üzerindeki polarizasyona sebep olan etkin elektrik alandır. Sayılan bu polarizasyon çeşitlerinin her biri malzemede ancak belirli bir frekans aralığında varlığını sürdürebilir. Sadece elektronik polarizasyon

malzemede optik frekans bölgesinde mevcudiyetini korur. Frekans arttıkça sırası ile yüzey yük, dipolar ve iyonik (atomik) polarizasyonun kaybolduğu görünür. Şekil 3.2 dielektrik bir malzemede polarizasyonun frekans ile değişimini göstermektedir. Burada ϵ' polarizasyonun bir ölçüsüdür. Uygulanan elektrik alanın salıncı yapısından dolayı elektronik ve iyonik polarizasyonda frekansla meydana gelen değişim rezonans pikleri şeklinde olurken, yüzey yük ve dipolar polarizasyonda frekansla meydana gelen değişim kademeli bir yapıdadır. Bunun sebebi adı geçen polarizasyon mekanizmalarının farklı durulma karakteristiğine sahip olmalarıdır [33]. Durulma kavramı gelecek başlıklar altında incelenecektir.



Şekil 3.2. Polarizasyon mekanizmaları ve etkin oldukları frekanslar

Dielektrik bir malzeme durgun elektrik alan altında ise fiziksel özellikleri Clausius Mossotti denklemi çerçevesinde, AC elektrik alan altında ise dielektrik durulma spektroskopisi ile incelenir [28].

3.4. Dielektrik Durulma

Dielektrik bir malzemenin dış bir elektrik alana maruz kaldığında yüzey yük ve dipol polarizasyonlarının belirli bir zaman sonra denge konumuna gelmesine dielektrik durulma denir. Dielektrik durulma, dielektrik yer değiştirme vektörü $D(t)$ 'nin elektrik alan $E(t)$ 'deki değişime ayak uydurabilmek için sınırlı bir zamana ihtiyaç duyması gerçeğine dayanır [33]. Malzemenin denge konumuna gelmesi için gereken zaman

ise durulma zamanı olarak adlandırılır ve τ ile gösterilir. Zamanla değişen elektrik alana dielektrik malzemedeki yüzey yük polarizasyonuna yol açan hareketli yüklerin veya dipollerin verdiği doğrusal olmayan dinamik cevap incelenerek malzemenin karakteristik özellikleri hakkında bilgi sahibi olunabilir.

Dielektrik polarizasyon başlığı altında verilen Şekil 3.2’de, uygulanan elektrik alanın frekansının artmasıyla sırası ile dipolar, iyonik ve elektronik polarizasyon mekanizmalarının ortadan kaybolduğu görülmektedir. Bu durum elektronik ve iyonik polarizasyonda bir rezonans piki şeklinde kendini gösterirken, dipolar polarizasyonda daha geniş bir pik şeklinde ortaya çıkmaktadır. Buradan dipolar polarizasyonun diğer iki polarizasyonun aksine geniş bir durulma zamanı dağılımına sahip olduğu yorumu yapılabilir [33].

Her bir polarizasyon mekanizması kendine has farklı durulma zamanlarına sahiptir. Planck eşitliği kullanılarak elektronik ve iyonik hareketlerin gerçekleştikleri frekanslar tespit edilebilir ve buradan elektronik ve iyonik polarizasyonun durulma zamanına geçiş yapılabilir. Plank eşitliği denklem 3.6 ile verilmektedir [33].

$$E = hf = \frac{h\omega}{2\pi} \quad (3.6)$$

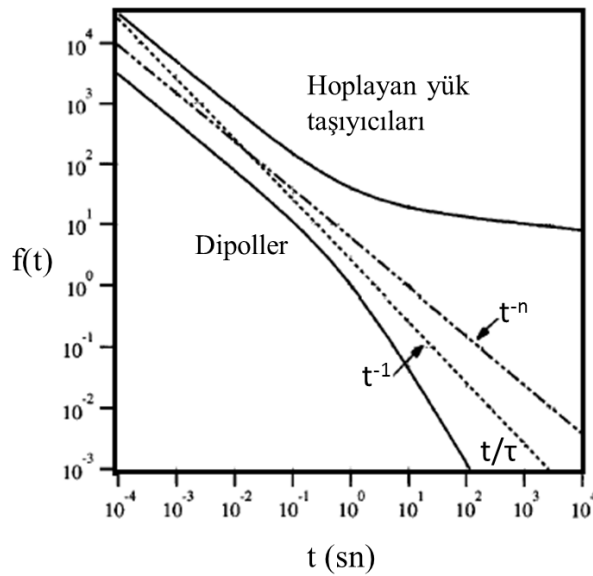
h Planck sabiti olup 6.626×10^{-34} J.s değerindedir, E ise ilgili parçacığın enerjisidir. Elektronik polarizasyon için $E=1$ eV olup, durulma zamanı τ_E yaklaşık 10^{-16} sn olarak, iyonik polarizasyon için ise $E = 10^{-4}$ eV olup, durulma zamanı τ_i yaklaşık 10^{-12} sn olarak hesaplanmaktadır. Şekil 3.1 incelendiğinde elektronik polarizasyon için rezonans pikinin 10^{16} Hz civarlarında, iyonik polarizasyon için ise 10^{12} Hz civarlarında olduğu görülmektedir. Dipolar polarizasyon için ise 10^{-9} ila 10^{-2} sn aralığında geniş bir durulma zamanı dağılımı olduğu görülmektedir [33]. Bilindiği üzere elektronların kütlesi iyonlarınkinden, iyonların ki ise dipollerinkinden daha küçüktür. Bu açıdan bakıldığında elektronik polarizasyonun durulma zamanının iyonik polarizasyonun durulma zamanından, iyonik polarizasyonun durulma zamanının ise dipolar polarizasyonunkinden küçük olması anlaşılabilir.

3.5. Dielektrik Durulma Mekanizmaları ve Modelleri

Malzemenin üzerine uygulanan elektrik alana verdiği cevabı anlamak ve bu cevabı malzemenin içyapısıyla ilişkilendirmek malzeme karakterizasyonunda oldukça etkili bir yöntemdir. Dielektrik durulma spektroskopisi adı verilen bu yöntemde, malzemenin moleküler dinamiğinin arkasındaki mekanizmayı anlamak ve bu mekanizmalara karşılık gelen modelleri belirlemek esastır.

Durulma, dielektrik malzemelerde genel olarak iki farklı mekanizmadan kaynaklanır. Malzemedeki durulma ya dipollerin, ya da yük taşıyıcılarının hareketlerinden kaynaklanıyordur. Dipollerin hareketlerinden kaynaklanan durulma geriye artık bir polarizasyon bırakmazken, yük taşıyıcıların hareketlerinden kaynaklanan durulma sonucu geriye sonlu, küçük bir polarizasyon kalır [34].

Bu iki farklı durulma mekanizması arasında, dielektrik davranışın zamana karşı çizildiği grafikler için Şekil 3.3 de görüldüğü gibi açık bir fark vardır. Şekilden dipolar durulmanın baskın olduğu malzemelerde artık polarizasyonun kalmaması, buna karşın yük taşıyıcılardan kaynaklanan durulmanın baskın olduğu malzemelerde ise küçük bir polarizasyonun kalması açıkça görülmektedir.



Şekil 3.3. Yük taşıyıcı ve dipolar sistemlerin zamana karşı gösterdikleri davranış biçimleri [35]

Bu iki farklı durulma mekanizması arasında, malzemenin dielektrik davranışının frekansa göre değişiminde de açık bir fark vardır. Dipolar durulma mekanizmasının baskın olduğu malzemelerde ϵ'' 'nin frekansa karşı grafiğinde kayıp pikleri gözlenirken, hoplayan yük taşıyıcılarının neden olduğu durulmalarda aynı grafikte kayıp piki gözlenmez [34].

Bir malzemenin durulma mekanizmasını inceleyerek, durulma modelini belirlerken iki farklı yol izlenebilir. Bunlardan birincisi ϵ' ve ϵ'' 'nin frekansa karşı log-log grafiklerinin ayrı ayrı ele alınarak incelenmesi, ikincisi ise ϵ'' 'nin ϵ' 'ne karşı grafiğinin incelenmesidir.

Çalışmanın bu kısmında önce dipolar durulma mekanizması için geliştirilen modeller ele alınacak, sonra da hoplayan yük taşıyıcılarından kaynaklanan durulma mekanizması incelenecektir.

Dipolar polarizasyonun baskın olduğu malzemelerin, uygulanan frekansa karşı verdiği cevabı anlamaya yönelik ilk çalışmalar Debye tarafından yapılmıştır. Bu modele ulaşmak için dielektrik yer değiştirme vektörü $D(t)$ nin toplanabilirlik prensibine göre yazıldığı eşitlik 3.7 başlangıç noktası olarak kabul edilebilir [35].

$$D(t) = \epsilon_{\infty} E(t) - (\epsilon_0 - \epsilon_{\infty}) \int E(x) \alpha(t-x) dx \quad (3.7)$$

Bu eşitlikte ϵ_0 düşük frekanslardaki dielektrik sabitidir, ϵ_{∞} ise yüksek frekanslardaki dielektrik sabitidir, $\epsilon_0 - \epsilon_{\infty}$ ise ölçülen dipolar polarizasyonun şiddetini belirten dielektrik güç terimidir. Debye modelinde α tek bir durulma zamanı içeren eksponansiyel bir bozunma fonksiyonudur ve eşitlik 3.8 ile verilmiştir.

$$\alpha(t) = \frac{1}{\tau_0} \exp\left(-\frac{t}{\tau_0}\right) \quad (3.8)$$

Eşitlik 3.8, eşitlik 3.7'de yerine konup, t' 'ye göre türev alınırsa eşitlik 3.9 elde edilir.

$$\tau_0 \frac{dD(t)}{dt} + D(t) = \tau_0 \epsilon_\infty \frac{dE(t)}{dt} + \epsilon_0 E(t) \quad (3.9)$$

Zamana bağılı elektrik alan $E(t)$ ve zamana bağılı dielektrik yer değiştirme vektörü $D(t)$ sırası ile eşitlik 3.10 ve 3.11 ile ifade edilsin.

$$E(t) = E_0 \exp(i\omega t) \quad (3.10)$$

$$D(t) = D_0 \exp i(\omega t - \delta) \quad (3.11)$$

3.10 ve 3.11'deki $D(t)$ ve $E(t)$ ifadeleri, 3.9 eşitliğinde yerine konulursa ϵ^* 'ın frekansla değişimini ifade eden Debye eşitliği bulunur [35].

$$\epsilon^* = \epsilon_\infty + \frac{\epsilon_0 - \epsilon_\infty}{1 + i\omega\tau_0} \quad (3.12)$$

Denklem 3.12 gerçek ve sanal kısımlarına ayrılabilir. Böylece Debye modelinde ϵ' ve ϵ'' nün frekansla değişimini ifade eden denklemler 3.13 ve 3.14'e ulaşılabilir [35].

$$\epsilon' = \epsilon_\infty + \frac{\epsilon_0 - \epsilon_\infty}{1 + \omega^2 \tau_0^2} \quad (3.13)$$

$$\epsilon'' = (\epsilon_0 - \epsilon_\infty) \frac{\omega\tau_0}{1 + \omega^2 \tau_0^2} \quad (3.14)$$

Gerçekte katılarda, özellikle de polimerik katılarda tek bir durulma zamanı yerine, durulma zamanlarının geniş bir dağılımı söz konusudur. Ayrıca Debye modeli oluşturulurken dipollerin kendi aralarındaki etkileşimleri ihmal edilmiştir. Bu nedenle Debye modeli pratikte katılarda ortaya çıkamaz [34].

Dipolar durulma mekanizmasını açıklayan modelleri Debye modeli ve Debye olmayan modeller diye ikiye ayırmak yanlış olmaz. Debye modeli olmayan modellerde, 3.16 denkleminin içerisine durulma zamanlarının genişlemesini ifade

eden bir α genişleme parametresi ve durulma pikinin simetriklikten sapmasını ifade eden bir β eğrilik parametresi eklenir. α ve β parametreleri yalnızca 0 ile 1 arasında bir değer alabilirler [36].

Bu noktada üç farklı durum söz konusudur. Eşitlik 3.15 Havriliak Negami modeli olarak bilinir ve hem α hem de β parametrelerinin Debye modeline eklenmesi ile elde edilir. Başka bir deyişle Havriliak Negami modelindeki durulma piki hem antisimetrik, hem de geniş bir piktir.

$$\varepsilon^* = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty}{[1 + (i\omega\tau)^\alpha]^\beta} \quad (3.15)$$

Havriliak Negami denklemi gerçekte ve sanal kısımlarına ayrılırsa sırası ile eşitlik 3.16 ve 3.17 elde edilir [37].

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_\infty + (\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty) \frac{\cos(\beta\varphi)}{\left\{1 + 2(\omega\tau_0)^\alpha \sin\left(\frac{\pi(1-\alpha)}{2}\right) + (\omega\tau_0)^{2\alpha}\right\}^{\beta/2}} \quad (3.16)$$

$$\varepsilon''(\omega) = (\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty) \frac{\sin(\beta\varphi)}{\left\{1 + 2(\omega\tau_0)^\alpha \sin\left(\frac{\pi(1-\alpha)}{2}\right) + (\omega\tau_0)^{2\alpha}\right\}^{\beta/2}} \quad (3.17)$$

3.16 ve 3.17 eşitliklerinde verilen φ , 3.18 eşitliğindeki gibidir [37].

$$\varphi = \arctan \left[\frac{(\omega\tau_0)^\alpha \cos\left(\frac{\pi(1-\alpha)}{2}\right)}{\left(1 + (\omega\tau_0)^\alpha \sin\left(\frac{\pi(1-\alpha)}{2}\right)\right)} \right] \quad (3.18)$$

Havriliak Negami modelindeki β nın 1'e eşit olduğu durum Cole Cole modeli olarak bilinir [38]. Cole Cole modeli, Debye modelindeki gibi simetrik ama daha geniş bir durulma piki öngörür. Yine Havriliak Negami modelindeki α 'nın 1 e eşit olduğu durum ise Cole Davidson modelidir [39]. Cole Davidson modeli ise antisimetrik bir durulma pikine karşılık gelmektedir. Cole Davidson modelinin karşılık geldiği durulma α tipi, Havriliak Negami modelinin karşılık geldiği durulma ise β tipi durulma olarak adlandırılabilir.

Eşitlik 3.19 ve 3.20 sırası ile Cole Cole ve Cole Davidson modellerini göstermektedirler. Eşitlik 3.16 ve 3.17 ile verilen Havriliak Negami denkleminin gerçek ve sanal kısımlarında β 'yı 1 yaparsak Cole Cole denkleminin, α 'yı 1 yaparsak Cole Davidson denkleminin gerçek ve sanal kısımlarını elde etmiş oluruz [38,39].

$$\varepsilon^* = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty}{1 + (i\omega\tau_0)^\alpha} \quad (3.19)$$

$$\varepsilon^* = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty}{(1 + i\omega\tau_0)^\beta} \quad (3.20)$$

Dipolar durulmanın baskın olduğu bazı malzemelerde, düşük frekanslarda bir DC iletkenlik gözlenebilir. Bu durumda malzemenin durulma modeli belirlendikten sonra, modele eşitlik 3.21 ile verilen terimin eklenmesi gerekir.

$$\frac{\sigma_0}{\varepsilon_0 (i\omega)^s} \quad (3.21)$$

Bu eşitlikte σ_0 düşük frekanslarda görülen DC iletkenliktir. s ise yalnızca 0 ile 1 arasında bir değer alabilen bir uyumluluk parametresidir. Eşitlik 3.22 ve 3.23, eşitlik 3.21'in sırasıyla gerçek ve sanal kısımlarına ayrılmış halidir. Modelin gerçek kısmına 3.22, sanal kısmına ise 3.23 eşitliği eklenir [37].

$$\frac{\sigma_0}{\varepsilon_0} \omega^{-s} \cos\left(\frac{\pi s}{2}\right) \quad (3.22)$$

$$\frac{\sigma_0}{\epsilon_0} \omega^{-s} \sin\left(\frac{\pi s}{2}\right) \quad (3.23)$$

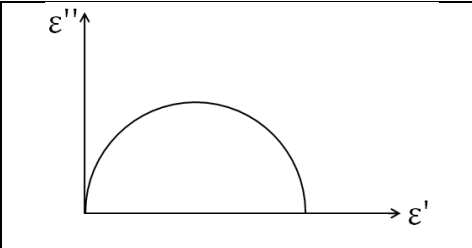
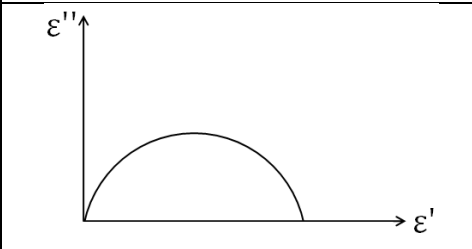
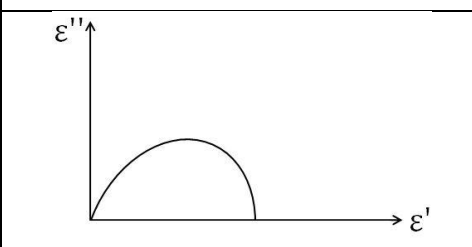
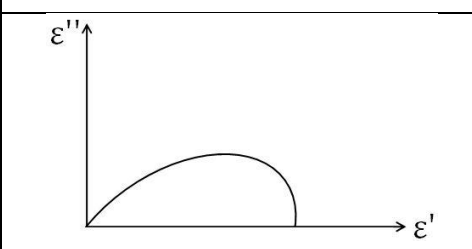
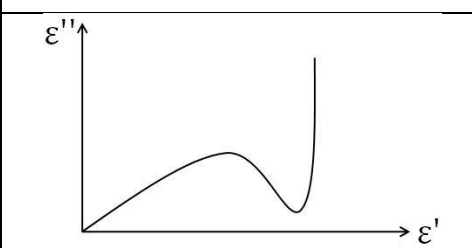
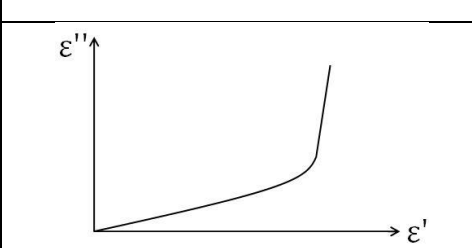
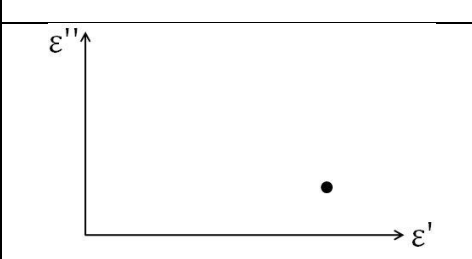
Dielektrik malzemelerde görülebilecek ikinci durulma mekanizması yavaş hareket eden yük taşıyıcılarından kaynaklanır [34]. Bu tip malzemelerde düşük frekanslardaki oldukça yüksek polarizasyon değeri dikkat çekmektedir. Bu durum Jonscher ve Frost tarafından 1976'da düşük frekans bağımlılığı (LFD) olarak adlandırılmıştır. LFD tipi bir davranışın fiziksel önemi, düşük frekanslarda polarizasyonda meydana gelen güçlü artışta yatmaktadır. Bu durum malzemede veya malzemenin ara yüzünde düşük frekanslarda sonlu ve geri döndürülebilir bir yük depolanması olacağı şeklinde okunabilir. Bu ise yük depolanmasının söz konusu olamayacağı DC iletkenlikten tamamen farklı bir durumdur. LFD tipi davranış gösteren dielektriklerde harcanan enerjinin depolanan enerjiye oranı tipik olarak 0.01 ile 0.1 arasındadır [39].

Tüm bunların yanı sıra özellikle düşük kayıplı malzemelerde düşük sıcaklıklarda ϵ' ve ϵ'' 'nin frekansla hemen hemen hiç değişmediği gözlenebilir ki, bu durum literatürde 'düz cevap' olarak adlandırılır [34].

Dielektrik durulma spektroskopisi ile malzeme karakterizasyonu yapılırken, öncelikle malzemenin uyduğu durulma modeli belirlenir, sonra eldeki deneysel verilerin teoriye uydurulması ile malzemeye ait fiziksel parametreler belirlenmeye çalışılır.

Tablo 3.1 içerisinde verilen şekiller farklı durulma mekanizmalarına karşılık gelen, $\epsilon'' - \epsilon'$ grafiklerini göstermektedir [28].

Tablo 3.1. Farklı durulma modellerinin öngördüğü ϵ'' - ϵ' grafikleri [28]

Debye Modeli	
Cole Cole Modeli	
Cole Davidson Modeli	
Havriliak Negami Modeli	
Dipolar + DC iletkenlik	
Hoplayan yük taşıyıcıları	
Düz Cevap	

3.6. Elektriksel İletkenlik

Düzensiz katılarda elektriksel iletkenlik mekanizmalarının incelenmesi malzemenin iç yapısına dair geniş bir bilgi birikimi sağlar. Bir malzemenin toplam iletkenliği eşitlik 3.24 ile ifade edilir [41].

$$\sigma_{\text{top}}(\omega, T) = \sigma(0, T) + \sigma_{\text{AC}}(\omega, T) \quad (3.24)$$

Eşitliğin sağ tarafındaki ilk kısım frekansa bağlı olmayıp yalnızca sıcaklıkla değişmektedir. Bu kısım DC iletkenlik olarak adlandırılır ve bant iletkenliğini temsil eder. Sağ taraftaki ikinci kısım ise hem frekansa hem de sıcaklığa bağlı olup, AC iletkenlik olarak adlandırılır ve uyarılmış iletkenliği temsil eder. AC iletkenlik genel olarak eşitlik 3.25 ile ifade edilebilir [41].

$$\sigma_{\text{AC}}(\omega, T) = A(T)\omega^{s(T)} \quad (3.25)$$

Bu eşitlik tüm katılarda frekansa bağlı iletkenlik için kullanılan evrensel bir ifadedir. Eşitlikteki $s(T)$ ve $A(T)$ malzemeye has, karakteristik parametrelerdir. s yalnızca 0 ile 1 arasında bir değer alabilir ve yük taşıyıcılarının birbirleri ile olan etkileşimlerinin bir ölçüsüdür. Debye tipi bir etkileşimde s yaklaşık olarak 1 değerinde, saf iyonik bir kristalde ise yaklaşık sıfır değerindedir. Buradan da anlaşılacağı gibi yük taşıyıcıları arasındaki etkileşim arttıkça s değeri düşer. $A(T)$ ise kutuplanabilirliğin bir ölçüsüdür [41]. s parametresinin sıcaklık ile değişimi incelenen malzemede iletkenliğin hangi şekilde gerçekleştiğini ortaya koyar.

Malzemelerin DC ve AC iletkenlik davranışlarını açıklayabilmek için çeşitli modeller önerilmiştir. Tezin bu kısmında önce DC iletkenlik, sonra da AC iletkenlik için önerilen modeller kısaca ele alınacaktır.

Malzemelerin DC iletkenliğinin açıklanması için çok sayıda model önerilmiş olmakla beraber burada sıklıkla kullanılan üç tanesinden bahsedilecektir. Bunlardan birincisi oda sıcaklığının üzerinde yük taşıyıcılarının olabildiğince faal olduğu

durumlar için kullanılan Arrhenius modelidir. Bu model DC iletkenliğin sıcaklık ile değişimi için eşitlik 3.26'yı önermektedir [42].

$$\sigma(T) = \sigma_0 \exp\left[\frac{-E_a}{k_B T}\right] \quad (3.26)$$

Bu eşitlikte E_a aktivasyon enerjisi, k_B Boltzman sabiti ve T malzemenin sıcaklığıdır. Buradaki E_a bir elektronun iletim sürecine katılabilmesi için aşması gereken potansiyel yüksekliği olarak görülebilir.

DC iletkenlik için önerilen ikinci model, Arrhenius modeline yapılan küçük değişikliklerle elde edilmiştir. Eşitlik 3.27 ile ifade edilen model hem polaron iletimi için, hem de iyonik iletim için kullanılabilir. Polaronlar, 'sanki parçacık' yapıdadırlar. Bir elektron ve bu elektrona eşlik eden, bu elektron etrafındaki bir örgü titreşiminden oluşurlar [42].

$$\sigma(T) = \sigma_0 \left(\frac{1}{T}\right) \exp\left[\frac{-E_a}{k_B T}\right] \quad (3.27)$$

Düşük sıcaklık bölgesinde ise (200 K'nin altında) Mott tarafından ortaya konan değişken mesafeli hoplama (VRH) modeli DC iletkenlik davranışını açıklamak için kullanılır. VRH modeli eşitlik 3.28'de gösterilmiştir [42].

$$\sigma(T) = \sigma_0 \exp\left[-\left(\frac{T_0}{T}\right)^{\frac{1}{4}}\right] \quad (3.28)$$

Burada T_0 karakteristik sıcaklıktır.

AC iletkenlik davranışları için de çeşitli modeller önerilmiş olmakla beraber, bu tez kapsamında en çok bilinenleri üzerinde durulacaktır. Malzemelerin AC iletkenlik modeli belirlenirken, s parametresinin sıcaklık ile nasıl değiştiğine ve bazı durumlarda değerinin ne olduğuna bakılır.

Kuantum mekaniksel tünelleme (QMT) modeline göre AC iletkenlik, Fermi enerji seviyesine yakın enerjili elektronların farklı değerlik bantları arasında tünelleme yapmasından kaynaklanır. QMT modelinin öngördüğü frekansa bağlı iletkenlik ifadesi eşitlik 3.29 da gösterilmiştir [43].

$$\sigma(\omega) = \left(\frac{\pi^4}{24} \right) \left(\frac{e^2 k_B T}{\alpha} \right) N^2 E_F \omega R_\omega^4 \quad (3.29)$$

Bu eşitlikte, e elektronik yük, $N(E_F(T))$ Fermi enerji seviyesine yakın olan durumların yoğunluğu, k_B Boltzman sabiti, α ise yerleşmiş durumların dalga fonksiyonlarının bozulma parametresidir (10 \AA^{-1} mertebesinde). R_ω ise tünelleme mesafesidir. Eşitlik 3.30 tünelleme mesafesini göstermektedir [43].

$$R_\omega = 2\alpha^{-1} \ln \left(\frac{1}{\omega \tau_0} \right) \quad (3.30)$$

Bu eşitlikteki τ_0 durulma zamanı olup, tersi fonon frekansı ν_{ph} 'ye eşittir. QMT modelinde s parametresi ise eşitlik 3.31 de gösterildiği gibi bulunur ve eşitlik 3.32 deki gibidir [43].

$$s = \frac{d \ln \sigma}{d \ln \omega} \quad (3.31)$$

$$s = 1 - \frac{4}{\ln \left(\frac{\nu_{ph}}{\omega} \right)} \quad (3.32)$$

Eşitlik 3.32 den da görüldüğü gibi QMT modelinde s parametresi sıcaklıktan bağımsız, frekansa bağımlıdır. Frekans arttıkça s değeri düşer. Ayrıca QMT modeli s parametresinin 0.81 civarında olmasını öngörür [43].

AC iletkenlik için ortaya konan bir diğer model enerji bariyeri ile ilişkilendirilmiş hoplama (CBH) modelidir. İlk olarak tek bir elektron hoplaması için Pike tarafından ortaya konan, daha sonra çift elektron hoplaması için Elliot tarafından genişletilen bu model, aralarında R kadar uzaklık bulunan iki komşu sitenin potansiyel bariyerlerinin üst üste binerek W_M 'den daha düşük bir etkin W potansiyeli oluşturması esasına dayanır. Başka bir deyişle bu modelde siteler arası mesafe R ile W etkin potansiyeli ilişkilidir. Eşitlik 3.33 bu ilişkiyi göstermektedir.

$$W = W_M - \frac{2e^2}{\pi\epsilon'\epsilon_0 R} \quad (3.33)$$

Burada ϵ' malzemenin dielektrik sabitidir. Eşitlik 3.34 CBH modeline göre iletkenliği ifade etmektedir [44].

$$\sigma_{\omega} = \left(\frac{\pi^3}{24} \right) N^2 \epsilon' \epsilon_0 \omega R_{\omega}^6 \quad (3.34)$$

Burada N paylaşılan sitelerin sayısı, κ dielektrik sabiti, R_w ise hoplama mesafesidir. R_w eşitlik 3.35 ile ifade edilebilir.

$$R_{\omega} = \frac{e^2}{\pi\epsilon'\epsilon_0} \left[W_M - k_B T \ln \left(\frac{1}{\omega\tau_0} \right) \right] \quad (3.35)$$

Bu eşitlikte W_M elektronun hoplayabileceği maksimum bariyer yüksekliği, τ_0 ise durulma zamanıdır [44]. Son olarak eşitlik 3.36'da CBH modeline göre s parametresi verilmiştir. Görüldüğü gibi s hem sıcaklığa hem de frekansa bağlıdır. Ve yine bu modele göre s parametresi sıcaklık arttıkça azalır [43].

$$s = 1 - \frac{6k_B T}{\left[W_M - k_B T \ln \left(\frac{1}{\omega\tau_0} \right) \right]} \quad (3.36)$$

AC iletkenlik için önerilen bir diğer model ise üst üste binmeyen küçük polaron tünellemesidir (SP). Bu model iletkenliğin değişimi için eşitlik 3.29 ile verilen QMT modelininkine benzer bir ilişki öngörür, ama bu modele göre tünelleme mesafesi ve s parametresi QMT modelininkinden farklıdır. Eşitlik 3.37 ve 3.38 sırasıyla SP modelinin ön gördüğü R_w ve s parametrelerini göstermektedir [43].

$$R_w = 2\alpha^{-1} \left[\ln \left(\frac{1}{\omega\tau_0} \right) - \frac{W_H}{k_B T} \right] \quad (3.37)$$

$$s = 1 - \frac{4}{\left[\ln \left(\frac{1}{\omega\tau_0} \right) - \frac{W_H}{k_B T} \right]} \quad (3.38)$$

Bu eşitliklerde W_H tünelleme yapılacak olan bariyerin yüksekliğidir. 3.38 eşitliğinden görüldüğü gibi s parametresi SP modeline göre sıcaklık arttıkça artmaktadır [43].

Değınilecek olan son model ise üst üste örtüşen büyük polaron tünellemesi modelidir (OLP). Bu model de ise s parametresi önce sıcaklık arttıkça azalır, belli bir değerden sonra ise sıcaklık arttıkça artmaya başlar [44].

BÖLÜM 4. DENEY SONUÇLARININ ANALİZİ

4.1. Numunelerin Hazırlanması

Tez kapsamında incelenen numuneler Toprak ve arkadaşları [45] tarafından kimyasal çökeltme metodu ile sentezlenmiştir. Bileşiklerin sentezlenmesine dair ayrıntılı bilgi, ilgili referansta yer almaktadır. Bileşiklerde değişen oranlarda iki farklı ferrit sistemi bulunmaktadır. Bu ferrit sistemlerinden bir tanesi $Ni_{0,5}Zn_{0,4}Cu_{0,1}Fe_2O_4$ genel formülü ile ifade edilen kompleks ferrittir. Diğeri ise $CoFe_2O_4$ genel formülü ile verilen kobalt ferrittir. Bileşik içerisinde adı geçen ferritlerin dışında belirli oranlarda Pluronic F87 NF adlı bir polimer ve grafit malzemesi eklenmiştir. Pluronic F87 NF, PPO-PEO-PPO dizisinden oluşan bir kopolimerdir. PPO, polietilen oksittir. PEO ise polipropilen oksittir.

İçerisinde kompleks ferrit ve kobalt ferritin farklı oranlarda karıştırıldığı 5 farklı numune incelenmiştir. Numuneler 2A, 2B, 2C, 2D ve 2E kodlarıyla adlandırılmıştır. Tablo 4.1 incelenen bileşiklerdeki maddelerin oranlarını göstermektedir.

Tablo 4.1. Numunelerdeki malzemelerin katkı oranları

	$Ni_{0,5}Zn_{0,4}Cu_{0,1}Fe_2O_4$	$CoFe_2O_4$	Pluronic F87 NF	Grafit
2A	0	3	0.3	0.75
2B	0.75	2.25	0.3	0.75
2C	1.5	1.5	0.3	0.75
2D	2.25	0.75	0.3	0.75
2E	3	0	0.3	0.75

4.2. Dielektrik Ölçümler

Numunelerin kesim işlemleri tamamlandıktan sonra tüm yüzeyleri özenle çok ince zımpara ile pürüzlerinde arındırılmıştır. Numunelerin kalınlıkları ve yüzey alanları dielektrik sabitinin gerçek ve sanal kısmının ve iletkenliğin hesabında kullanılmak üzere dijital bir kumpasla ölçülmüştür. Daha sonra tüm numunelerin dış yüzü gümüş pasta ile kaplanarak bir müddet kurumaya bırakılmıştır.

Ölçümler Novocontrol Alpha-N dielektrik empedans ölçüm sisteminde gerçekleştirilmiştir. Tüm ölçümler 1 Hz ile 1 MHz frekans aralığını logaritmik olarak bölen 46 ayrı frekansta ve 230 K ile 420 K sıcaklık aralığında gerçekleştirilmiştir. Tüm ölçümler esnasında numunelere 1V'luk bir dış gerilim uygulanmıştır.

4.3. Dielektrik Sabiti Analizi

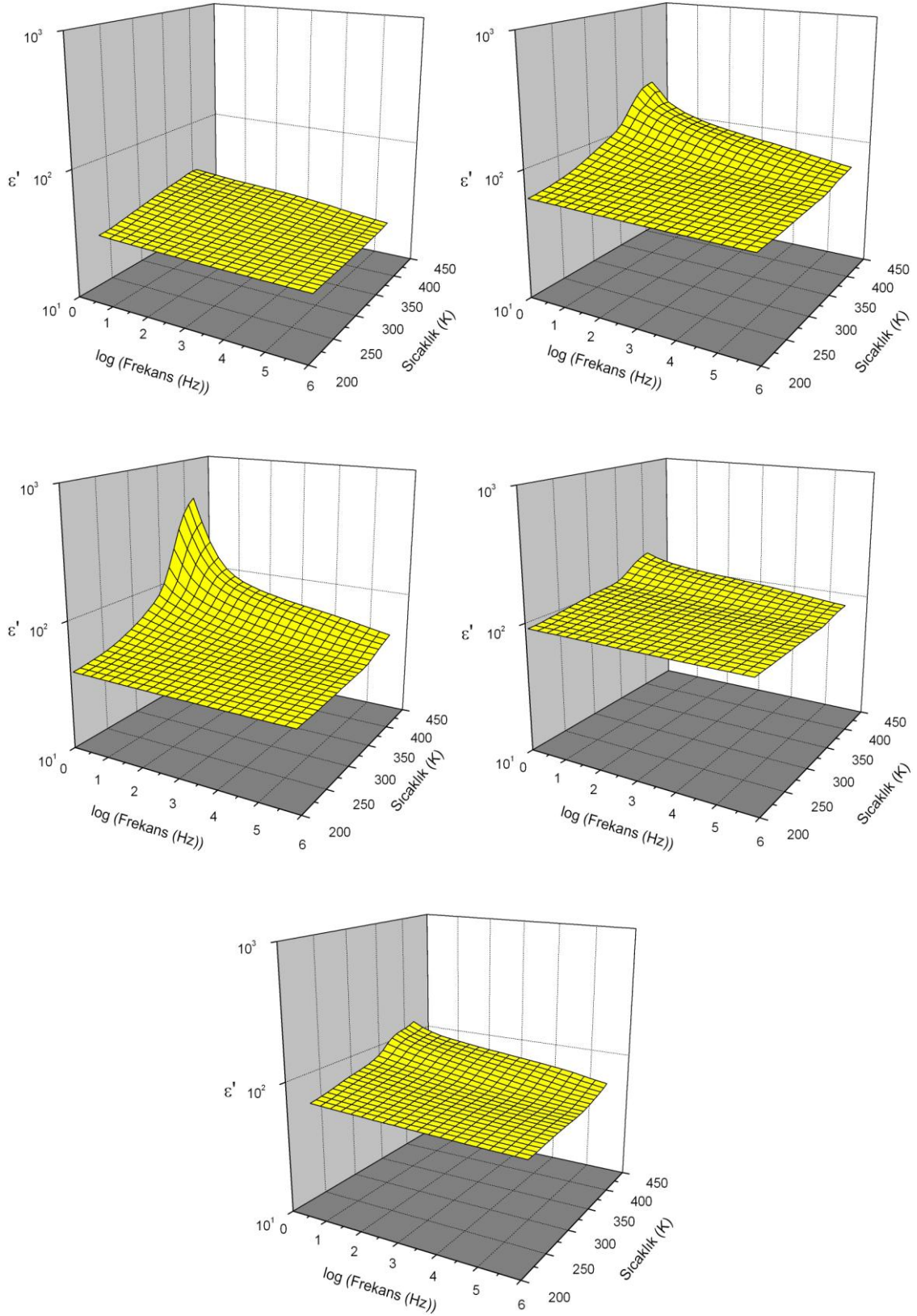
Şekil 4.1 tüm numuneler için dielektrik sabitinin gerçek kısmının frekans ve sıcaklık ile değişimini göstermektedir. Açıkça görüldüğü gibi tüm numunelerde beklendiği gibi frekans arttıkça dielektrik sabiti azalmaktadır. Bütün ferritlerde genel bir eğilim olarak ϵ' yüksek frekanslarda en sonunda sabit bir değer alır [46]. Numunelerde düşük frekanslarda ortaya çıkan yüksek ϵ' değeri, kompozit malzemelerin homojen olmayan dielektrik yapısına dayanan yüzey yük polarizasyonuna atfedilmiştir. Maxwell Wagner teorisine göre [47] heterojen yapıdaki dielektrik malzemeler iki tabakadan oluşurlar. Bu tabakalar oldukça yüksek dirence sahip ince tane sınırları ve bu sınırlarla ayrılmış oldukça iyi iletken durumdaki tanelerdir. Bu yapı elektrik alan altında yüklerin sınırda birikmesine yol açar. İşte yüzey yük polarizasyonunun sebebi biriken bu yüzey yüklerdir. Koops'un önerilerine göre düşük frekanslarda daha az iletken olan tane sınırları baskındır [48]. Buna karşılık yüksek frekanslarda ise daha iyi iletken olan taneler baskın durumdadırlar.

Bütün malzemelere elektrik alan uygulanması ile malzemenin polarizasyonunda, ya da başka bir deyişle dielektrik sabiti ϵ' 'ünde bir düşüş olması, daha önce de belirtildiği gibi, yüklerin üzerlerine uygulanan alana cevap vermek için zamana ihtiyaç duymaları gerçeğine dayanan durulma olayı ile açıklanır. Söz konusu ferrit

polimer nanokompozit sisteminde de metal iyonları arasında gerçekleşen deęiş tokuş etkileşimlerinde, elektronlar belirli bir frekanstan sonra elektrik alana uyum sağlayamadıklarından dolayı, dielektrik sabitinde bir düşüş gözlemlenmiştir denilebilir [49].

Dielektrik sabiti ϵ' 'nün sıcaklık ile deęişimi ele alındığında, sıcaklık arttıkça ϵ' 'nün de arttığı görülmektedir. Sıcaklığın polarizasyona etkisi düşük sıcaklıklarda az olurken, yüksek sıcaklıklarda kayda deęer seviyelerdedir. Ayrıca düşük frekanslarda sıcaklığın polarizasyona etkisi oldukça fazla iken, yüksek frekanslarda sıcaklığın polarizasyon üzerindeki etkisi yok denecek kadar azdır. Düşük sıcaklıklarda yük taşıyıcıları düşük ısısız enerjiye sahiptirler. Bu nedenle uygulanan elektrik alan yönünde kolayca yönelemezler. Bunun bir sonucu olarak da düşük sıcaklıklarda yük taşıyıcıları polarizasyona zayıf bir katkı sağlamaktadırlar. Bununla birlikte yüksek sıcaklıklarda yük taşıyıcıları uygulanan elektrik alanı takip edebilmek için yeterli ısısız enerjiye sahip olurlar. Böylelikle polarizasyona kuvvetli bir katkıları olur [50].

Herhangi bir dielektrik malzemede polarizasyona dört ana bileşenin katkıda bulunduğu bilinmektedir. Bunlar elektronik, iyonik, dipolar ve yüzey yük katkılarıdır [31]. Elektronik ve iyonik polarizasyonlar yüksek frekanslarda baskın ve sıcaklıktan bağımsızdırlar. Diğer taraftan dipolar ve yüzey yük polarizasyonları düşük frekanslarda baskın ve sıcaklığa kuvvetli biçimde bağımlıdırlar. Yüzey yük polarizasyonu ve dipolar polarizasyon birlikte ele alındığında, yüzey yük polarizasyonu, sıcaklık arttıkça ortaya çıkan kristal kusurlarından dolayı artar. Dipolar polarizasyon ise sıcaklık arttıkça azalma eğilimindedir. Dielektrik sabitinde özellikle düşük frekanslarda, sıcaklık ile gözlenen artış malzemede yüzey yük polarizasyonunun baskın bir şekilde bulunduğu dair bir gösterge olarak kabul edilebilir [51]. Bu bilgiler yüksek frekanslardaki hemen hemen sıcaklıktan bağımsız düşük ϵ' deęerine de bir açıklama getirmektedir.



Şekil 4.1. Soldan sağa sırasıyla 2A, 2B, 2C, 2D, 2E numuneleri için ϵ' nün frekans ve sıcaklıkla değişim grafikleri

4.4. Dielektrik Kayıp Faktörü Analizi

Bir dielektrik malzemenin karakterizasyonunda çok önemli olan bir diğer parametre ise kayıp faktörü $\tan\delta$ 'dır. Aynı zamanda $\tan\delta$, ferritik malzemelerin yüksek frekans uygulamalarında kullanılabilir olmasında belirleyici etkenlerden birisidir. Şekil 4.2 tüm numuneler için $\tan\delta$ 'nın frekans ve sıcaklık ile değişimini göstermektedir. Şekil dikkatlice incelendiğinde göreceli olarak yüksek ve düşük sıcaklıklarda iki ayrı davranışın olduğu görülmektedir.

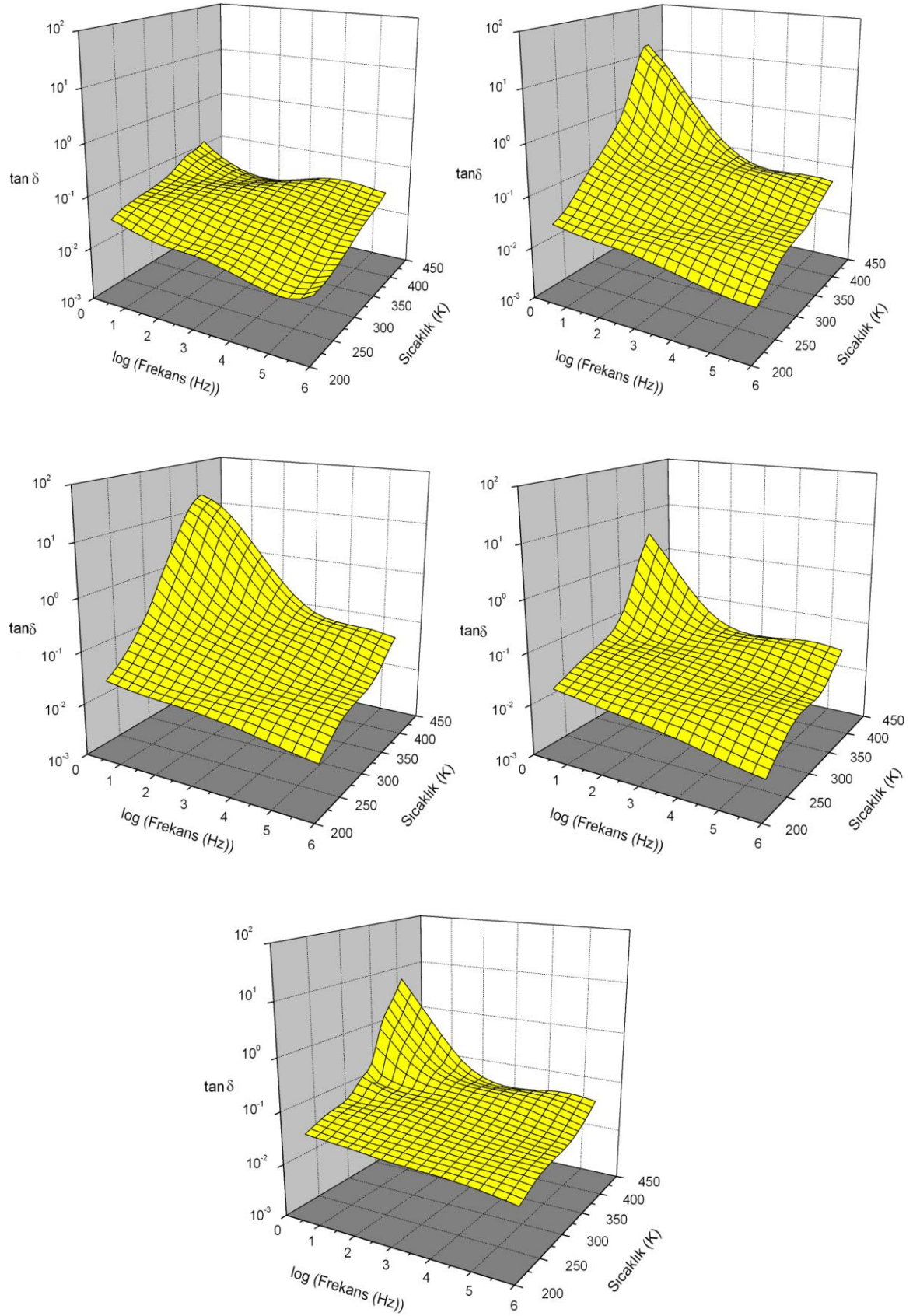
Göreceli olarak yüksek sıcaklıklarda, $\tan\delta$ artan frekans ile önce düşer. Frekansın artması ile gözlenen bu birincil düşüş, ϵ 'nin frekansla değişiminde olduğu gibi Koops'un modeli ile açıklanabilir [48]. Yüksek sıcaklıklarda ayrıca bu birincil düşüşten sonra, bazı frekanslarda rezonans pikleri olduğu görülmektedir. Bu piklerle ilgili olarak şöyle bir açıklama yapılabilir. Bir iyon A ve B gibi, bir potansiyel engeli ile ayrılmış ve eş potansiyel enerjili birden fazla denge konumuna sahip olduğunda, A dan B ye ya da B den A'ya hoplama olasılığı eşittir. İyon bu iki durum arasında konumunu sözü edilen olasılığa göre belirli bir frekansta değiştirir. Bu frekans doğal hoplama frekansı olarak adlandırılır. Uygulanan AC dış elektrik alanın frekansı, yük taşıyıcılarının sözü edilen doğal hoplama frekansına eşit olduğunda, bu rezonans pikleri oluşur. Bu ferritlerde oldukça sık karşılaşılan bir durumdur [51].

Bütün numuneler için rezonans piklerinin sıcaklıkta meydana gelen bir artış ile beraber daha yüksek frekanslara kaydığı görülmektedir. Bu durum şekil 4.2 üzerinde rahatlıkla görülmektedir. Buna ek olarak piklerin yükseklikleri de artan sıcaklık ile beraber artmaktadır. Yüksek sıcaklıklarda yük taşıyıcıları ısıl olarak aktif olduklarından, siteler arasında hoplama olasılıkları artar. Bu da doğal hoplama frekanslarının artması manasına gelir. Bu çerçeveden bakıldığında sıcaklıkla beraber rezonans piklerindeki yüksek frekanslara doğru olan kayma anlaşılmaktadır.

Şekil 4.2 dikkatle incelendiğinde bütün numuneler için iki farklı pikin olduğu görülmektedir. Bunlardan uzun olanı ana kıvrım, kısa olanı ise yavru kıvrım olarak adlandırılabilir. Bu iki kıvrım iki farklı durulmayı gösterir. Diğer taraftan bu

kıvrımlar birbirlerine paralel değildirler. Başka bir deyişle bu iki durulma farklı aktivasyon enerjilerine sahiptirler.

Dielektrik malzemelerde kayıplar iki durumdan kaynaklanabilirler. Bu durumlardan birincisi malzemenin elektriksel iletkenliğidir. İkincisi ise dipollerin elektrik alan altındaki yönelimi ile ilgili olan durulma olayıdır. Elektriksel iletkenlikten kaynaklanan kayıplar sıcaklık ile artar. Dipol yönelimlerinden kaynaklanan kayıplar ise sıcaklık ile azalır [51]. Bu çalışma kapsamında incelenen numunelerde kayıplar sıcaklık ile arttığından, kayıplara neden olan esas etkenin, elektriksel iletkenlik olduğu sonucuna varabiliriz.



Şekil 4.2. Soldan sağa sırasıyla 2A, 2B, 2C, 2D, 2E numuneleri için $\tan \delta$ 'nın frekans ve sıcaklıkla değişim grafikleri

Göreceli olarak daha düşük sıcaklıklar da ise hemen hemen frekanstan bağımsız bir kayıp faktörü davranışı gözlenmektedir. Bu davranış biçimi ‘düz kayıp’ olarak adlandırılır ve özellikle düşük kayıplı malzemelerde yaygın olarak görülür [28].

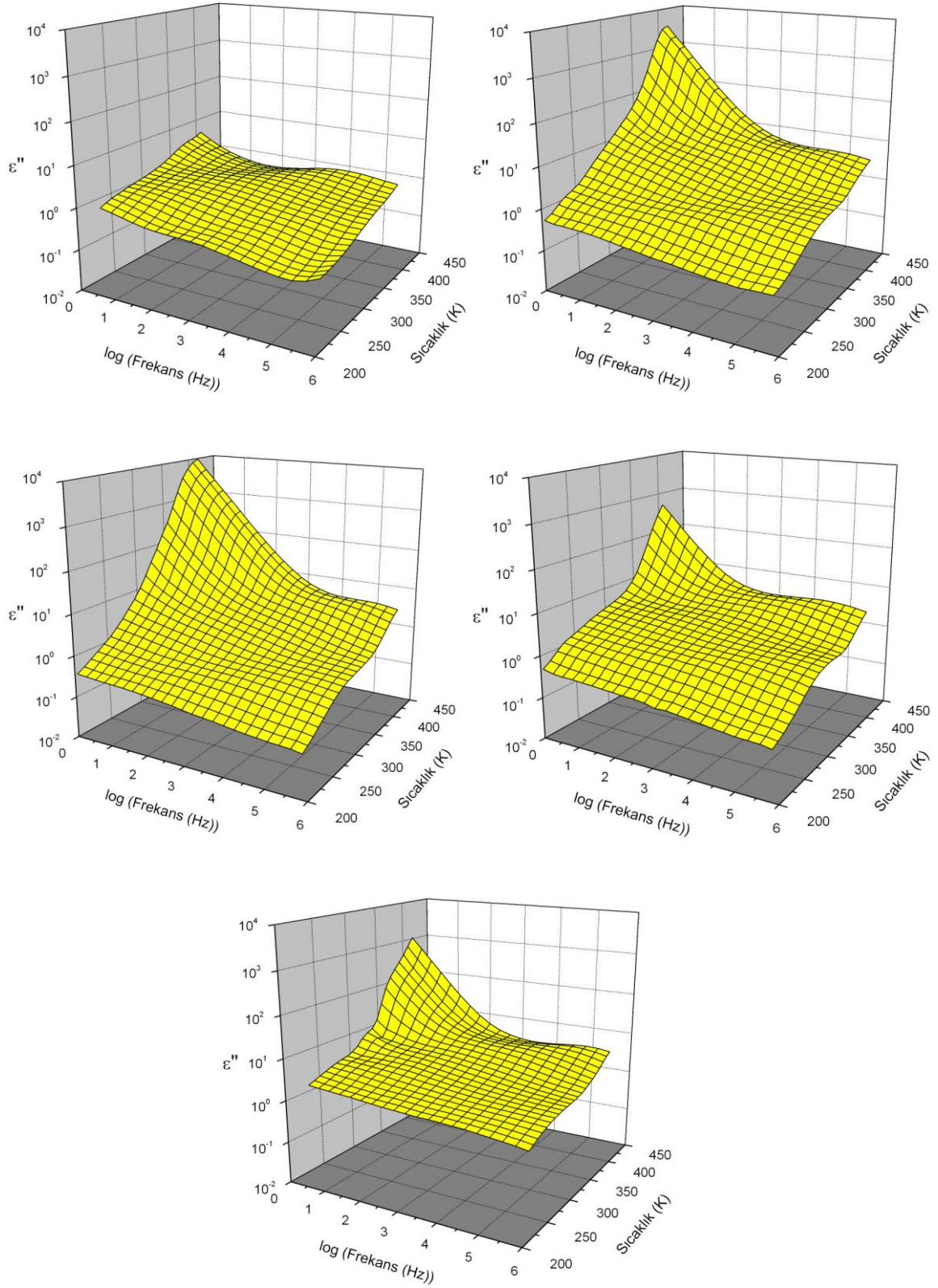
Bu tezde incelenen malzemedeki kayıpların ana nedeninin elektriksel iletkenlik olduğu belirtilmişti. Bu nedenle malzemenin frekansa bağımlı elektriksel iletkenliği incelendiğinde, düşük kayıp davranışı daha iyi anlaşılabilir. Malzemenin elektriksel iletkenliği detaylı bir şekilde bir sonraki başlık altında incelenecektir. Burada iletkenlik yalnızca kayıp mekanizmasını anlamaya yönelik olarak ele alınacaktır.

Bir malzemenin iletkenliği yeterince düşük sıcaklıklarda veya yeterince yüksek frekanslarda, frekansla lineer veya yaklaşık olarak lineer olarak değişiyorsa, bu şekilde ki bir davranış yaklaşık sabit kayıp davranışı (NCL) olarak adlandırılır [52]. Bu çalışmada malzemenin iletkenlik özellikleri incelenirken verilen Şekil 4.5 den de görülebileceği gibi iletkenlik frekansla genel olarak lineer değişmektedir. Düşük sıcaklıklarda ölçülen bütün frekans değerlerinde iletkenliğin frekansla lineer değişimi, düşük sıcaklıklarda NCL tipi bir kayıp davranışının baskın olduğunu göstermektedir. Bu daha önce ‘düz kayıp’ tanımlaması esnasında yapılan açıklama ile uyumlu bir durumdur. Yüksek sıcaklıklar incelendiğinde ise düşük frekanslarda, frekanstan bağımsız iletkenlik σ_{dc} 'nin baskın olduğu görülmektedir. Yüksek sıcaklıklarda düşük frekans bölgesinde ortaya çıkan bu durum NCL tipi kayıp davranışının sıcaklıkla azaldığını, başka bir deyişle kayıpların artmaya başladığını gösterir ki, bu durum Şekil 4.2 de de açıkça görülmektedir.

Yapılan bu son tartışmalar iletkenlik mekanizmaları ile kayıp davranışları arasındaki kuvvetli ilişkiyi açık bir şekilde ortaya koymaktadır. Hatta bu ikisinin ferritlerde ve ferritik malzemelerdeki polarizasyon mekanizmaları ile olan ilişkisi hakkında da ipuçları vermektedir.

Düşük kayıp davranışı gösteren malzemelerin bir başka özelliği de, A.K. Jonscher tarafından verilmektedir [28]. Düşük kayıplı malzemelerde ϵ'' 'nin frekansla dispersiyonu, ϵ''' 'nin frekansla dispersiyonu ile karşılaştırıldığında ihmal edilebilir seviyelerde ise, $\tan\delta$ 'nin frekans ile değişiminin ϵ''' 'nin frekansla değişimi ile benzer

şekilde olması beklenir. Tabi bu ikisinin frekansla deęişim eğilimleri aynı olurken, mutlak deęerleri kendi içlerinde farklılık gösterebilir. Şekil 4.3, ϵ'' 'nün frekansla ve sıcaklıkla deęişimini göstermektedir. Şekil 4.2 ve 4.3 birlikte deęerlendirildiğinde, $\tan\delta$ ve ϵ'' 'nün frekans ve sıcaklıktaki deęişimlere verdikleri cevapların benzer oldukları görülecektir.

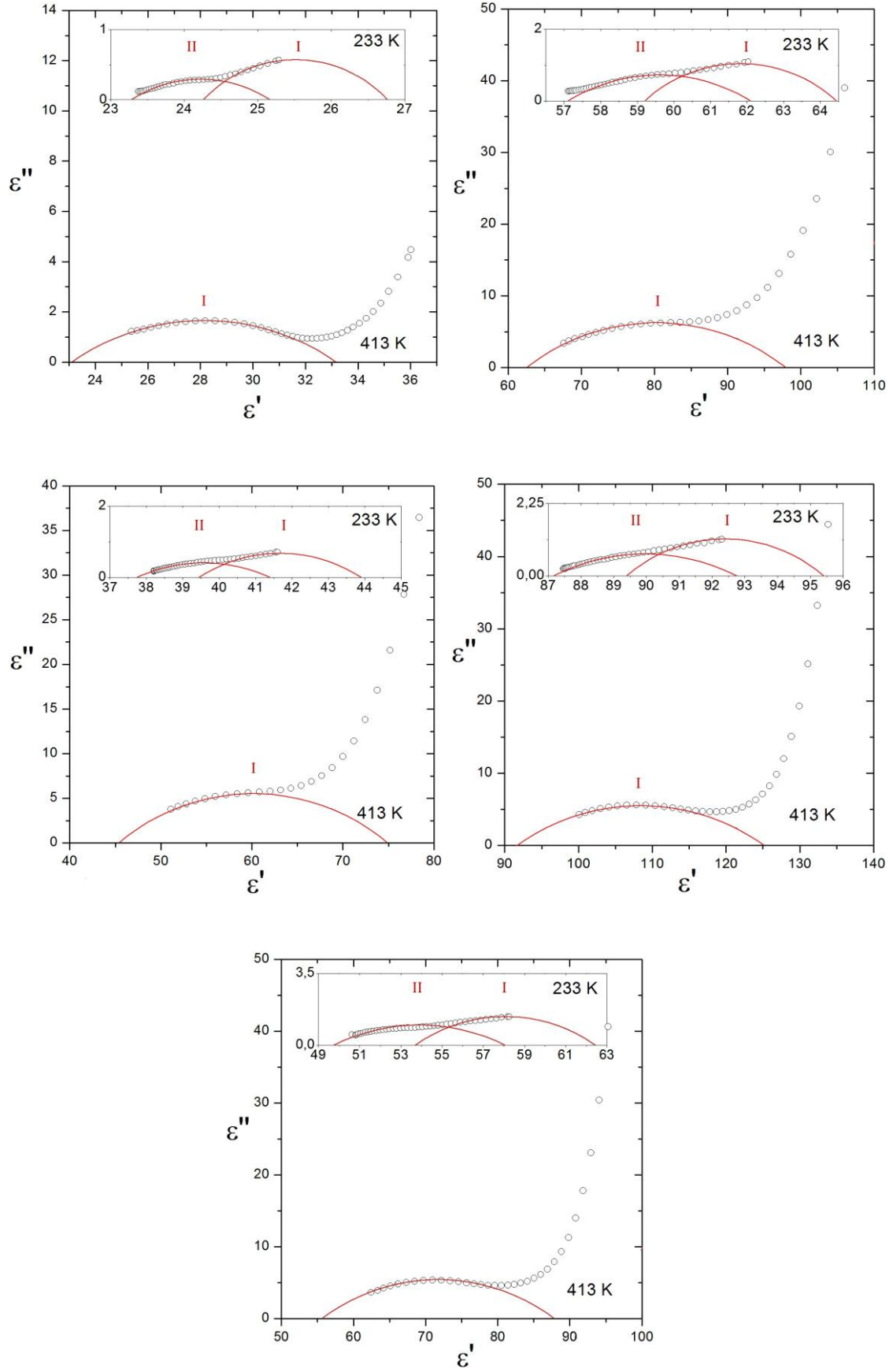


Şekil 4.3. Soldan sağa sırasıyla 2A, 2B, 2C, 2D, 2E numuneleri için ϵ'' nün frekansla ve sıcaklıkla değişim grafikleri

Numunelerdeki düz kayıp davranışı yaklaşık 260 K ve bundan daha düşük sıcaklıklarda görülmektedir. Bu sıcaklığın altında bütün numunelerde $\tan\delta$ frekanstan bağımsız olarak yaklaşık 10^{-2} değerindedir. Öte taraftan oda sıcaklığından 330 K'e kadar düşük frekanslarda göreceli olarak yüksek bir $\tan\delta$ değeri görülse de, mikrodalga frekans bölgesinde bu sıcaklıklarda da $\tan\delta$ yaklaşık 10^{-2} olarak ölçülmüştür. 330 K'nin üzerinde ise düşük frekanslarda oldukça yüksek bir $\tan\delta$ değeri ölçülmüş olup, mikrodalga bölgede bu değer 10^{-1} olarak ölçülmüştür. Bu durumun malzemenin kullanılabilirliği açısından anlamlı olduğu düşünülmektedir.

4.5. Dielektrik Durulma Analizi

Şekil 4.4 tüm numuneler için seçilen iki sıcaklık değerinde (233 K, 413 K), $\epsilon'' - \epsilon'$ grafiklerini göstermektedir. Bu grafiklerden malzemenin durulma modeli belirlenebilir. Numunelerde yüksek frekanslarda ve düşük frekanslarda iki ayrı durulmanın olduğu görülmektedir. Bu durulmalardan düşük frekanslarda olanı ana durulma olarak adlandırılmış ve şekil üzerinde I ile gösterilmiştir. Yüksek frekanslarda olanı ise yavru durulma olarak adlandırılmış ve şekil üzerinde II ile gösterilmiştir. Düşük sıcaklıklardan yüksek sıcaklıklara doğru gidildikçe yavru durulma daha yüksek frekanslarda gözlenebilir olmuştur. Diğer taraftan yüksek sıcaklıklarda düşük frekans bölgesinde numunelerde bir DC iletkenliğin ortaya çıktığı da şekilden anlaşılmaktadır. Numunelerde ana ve yavru olarak adlandırılan iki ayrı durulmanın olduğu sırasıyla $\tan\delta$ ve ϵ'' 'nin frekans ve sıcaklıkla değişimini gösteren Şekil 4.2 ve Şekil 4.3'de görülmektedir. Sözü edilen grafiklerin üzerlerindeki dalgalanmalar bu duruma işaret etmektedirler.



Şekil 4.4. Soldan sağa sırasıyla 2A, 2B, 2C, 2D, 2E numuneleri için 233 K ve 413 K de ϵ'' - ϵ' grafikleri

Yapılan incelemeler sonucu malzemedeki durulmanın, Cole Cole eşitliğine DC iletkenlik teriminin eklenmesi ile elde edilen eşitlik 4.1 ile açıklanabileceği düşünülmektedir. Numunelerde iki ayrı durulma olduğu için eşitlik 4.1 deki n, 2 olarak alınmıştır. Eşitlik 4.1 gerçekte ve sanal kısımlarına ayrılarak eşitlik 4.2 ve 4.3 elde edilmiştir. Görüldüğü gibi eşitlik 4.2 gerçekte, eşitlik 4.3 ise sanal kısmı ifade etmektedir [53].

$$\varepsilon^*_{w,T} = \varepsilon' - i\varepsilon'' = \varepsilon_\infty + \sum_{n=1}^2 \frac{\Delta\varepsilon_n}{1+(i\omega\tau_n)^{1-\alpha_n}} + \frac{\sigma_o}{\varepsilon_o i\omega^s} \quad (4.1)$$

$$\varepsilon'(w,T) = \varepsilon_\infty + \Delta\varepsilon_1 \frac{1+(\omega\tau_1)^{1-\alpha_1} \sin \frac{\pi\alpha_1}{2}}{1+2\sin \frac{\pi\alpha_1}{2} (\omega\tau_1)^{1-\alpha_1} + (\omega\tau_1)^{2(1-\alpha_1)}} + \Delta\varepsilon_2 \frac{1+(\omega\tau_2)^{1-\alpha_2} \sin \frac{\pi\alpha_2}{2}}{1+2\sin \frac{\pi\alpha_2}{2} (\omega\tau_2)^{1-\alpha_2} + (\omega\tau_2)^{2(1-\alpha_2)}} + \frac{\sigma_o}{\varepsilon_o \omega^s} \cos \frac{\pi s}{2} \quad (4.2)$$

$$\varepsilon''(w,T) = \Delta\varepsilon_1 \frac{1+(\omega\tau_1)^{1-\alpha_1} \cos \frac{\pi\alpha_1}{2}}{1+2\sin \frac{\pi\alpha_1}{2} (\omega\tau_1)^{1-\alpha_1} + (\omega\tau_1)^{2(1-\alpha_1)}} + \Delta\varepsilon_2 \frac{1+(\omega\tau_2)^{1-\alpha_2} \cos \frac{\pi\alpha_2}{2}}{1+2\sin \frac{\pi\alpha_2}{2} (\omega\tau_2)^{1-\alpha_2} + (\omega\tau_2)^{2(1-\alpha_2)}} + \frac{\sigma_o}{\varepsilon_o \omega^s} \sin \frac{\pi s}{2} \quad (4.3)$$

Tablo 4.2 tüm numuneler için hesaplanan α değerlerini göstermektedir. α , $\varepsilon'' - \varepsilon'$ grafiklerindeki dairelerin yarıçapları ile ε' eksenini arasında kalan açı ölçülerek bulunmuştur ve durulma zamanlarının dağılım genişliğini ifade eden bir büyüklüktür. Tablo 4.3 ise tüm numuneler için hesaplanan $\Delta\varepsilon$, dielektrik güç değerlerini göstermektedir. $\Delta\varepsilon$ ise grafiklerdeki dairelerin ε' eksenini kestikleri noktalar ölçülerek bulunmuştur [54].

Ana durulma numunelerde ölçüm yapılan tüm sıcaklıklarda gözlenebildiğinden, α ve $\Delta\varepsilon$ değerleri bu durulma için tüm sıcaklıklarda hesaplanabilmiştir ve sırasıyla Tablo 4.2 ve 4.3 de yer almaktadırlar. α ve $\Delta\varepsilon$ değerleri yavru durulma için her sıcaklıkta gözlenemediğinden bazı sıcaklıklarda hesaplanmamışlardır.

Tablo 4.2 incelendiğinde yavru durulmaya ait α değerlerinin, gözlenebildiği sıcaklık aralığında sıcaklıkla arttığı görülmektedir. Başka bir deyişle sıcaklık arttıkça bu durulma Debye modelinden uzaklaşmakta, dipoller arasındaki etkileşim artmaktadır. Ana durulma için ise α değerleri sıcaklık ile artıyor ya da azalıyor gibi bir yorum yapılamamaktadır. $\Delta\varepsilon$ değerleri tüm numunelerde beklendiği gibi sıcaklık ile artmaktadır. Bu durum polarizasyonun sıcaklıkla artmasına işaret etmektedir.

Bütün numuneler için bütün sıcaklıklarda s parametresinin 0.85 civarında olacağı tahmin edilmektedir. Durulma zamanı τ ise ana durulma için 10^{-1} ile 10^{-7} arasında beklenmektedir. Yavru durulma için ise, 2E için biraz daha büyük olmakla beraber, 10^{-4} ile 10^{-7} arasında bir değer beklenmektedir.

Tablo 4.2. Tüm numuneler için hesaplanan α değerleri

T(K)	2A		2B		2C		2D		2E	
	I	II	I	II	I	II	I	II	I	II
230	0.47	0.63	0.50	0.66	0.60	0.70	0.53	0.59	0.58	0.68
250	0.46	0.64	0.58	0.70	0.56	0.69	0.54	0.63	0.60	0.70
270	0.48	0.67	0.56	0.70	0.57	0.74	0.50	0.62	0.60	0.75
290	0.53	0.70	0.57	0.76	0.58	0.75	0.53	0.68	0.60	-
310	0.55	-	0.50	-	0.58	-	0.57	-	0.56	-
330	0.57	-	0.60	-	0.60	-	0.61	-	0.59	-
350	0.56	-	0.60	-	0.58	-	0.59	-	0.60	-
370	0.55	-	0.61	-	0.57	-	0.60	-	0.57	-
390	0.57	-	0.59	-	0.50	-	0.60	-	0.56	-
410	0.59	-	0.56	-	0.55	-	0.59	-	0.58	-

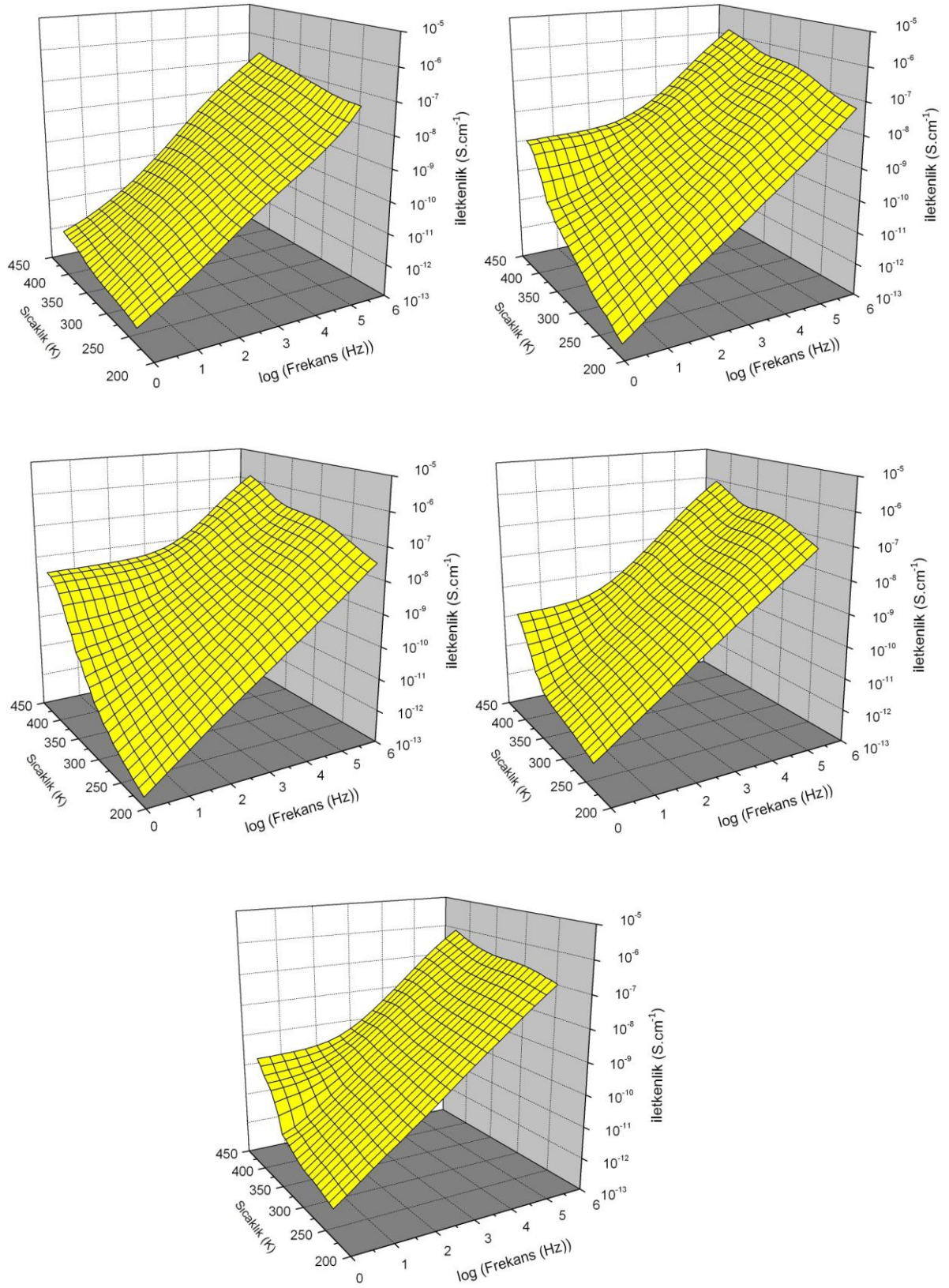
Tablo 4.3. Tüm numuneler için hesaplanan $\Delta\epsilon$ değerleri

T(K)	2A		2B		2C		2D		2E	
	I	II	I	II	I	II	I	II	I	II
230	2.5	2	5.7	5	4.5	3.7	6	5.5	9	8
250	3.5	2.2	9	7	5	4	8	7	9	8
270	4.4	2.7	12	8	13	8	10	7	13	13
290	6	3.8	18	9	15	10	17	11	14	-
310	7	-	23	-	19	-	15	-	17	-
330	7.5	-	24	-	20	-	21	-	22	-
350	8	-	32	-	20	-	21	-	26	-
370	8.5	-	35	-	27	-	27	-	26	-
390	9	-	36	-	29	-	33	-	28	-
410	10	-	37	-	30	-	35	-	32	-

4.6. Elektriksel İletkenlik Analizi

Şekil 4.5 bütün numunelerin (sırası ile soldan sağa 2A, 2B, 2C, 2D, 2E kodlu) iletkenliğinin frekansa ve sıcaklığa göre değişim grafiklerini göstermektedir. Frekans ekseninin logaritması alınmış, iletkenlik ve sıcaklık eksenine ise lineer olarak verilmiştir.

Bütün numunelerde iletkenlik beklendiği gibi frekans ile artmıştır. Düşük sıcaklıklarda iletkenlik bütün numuneler için düşük frekanslarda 10^{-13} S.cm⁻¹ mertebelerinde olurken, yüksek frekanslarda yine bütün numunelerde 10^{-5} S.cm⁻¹ mertebelerinde olmuştur. Diğer yandan incelenen numunelerin hepsinde iletkenliğin sıcaklık ile arttığı gözlemlenmiştir. Bu yarı iletken malzemelere özgü bir davranış biçimidir.



Şekil 4.5. Soldan sağa sırasıyla 2A, 2B, 2C, 2D, 2E numuneleri için iletkenliğin frekansla ve sıcaklıkla değişim grafikleri

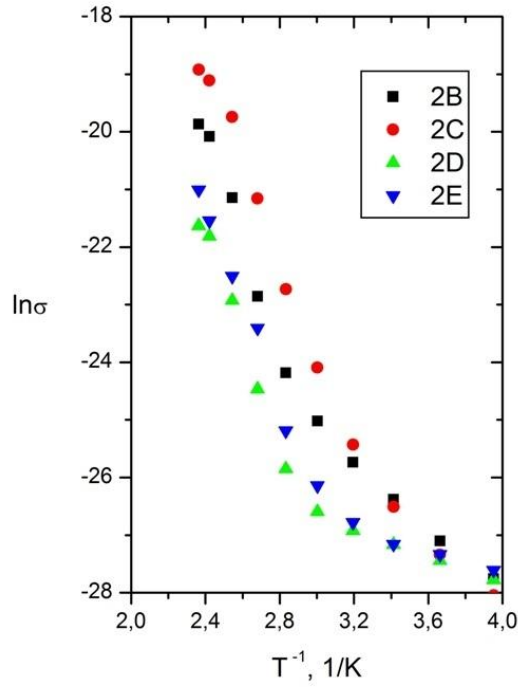
2A dışındaki numunelerde, düşük frekans bölgelerinde yüksek sıcaklıklarda grafiklerde düz bölgeler dikkat çekmektedir. Bu bölgelerde iletkenlik frekansla değişmeyip, sıcaklığa bağlıdır. Bu bölgeler numunelerde ortaya çıkan DC iletkenliği göstermektedirler. 2A numunesinde DC iletkenliğin gözlenebilmesi için daha düşük frekanslara inilmesi gerekmektedir.

2A kodlu numune hariç, diğer numunelerde görülen DC iletkenlik modelinin belirlenmesi ve buradan ilgili parametrelerin hesaplanması için şekil 4.6'da yer alan, $\ln \sigma_{DC} - 1000/T$ grafiği çizilmiştir. Grafikten iletkenliğin sıcaklıkla değişiminin eşitlik 4.4 ile verilen model ile açıklanabileceği düşünülmektedir. Bu model genellikle tünelleme tipi DC iletkenliğe sahip malzemeler için kullanılmaktadır [55].

$$\sigma(T) = \sigma_0 \exp \left[-2k_B t - \frac{E_c}{2k_B T} \right] \quad (4.4)$$

Bu eşitlikteki t tünelleme bariyeri kalınlığı, E_c yükleme enerjisi, k ise bariyer yüksekliği ile artan bir bariyer parametresidir. Yükleme enerjisi için $E_c = 2E_a$ ilişkisi söz konusudur. (E_a aktivasyon enerjisidir). Eşitlik 4.4 ile verilen model yaklaşık düzgün bariyer kalınlığı için eşitlik 3.26 ile verilen Arrhenius modeline dönüşür.

Bu grafikteki deneysel sonuçlara teorik modelin fit edilmesiyle 2A dışındaki her bir numune için E_a , aktivasyon enerjisini hesaplamak mümkündür. Tablo 4.4 hesaplanan E_a değerlerini göstermektedir. Değerlerin bütün numuneler için 0.80 eV civarında olduğu görülmektedir. Bu oldukça büyük bir aktivasyon enerjisi değeridir. Bu durum numunelerde ancak çok küçük Eddy akımlarının oluşabileceğini gösterir.



Şekil 4.6. 2B, 2C, 2D, 2E numuneleri için $\ln \sigma_{DC} - 1000/T$ grafiği

Tablo 4.4. Numunelerin hesaplanan E_a değerleri

Numune Kodu	Aktivasyon Enerjisi (eV)
2A	-
2B	0.79
2C	0.87
2D	0.80
2E	0.77

Numunelerin AC iletkenlik modelinin belirlenebilmesi için, iletkenliklerinin frekansa göre değişim grafikleri incelenerek, s parametresinin değeri ve sıcaklıkla nasıl değiştiği belirlendi. Yapılan incelemeler sonucu bütün numunelerde s parametresinin 0.85 civarında bir değere sahip olduğu ve bu değer sıcaklıktan hemen hemen etkilenmediği sonucuna varıldı. Hesaplanan s değerleri Tablo 4.5 ile gösterilmiştir.

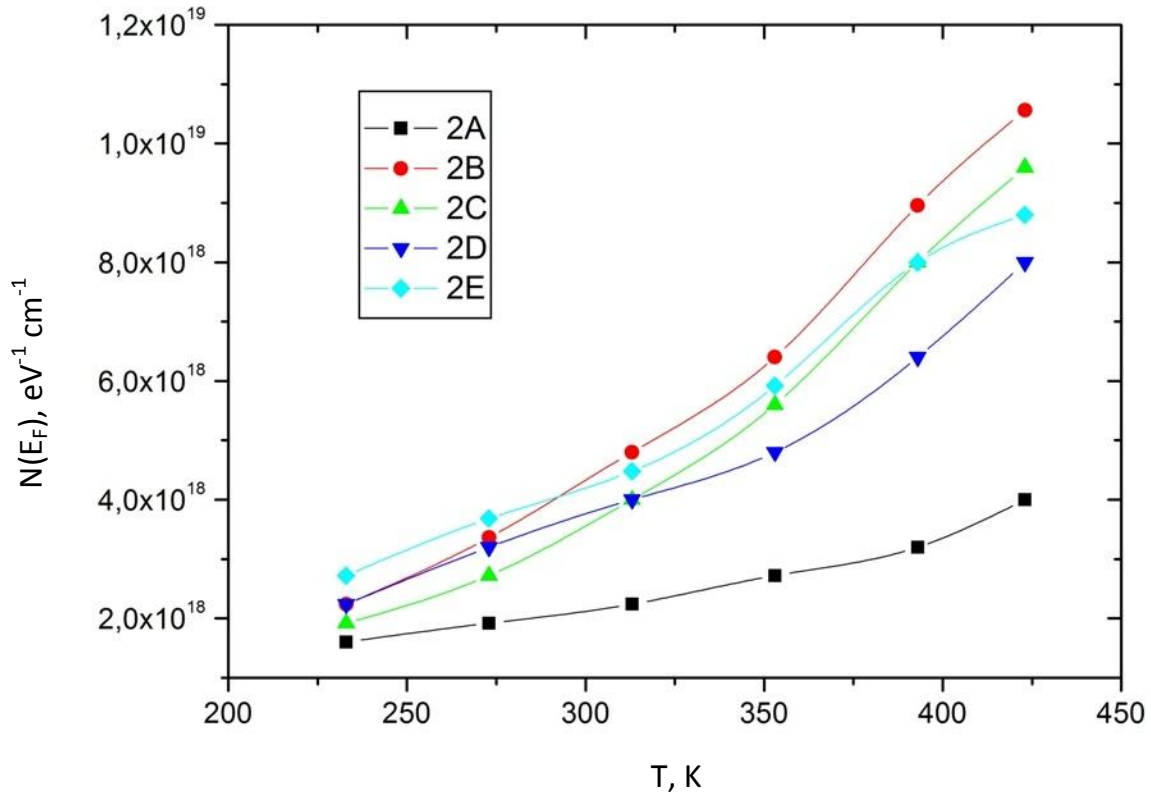
Tablo 4.5. Bütün numuneler için farklı sıcaklıklarda hesaplanan s değerleri

Sıcaklık T (K)	s değerleri				
	2A	2B	2C	2D	2E
230	0.87	0.83	0.85	0.84	0.85
250	0.87	0.84	0.86	0.85	0.85
270	0.84	0.85	0.85	0.85	0.85
290	0.84	0.85	0.85	0.85	0.85
310	0.85	0.84	0.85	0.85	0.85
330	0.85	0.84	0.85	0.85	0.84
350	0.86	0.83	0.83	0.83	0.83
370	0.85	0.84	0.85	0.85	0.86
390	0.84	0.86	0.86	0.86	0.86
410	0.85	0.85	0.85	0.85	0.85

Bu sonuçlar ışığında numunelerin AC iletkenliklerinin, QMT modeli ile açıklanabileceği düşünülmektedir. QMT modeli eşitlik 3.29 ile verilmiştir [43]

$$\sigma(\omega) = \left(\frac{\pi^4}{24} \right) \left(\frac{e^2 k_B T}{\alpha} \right) N^2 E_F \omega R_\omega^4 \quad (3.29)$$

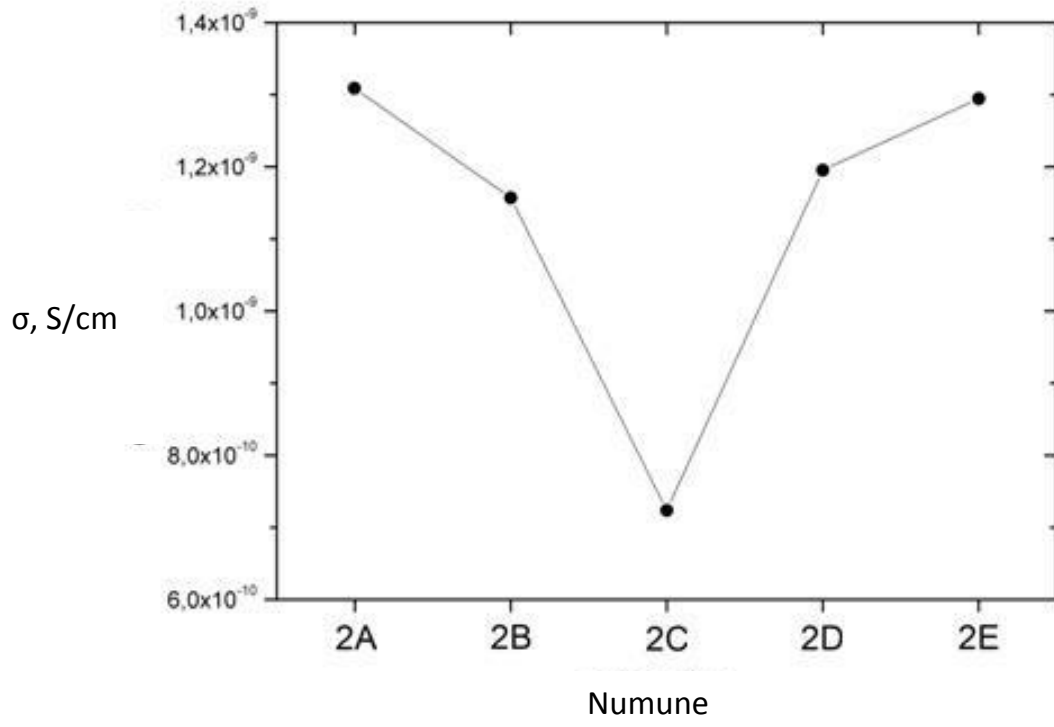
Bu eşitlikteki α daha öncede belirtildiği gibi 10 \AA^{-1} olarak kabul edildiğinde QMT modeli deney sonuçlarıyla mükemmel bir uyum göstermektedir. Buradan numunelerin bazı fiziksel parametreleri hesaplanmıştır. Şekil 4.7 de tüm numuneler için hesaplanan $N(E_F)$ değerlerinin sıcaklıkla değişimi yer almaktadır.



Şekil 4.7. Tüm numuneler için $N(E_F)$ 'nin sıcaklıkla değişimi

Şekil 4.7'den görüldüğü gibi bütün numuneler için $N(E_F(T))$ değeri sıcaklıktaki artış ile beraber lineer olmayan bir artış göstermekte ve $1.6 \times 10^{18} - 8.8 \times 10^{18}$ aralığında değişmektedir. Sıcaklık arttıkça daha fazla sayıda yük taşıyıcısının aktif olması beklenen bir durumdur. Düşük sıcaklıklarda $N(E_F(T))$ hemen hemen ferrit oranına hiç bağlı değilken, yüksek sıcaklıklarda kompozisyonel bir bağlılık dikkat çekmektedir. Bütün numuneler için tünelleme mesafesi 1.35 \AA mertebesinde, fonon frekansı 10^{13} Hz mertebesinde hesaplanmıştır. Bu mertebeler QMT modelinin öngördüğü düzeydedirler [56].

Numunelerdeki ferrit oranına bağlı olarak, iletkenliğin sıcaklıkla veya frekansla sistematik bir değişim gösterdiği söylenemez. Bu noktada özel olarak oda sıcaklığındaki AC iletkenliğin ferrit oranına bağlılığı incelenmiştir. Bütün frekanslarda 'V' tipi bir davranışla karşılaşmıştır. Bu durumun bir örneği şekil 4.8'de 10 kHz için görülmektedir. Bu 'V' tipi davranışa 2C numunesinde DC iletkenliğin, diğer numunelerde ise AC iletkenliğin baskın olması neden olmaktadır.



Şekil 4.8 Oda sıcaklığında iletkenliğin ferrit oranına bağlı değişimi

BÖLÜM 5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

Bu çalışma kapsamında içerisindeki ferrit oranı $(\text{Ni}_{0.5}\text{Zn}_{0.4}\text{Cu}_{0.1}\text{Fe}_2\text{O}_4)_x (\text{CoFe}_2\text{O}_4)_{3-x}$ formülüyle ifade edilen ferrit polimer nanokompozit sisteminin dielektrik özellikleri dielektrik empedans spektroskopisi kullanılarak ayrıntılı olarak incelenmiştir. İncelemeler 1 Hz ile 1 MHz frekans aralığında ve 230 K ile 420 K sıcaklık aralığında yapılmıştır. Yapılan incelemeler dielektrik sabiti ϵ' 'nin, dielektrik kayıp faktörü $\tan\delta$ 'nın ve malzemenin iletkenliği σ 'nın frekans ve sıcaklıkla değişimini kapsamaktadır. Bu incelemeler sonucu malzemenin polarizasyon mekanizması ve kayıp mekanizması ile malzemenin uyduğu durulma modeli ve iletkenlik modeli ortaya çıkarılmıştır. Deneysel sonuçların belirlenen teorik modellere uydurulması sonucu malzemeye ait önemli fiziksel parametreler hesaplanmıştır. Bu sonuçların malzemenin teknolojide kullanılabilirliğine yol gösterici mahiyette olduğu düşünülmektedir.

Düşük frekanslarda görülen yüksek ϵ' değeri malzemenin heterojen yapısından kaynaklanan Maxwell Wagner tipi polarizasyona işaret etmektedir [47]. Yine sıcaklığın artması ile ϵ' değerinde görülen artış, malzemede bu tip bir polarizasyonun ikinci bir göstergesidir. Frekansın artması ile ϵ' değerinde görülen azalma ise normal bir dielektrik davranıştır.

Yüksek sıcaklıklarda ve düşük sıcaklıklarda $\tan\delta$ iki ayrı davranış sergilemektedir. Yüksek sıcaklıklarda $\tan\delta$ frekansın artmasıyla birlikte azalmaktadır. Bu ilk azalmadan sonra bazı frekanslarda rezonans pikleri görülmektedir. Bu pikler yerleşmiş siteler arasında hopyayan yük taşıyıcılarının doğal hopyama frekansı, uygulanan frekansa eşit olduğunda ortaya çıkmaktadır [51]. Düşük sıcaklıklarda ise frekanstan bağımsız bir $\tan\delta$ davranışı göze çarpmaktadır. Yapılan değerlendirmeler sonucu numunelerde kayıplara neden olan esas faktörün iletkenlik olduğu sonucuna varılmıştır.

Dielektrik sabitinin sanal kısmının gerçek kısmına karşı çizilmesi ile elde edilen grafiklerden yararlanarak numunelerin durulma modeli Cole Cole modeline DC iletkenlik teriminin eklenmesi ile elde edilen ifade olarak belirlenmiştir [53]. Numunelerde düşük frekans ve yüksek frekanslarda sırasıyla ana ve yavru durulma olarak adlandırılan iki ayrı durulma gözlenmiştir. Dielektrik dağılım parametresi α farklı sıcaklıklarda ana durulma için, 0.47 ile 0.60 arasında bir değer, yavru durulma için ise 0.62 ile 0.76 arasında bir değer almıştır. Dielektrik güç $\Delta\epsilon$ ise her iki durulma için sıcaklıkla artarken, değeri 2.5 ile 37 arasında değişmektedir.

Deneysel sonuçlar tüm numunelerde incelenen frekans ve sıcaklık aralığında iletkenliğin 10^{-5} S/cm ile 10^{-13} S/cm aralığında değiştiğini göstermiştir. İletkenlik grafiklerinde yüksek sıcaklıklarda düşük frekans bölgelerinde 2A kodlu numune dışında DC iletkenliği gösteren düz bölgeler dikkat çekmektedir. Numunelerin DC iletkenlik modelleri tünelleme tipi DC iletkenlik olarak belirlenmiştir. Deneysel sonuçların bu modele uydurulmasıyla numunelerin aktivasyon enerjileri sırasıyla 2B, 2C, 2D, 2E kodlu numuneler için 0.79, 0.87, 0.80, 0.77 olarak belirlenmiştir. Bu yüksek aktivasyon enerjileri düşük eddy akımlarını işaret etmektedir. Numunelerin iletkenlik kuvvet parametresi s' 'in tüm sıcaklıklarda 0.85 civarında bir değere sahip olduğu görülmüştür. Buradan hareketle numunelerin AC iletkenlik modeli QMT olarak belirlenmiştir [43]. Deneysel sonuçların bu modele uydurulmasıyla Fermi enerji seviyesine yakın durumlar yoğunluğu $N(E_F)$ 'nin 1.6×10^{18} ile 8.8×10^{18} aralığında olduğu hesaplanmıştır. Bu durum numunelerin yarı iletken davranış gösterdiğine işaret etmektedir.

Manyetik nanoparçacıkların teknolojide kullanılabilirliğinin belirlenmesinde dielektrik özelliklerinin incelenmesi önemli olduğu gibi, tabii ki manyetik özelliklerinin belirlenmesi de önemlidir. Yapılacak başka bir çalışmayla numunelerin histerezis eğrisi, anizotropi gibi manyetik özelliklerinin incelenmesi, numunelerdeki manyetik kayıp mekanizmalarının belirlenmesi önerilmektedir.

KAYNAKLAR

- [1] BUSCHOW, K.H.J., DE BOER, F.R., Physics of Magnetism and Magnetic Materials, Kluwer Academic Publishers, pg. 1, 2003
- [2] VALENZUELA, R., Magnetic Ceramics, Cambridge University Press, pg.1, 1994
- [3] SELVAN, R.K., AUGUSTIN, C.O., SANJEEVIRAJA, C., POL, V.G., GEDANKEN, A., Materials Chemistry and Physics, 99, 109-116, 2006
- [4] LIU, J.P., FULLERTON, E., GUTFLEISCH, O., SELLMYER, D.J., Nanoscale Magnetic Materials and Applications, Springer Science + Business Media, pg. v, 2009
- [5] GOLDMAN, A., Modern Ferrite Technology, Springer Science + Business Media, 2006
- [6] SUNNY, V., KURIAN, P., MOHANAN, P., JOY, P.A., ANANTHARAMAN, M.R., A flexible microwave absorber based on nickel ferrite nanocomposite, Journal of Alloys and Compounds, 489, 297-303, 2010
- [7] POU DYAL, N., Synthesis and Characterization of Magnetic Nanoparticles, Master of Science in Physics, The University of Texas at Arlington, 2005
- [8] GHAZANFAR, U., Preparation and Characterization of Ferrite Materials for Practical Applications, 2005
- [9] CULLITY, B.D., GRAHAM, C.D., Introduction to Magnetic Materials, John Wiley & Sons, Inc., 2009
- [10] ANDERSON, P.W., Antiferromagnetism. Theory of superexchange Interaction, Physical Review, 79, 350-356, 1950
- [11] OKATAN, M.B., Microstructure Development In Nickel Zinc Ferrites, Master of Science in Metallurgical & Materials Engineering, 2005

- [12] ÖZGÜR, Ü., ALİVOV, Y., MORKOÇ, Ç., Microwave Ferrites, Part1: Fundamental Properties, Journal of Materials Science: Materials in Electronics, 20, 789-834, 2009
- [13] LATAİFEH, M.S., Room temperature magnetization measurements of some substituted rare earth iron garnets, Applied Physics A, 92, 681-685, 2008
- [14] Pereira, F.M.M., JUNIOR, C.A.R., SANTOS, M.R.P., SOHN, R.S.T.M., FREİRE, F.N.A., SASAKI, J.M., DE PAIVA, J.A.C., SOMBRA, A.S.B., Structural and dielectric spectroscopy studies of the M-type barium strontium hexaferrite alloys ($Ba_xSr_{1-x}Fe_{12}O_{19}$), J. Mater Sci: Mater Electron, 19, 627-638, 2008
- [15] SPALDIN, N.A., Magnetic Materials: Fundamentals and Device Applications, Cambridge University Press, pg.118, 2003
- [16] <http://www.ferronics.com/files/terms.pdf>, Erişim Tarihi Şubat 2011 Mayıs 2011
- [17] CARTER, C.B., NORTON, M.G., Ceramic materials: Science and Engineering, Springer, pg.612-613, 2007
- [18] HARRIS, V.G., GEILER, A., CHEN, Y., YOON, S.D., WU, M., YANG, A., CHEN, Z., HE, P., PARIMI, P.V., ZUO, X., PATTON, C.E., ABE, M., ACHER, O., VITTORIA, C., Recent advances in processing and applications of microwave ferrites, Journal of Magnetism and Magnetic Mater., 321, 2035-2047, 2009
- [19] http://www.jaycar.com.au/images_uploaded/ferrites.pdf, Erişim Tarihi Şubat 2011 Mayıs 2011
- [20] CARPENTER, H.W., Radar absorbing coatings, United States Patent, US 6,909,395 B1, 2005
- [21] RAHMAN, I.Z., AHMED, T.T., A study on Cu substituted chemically processed Ni-Zn-Cu ferrites, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 290-291, 1576-1579, 2005
- [22] FUJIMOTO, M., NISHI, Y., SUZUKI, T., SHIGETANI, H., SEKIGUCHI, S., Coherent Precipitation of Copper Metal in Low Temperature – Fired Ni-Zn-Cu Ferrite, J. Am. Ceram. Soc., 81[9], 2477-2480, 1998
- [23] BAYKAL, A., KASAPOĞLU, N., DURMUŞ, Z., KAVAS, H., TOPRAK, M.S., KÖSEOĞLU, Y., CTAB-Assisted Hydrothermal Synthesis and Magnetic Characterization of $Ni_xCo_{1-x}Fe_2O_4$ Nanoparticles ($x = 0.0, 0.6, 1.0$), Turk. J. Chem., 33, 33 – 45, 2009

- [24] ZHAO, L., YANG, H., ZHAO, X., YU, L., CUI, Y., FENG, S., Magnetic properties of CoFe_2O_4 ferrite doped with rare earth ion, *Materials Letters*, 60, 1-6, 2006
- [25] ZI, Z., SUN, Y., ZHU, X., YANG, Z., DAI, J., SONG, W., Synthesis and magnetic properties of CoFe_2O_4 ferrite nanoparticles, *Journal of Magnetism and magnetic Materials*, 321, 1251-1255, 2009
- [26] ŞEKER, İ., Dielectric Properties of Polymeric Nanocomposites of Complex and Cobalt Ferrite, *Master of Science in Physics*, 2009
- [27] SCAIFE, B.K.P., *Principles of Dielectrics*, Oxford University Press, pg.3, 1998
- [28] JONSCHEER, A.K., *Dielectric Relaxation in Solids*, Chelsea Dielectric Press, 1983
- [29] LUFASO, M.W., *Perovskite Synthesis and Analysis Using Structure Prediction Diagnostic Software*, 2002
- [30] HELGESON, A., *Analysis of Dielectric Response Measurement Methods and Dielectric Properties of Resin-Rich Insulation During Processing*, 2000
- [31] ELKHOLY, M.M., SHARAF EL-DEEN, L.M., The Dielectric Properties of $\text{TeO}_2\text{-P}_2\text{O}_5$ Glasses, *Materials Chemistry and Physics*, 65, 192-196, 2000
- [32] CHAILLOT, A.G., MUNIER, C., RICHET, S., ARNOUD, F., New dielectric materials: How to control their reliability in an avionics environment for a long term period?, 2004 International Conference on Solid Dielectrics, 2004
- [33] Yin, Y., *Dielectric Relaxation and Electrooptical Effects In Nematic Liquid Crystals*, 2007
- [34] JONSCHEER, A.K., Dielectric Relaxation In Solids, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 32, R57-R70, 1999
- [35] KALAKKUNNATH, S., *Viscoelastic Relaxation Characteristics of Rubbery Polymer Networks and Engineering Polyesters*, 2007
- [36] ALIM, M.A., BISTELL, S.R., MOBASTER, A.A., Analysis of the AC electrical data in the Davidson – Cole dielectric representation, *Physica B*, 403, 3040-3053, 2008

- [37] RAISSI, T., RAMDANI, N., IBOS, L., CANDAU, Y., Guaranteed Method For The Estimation Of Dielectric Relaxation Model Parametres, Proceedings of the 5th International Conference on Inverse Problems in Engineering: Theory and Practice, 2005
- [38] COLE, K.S., COLE, R.H., Dispersion and Absorption in Dielectrics-1 Alternating Current Characteristics, Journal of Chemical Physics, 9, 341, 1941
- [39] DAVIDSON, D.W., COLE, R.H., Dielectric Relaxation in Glycerol, Propylene Glycol, and N-Propanol, J. Chem. Phys., 19, 1484-1490, 1951
- [40] BAK, G.W., JONSCHER, A.K., Low frequency dispersion in hopping electronic systems, Journal of Materials Science, 34, 5505-5508, 1999
- [41] ABDELMONEIM, H.M., Dielectric and AC Conductivity of Potassium Perchlorate, $KClO_4$, Acta Physica Polonica A, 117, 936-940, 2010
- [42] SANTIC, A., MILANKOVIC A.M., DAY, D.E., Journal of Non-Crystalline Solids, 296, 65-73, 2001
- [43] GANGOPADHYAY, R., DE, A., DAS, S., Transport properties of polypyrrole–ferric oxide conducting nanocomposites, Journal of Applied Physics, 87, 2363-2371, 2000
- [44] GHOSH, A., AC conduction in iron bismuthate glasst semiconductors, Physical Review B, 42, 1388-1393, 1990
- [45] KIM, D.K., TOPRAK, M., MIKHAYLOVA, M., JO, S., SAVAGE, S.J., TSAKALAKOS, T., MUHAMMED, M., Polymeric nanocomposites of complex ferrite, Solid State Phenomena, 99-100, 165-168, 2004
- [46] GEORGE, M., NAIR, S.S., MALINI, K.A., JOY, P.A., ANANTHARAMAN, M.R., Finite size effects on the electrical properties of sol-gel synthesized $CoFe_2O_4$ powders: deviation from Maxwell Wagner theory and evidence of surface polarisation effects, J.Phys. D: Appl. Phys., 40, 1593-1602, 2007
- [47] MAXWELL, J., Electricity and Magnetism, Vol. 1, Oxford Univ. Press, 1873
- [48] KOOPS, C., Phys. Rev., 83, 121, 1951
- [49] MURTHY, V.R.K., SOBHANADRI, J., Dielectric properties of some nickel zinc ferrites at radio frequency, 36, 133-135, 1976

- [50] GHATAK, S., SINHA, M., MEIKAP, A.K., PRADHAN, S.K., Electrical transport properties of nanocrystalline zinc ferrite, *Physica E*, 40, 2686-2693, 2008
- [51] SINGH, A.K., GOEL, T.C., MENDIRATTA, R.G., THAKUR, O.P., PRAKASH, C., Dielectric properties of Mn – substituted Ni-Zn ferrites, *Journal of Applied Physics*, 91, 6626-6629, 2002
- [52] VAISH, R., VARMA, K.B.R., Low loss and frequency (1 kHz–1 MHz) independent dielectric characteristics of 3BaO–3TiO₂–B₂O₃ glasses, *Journal of Applied Physics*, 106, 114109, 2009
- [53] ABDEL-WAHAB, F., MOSTAFA, A.G., BELAL, A.E., EL-AGWANY, E.M., Mossbauer spectroscopy and electrical transport properties of iron doped sodium lead borate glasses, *Materials Chemistry and Physics*, 93, 243-250, 2005
- [54] ŞENTÜRK, E., Dielectric characteristics of Ce³⁺ doped Sr_{0.61}Ba_{0.39}Nb₂O₆ with Cole Cole plots technique, *Cryst. Res. Technol.*, 39, 157-160, 2004
- [55] ANANTHARAMAN, M.R., SINDHU, S., JAGATHEESAN, S., MALINI, K.A., KURIAN, P., *J. Phys. D: Appl. Phys* 32, 1801, 1999
- [56] LOUATI, B., GARGAURI, M., GUIDARA, K., MHIRI, T., AC electrical properties of the mixed crystal (NH₄)₃H(SO₄)_{1.42}(SeO₄)_{0.58}, *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 66, 762-765, 2005

ÖZGEÇMİŞ

Salih AKBULUT, 1985 yılında Malatya'da doğdu. İlk, orta ve lise öğrenimini Malatya'da tamamladı. 2004 yılında Bolu Abant İzzet Baysal Üniversitesi Fizik Bölümünde başladığı lisans eğitimini 2009 yılında tamamlayarak mezun oldu. Aynı yıl Sakarya Üniversitesi Fizik Bölümünde araştırma görevlisi olarak görev yapmaya ve yüksek lisans öğrencisi olarak eğitim almaya başladı. Halen yüksek lisans eğitimine devam etmektedir.