

**T.C.**  
**İSTANBUL MEDENİYET ÜNİVERSİTESİ**  
**LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ**  
**NANOBİLİM ve NANOMÜHENDİSLİK ANABİLİM DALI**

**%1 Pd Katkılı LaCrO<sub>3</sub> Perovskit malzemenin**  
**Yapısal, Optik ve Elektriksel Özellikleri**

**Yüksek Lisans Tezi**  
**Ayşegül Kübra ÖCAL**

**TEMMUZ 2019**

**T.C.**  
**İSTANBUL MEDENİYET ÜNİVERSİTESİ**  
**LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ**  
**NANOBİLİM ve NANOMÜHENDİSLİK ANABİLİM DALI**

**%1 Pd Katkılı LaCrO<sub>3</sub> Perovskit malzemenin**  
**Yapısal, Optik ve Elektriksel Özellikleri**

**Yüksek Lisans Tezi**  
Ayşegül Kübra ÖCAL

**DANIŞMAN**  
PROF. DR. ABDULMECİT TURUT

**TEMMUZ 2019**

## **BİLDİRİM**

Hazırladığım tezin tamamen kendi çalışmam olduğunu, akademik ve etik kuralları gözeterek çalıştığımı ve her alıntıya kaynak gösterdiğimi taahhüt ederim.

İmza

Ayşegül Kübra Öcal

Danışmanlığını yaptığım işbu tezin tamamen öğrencinin çalışması olduğunu, akademik ve etik kuralları gözeterek çalıştığımı taahhüt ederim.

Prof.Dr. Abdulmecit Turut

## İMZA SAYFASI

*Ayşegül Kübra Öcal* tarafından hazırlanan “ %1 Pd Katkılı  $\text{LaCrO}_3$  Perovskit malzemenin Yapısal, Optik ve Elektriksel Özellikleri” başlıklı bu yüksek lisans tezi, Nanobilim ve Nanomühendislik Anabilim Dalında hazırlanmış ve jürimiz tarafından kabul edilmiştir.

### JÜRİ ÜYELERİ

#### **Tez Danışmanı:**

Prof.Dr. Abdulmecit TURUT

Kurumu: İstanbul Medeniyet Üniversitesi

#### **Üyeler:**

Prof.Dr. M. Nureddin TÜRKAN

Kurumu: İstanbul Medeniyet Üniversitesi

Doç.Dr. Yakup HUNDUR

Kurumu: İstanbul Teknik Üniversitesi

### İMZA



**Tez Savunma Tarihi:** 12.07.2019

## ÖNSÖZ VE TEŞEKKÜR

Son yıllarda özellikle sergiledikleri fiziksel özelliklerinden dolayı perovskit türü ferroelektrik (FE) dielektrik malzemeler yoğun araştırma konusu olmuşlardır. Ferroelektrik ince filmler de pek çok teknolojik uygulama alanında, örneğin, piezoelektrik aygıtlarda ve FE hafıza elemanlarında önemli bir yer tutmaktadır. Yaklaşık elli yıl önce farklı FE malzemelerin fotovoltaiik özelliklere sahip olduğu da gösterilmiştir.

Katıhal sentezleme tekniği kullanılarak  $\text{LaCrO}_3$  FE dielektrik malzemeye geçiş elementi olan Pd katkılanarak elde edilen %1 Pd katkılı  $\text{LaCrO}_3$  FE dielektrik malzeme öncelikle toz halinde sentezlenmiştir. Daha sonra bu tozlardan magnetron püskürtme hedefi malzemesi ve FE malzemenin toz hallerinden yüksek basınçlarda pelletler elde edilerek bu pelletlerin empedans, modulus, dielektrik sabiti ve iletkenlik gibi dielektrik özellikleri ölçülmüştür. Ayrıca, bu malzemelerin magnetron püskürtme tekniğiyle ince film formları elde edilmiş ve bu filmlerin UV-Vis ve EDX ölçümleri yapılmıştır.

Tez Danışmanım Prof.Dr. Abdülmecit TÜRÜT ve ayrıca deneysel çalışmalarım esnasında bana yardımcı olan Dr. Öğr. Üyesi Özgür POLAT, Araş.Gör.Dr. Mustafa COŞKUN ve Araş.Gör.Dr. Mehmet Fatih ÇOŞKUN ve numunelerin XPS ve EDX ölçümlerini yapan Prof. Dr. Müjdat ÇAĞLAR hocalarıma teşekkür ederim. Ayrıca, laboratuvarlarında çalıştığım İstanbul Medeniyet Üniversitesi idarecilerine ve ilgili çalışanlarına da teşekkür ederim.

Ayşegül Kübra Öcal

# İÇİNDEKİLER

|                                                                                                                    |     |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| BİLDİRİM .....                                                                                                     | iii |
| İMZA SAYFASI.....                                                                                                  | iv  |
| ÖNSÖZ VE TEŞEKKÜR .....                                                                                            | v   |
| İÇİNDEKİLER .....                                                                                                  | vi  |
| ŞEKİLLER LİSTESİ .....                                                                                             | vii |
| 1. GİRİŞ .....                                                                                                     | 1   |
| 2. TEORİK BİLGİLER.....                                                                                            | 3   |
| 2.1. Malzemelerin Dielektrik Özellikleri.....                                                                      | 3   |
| 2.1.1. Giriş.....                                                                                                  | 3   |
| 2.1.2. Kondansatörler .....                                                                                        | 3   |
| 2.1.3. Dielektrik Kutuplanma Çeşitleri.....                                                                        | 4   |
| 2.1.4. Elektronik Kutuplanma.....                                                                                  | 4   |
| 2.1.5. İyonik Kutuplanma .....                                                                                     | 5   |
| 2.1.6. Yönelme Kutuplanması .....                                                                                  | 5   |
| 2.1.7. Arayüzey Kutuplanması .....                                                                                 | 5   |
| 2.2. Dielektrik Fonksiyonu ve Dielektrik Kayıp .....                                                               | 5   |
| 2.3. Kompleks İmpedans ve Admittans.....                                                                           | 6   |
| 3. DENEYSEL BULGULAR .....                                                                                         | 8   |
| 3.1. Numunelerin Hazırlanması.....                                                                                 | 8   |
| 3.1.1. Kimyasal Tozların ve Magnetron Hedeflerin Sentezlenmesi: .....                                              | 8   |
| 3.1.2. Mıknatıslı Püskürtme İçin Gerekli olan Tozların Hazırlanması İnce<br>Filmlerin Sentezlenme Koşulları: ..... | 8   |
| 3.2. Karakterizasyon .....                                                                                         | 13  |
| 3.3. Yapısal ve Optik Özellikler .....                                                                             | 14  |
| 3.4. Elektriksel Analizler:.....                                                                                   | 18  |
| 4. SONUÇLAR VE TARTIŞMA .....                                                                                      | 29  |
| KAYNAKÇA.....                                                                                                      | 35  |
| ÖZGEÇMİŞ .....                                                                                                     | 38  |

## ŞEKİLLER LİSTESİ

|                                                                                                                                                                                                                                                     |    |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| Şekil 2.1 Dielektrik malzemeli kondansatör .....                                                                                                                                                                                                    | 3  |
| Şekil 3.1 %1 Pd katkılanmış LaCrO <sub>3</sub> malzemesinden hazırlanmış pelletler .....                                                                                                                                                            | 9  |
| Şekil 3.2. %1 Pd katkılanmış LaCrO <sub>3</sub> ince film için hazırlanmış hedef (target) numune.....                                                                                                                                               | 9  |
| Şekil 3.3 X-ışını Difraktometresi.....                                                                                                                                                                                                              | 10 |
| Şekil 3.4 İnce film kaplama Ünitesi, Saçtırma ve buarlaştırma Sistem .....                                                                                                                                                                          | 11 |
| Şekil 3.5 Dilektrik ölçümleri için kullanılan Kriyos Kompleks Dielektrik ve Empedans<br>Spektrometresi .....                                                                                                                                        | 12 |
| Şekil 3.6 %1 Pd katkılı LaCrO <sub>3</sub> tozlarının XRD kırınım spektrumları .....                                                                                                                                                                | 14 |
| Şekil 3.7 Silisyum üzerine büyütülen %1 Pd katkılanmış LaCrO <sub>3</sub> ince filminin SEM<br>görüntüsü.....                                                                                                                                       | 14 |
| Şekil 3.8 Cam üzerine büyütülen %1 Pd katkılanmış LaCrO <sub>3</sub> ince filmin EDAX<br>spektrumları.....                                                                                                                                          | 15 |
| Şekil 3.9 Silisyum taban malzeme üzerine büyütülen %1 Pd katkılanmış LaCrO <sub>3</sub> ince filmin<br>EDAX spektrumları.....                                                                                                                       | 16 |
| Şekil 3.10 %1 Pd katkılanmış LaCrO <sub>3</sub> 'nin XPS spektrumu .....                                                                                                                                                                            | 17 |
| Şekil 3.11 XPS spektrumları, a) LaCrO <sub>3</sub> için La 3d spektrumu, b) LaCrO <sub>3</sub> için Cr 2p<br>spektrumu, c) Pd katkılanmış LaCrO <sub>3</sub> için O 1s spektrumu, d) Pd katkılanmış LaCrO <sub>3</sub> için Pd<br>3d spektrumu..... | 17 |
| Şekil 3.12 %1 Pd katkılanmış LaCrO <sub>3</sub> ince filmin optiksel soğurma grafiği .....                                                                                                                                                          | 18 |
| Şekil 3.13 %1 Pd katkılı LaCrO <sub>3</sub> malzemesinin 20 °C'lik artışlar ile -100 °C'den +100 °C<br>% Frekansa karşı Kapasitans grafiği .....                                                                                                    | 19 |
| Şekil 3.14 Malzemenin frekansa karşı dielektrik sabitinin gerçek kısmının grafiği .....                                                                                                                                                             | 20 |
| Şekil 3.15 Malzemenin Frekansa karşı dielektrik sabitinin sanal kısmının grafiği .....                                                                                                                                                              | 20 |
| Şekil 3.16 . Malzemenin Frekansa karşı Loss Tanjant grafiği .....                                                                                                                                                                                   | 21 |
| Şekil 3.17 Elektriksel modulusun gerçek kısmı $M'$ 'nin sıcaklığın bir fonksiyonu olarak<br>Frekansa karşı grafiği .....                                                                                                                            | 22 |
| Şekil 3.18 Elektriksel $M''$ 'nin sıcaklığın bir fonksiyonu olarak Frekansa karşı grafiği .....                                                                                                                                                     | 22 |
| Şekil 3.19 Numune sıcaklığı ve frekansın bir fonksiyonu olarak elektriksel modulusun gerçek<br>kısmı $M'$ 'nin sanal kısmına $M''$ karşı grafiği.....                                                                                               | 23 |
| Şekil 3.20 Numune sıcaklığı ve frekansın bir fonksiyonu İmpedansın gerçek kısmı $Z'$ 'nin grafiği. 24                                                                                                                                               |    |
| Şekil 3.21 Numune sıcaklığı ve frekansın bir fonksiyonu olarak frekansa karşı impedansın<br>sanal kısmı $Z''$ 'nin grafiği .....                                                                                                                    | 24 |

|                                                                                                                                                                                                                       |    |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| <b>Şekil 3.22</b> Şekil 3.21 ‘de verilen Frekansa karşı impedansın sanal kısmı $Z''$ eğrilerinin piklerine karşılık gelen frekans değerleri kullanılarak çizilen Arrhenius grafiği, $f_{\max}$ vs. $(kT)^{-1}$ . .... | 25 |
| <b>Şekil 3.23</b> Farklı ölçüm sıcaklıklarında %1 Pd katkılı $\text{LaCrO}_3$ malzemesi için impedansın gerçek kısmı $Z'$ ‘nin sanal kısmı $Z''$ ‘ye karşı grafiği, Frekans değeri sağa doğru azalmaktadır. ...       | 26 |
| <b>Şekil 3.24</b> 20 $^{\circ}\text{C}$ ’lik artışlar ile -100 $^{\circ}\text{C}$ ’den +100 $^{\circ}\text{C}$ ’e frekansa karşı iletkenlik grafiği.....                                                              | 27 |
| <b>Şekil 3.25</b> Şekil 3.24 ‘deki iletkenlik eğrilerinin yüksek frekans aralığındaki lineer kısımların eğimlerinden elde edilen üstel “s” değerleri .....                                                            | 27 |

## ÖZET

### **%1 Pd Katkılı LaCrO<sub>3</sub> Perovskit malzemenin Yapısal, Optik ve Elektriksel Özellikleri**

Ayşegül Kübra Öcal

Yüksek Lisans Tezi, Nanobilim ve Nanomühendislik Anabilim Dalı,  
Nanobilim ve Nanomühendislik Programı  
Danışman: Prof.Dr. Abdulmecit TURUT

Temmuz 2019 38 Sayfa.

%1 Pd katkılı LaCrO<sub>3</sub> bileşik perovskit malzeme (LaCr<sub>0.99</sub>Pd<sub>0.01</sub>O<sub>3</sub>), katıhal reaksiyon (solid state reaction) metoduyla hazırlandı. Bu malzeme çeşitli işlem ve ısı tavlamalardan geçirilerek çok küçük parçacıklara ayrıştırıldı. Bir sonraki basamakta, tozlar yüksek basınç altında sıkıştırılarak pellet haline getirildi. Yeniden bu pelletler yüksek sıcaklıklara kadar ısıtılarak var olan bağlayıcılardan temizlendi ve sinterlendi. Daha sonra, bu sinterlenmiş pellet halindeki numunelerin frekans ve numune ölçüm sıcaklığına bağlı olarak admittans ve dielektrik ve elektriksel modulus ölçümleri yapıldı, elde edilen sonuçlar detaylı bir şekilde yorumlandı. Bundan başka, elde edilen tozlar prenslendi ve magnetron püskürtme sisteminde hedef (target) olarak kullanılıp ince filmler elde edildi ve bunların yapısal ve optik karakteristikleri belirlendi.

**Anahtar Kelimeler:** LaCrO<sub>3</sub>, Perovskit oksit Malzeme, Dielektrik malzeme, Dielektrik sabiti, İmpedans spektroskopisi, Ferroelektrik malzeme

**Abstract:** 1% Pd doped LaCrO<sub>3</sub> compound perovskite (LaCr<sub>0.99</sub>Pd<sub>0.01</sub>O<sub>3</sub>) has been prepared by solid state reaction method. This material has been decomposed into very small particles by passing through various processes and thermal annealing. In the next step, the powders have been pelleted by compression under high pressure. Again, these pellets have been heated to high temperatures to remove from any existing binders and have been sintered. Then, depending on the frequency and sample measurement temperature; admittance and dielectric and electrical modulus measurements of these sintered pellet samples have been made, and the results obtained have been interpreted in detail. Furthermore, the resulting powders have been compressed under high pressure and used as a target in the magnetron sputtering system to obtain thin films, and their structural and optical characteristics have been determined.

**Key words:** LaCrO<sub>3</sub>, perovskite oxide compound, Dielectric material, Dielectric constant, Impedance spectroscopy, Ferroelectric materi

## 1. GİRİŞ

Bir dielektrik malzeme, bir elektrik alan altında polarize olabilen bir yalıtkandır. Bir dış elektrik alan altında elektrik yükleri bu dielektrik malzeme boyunca bir akım oluşturmaz, fakat yüklerin denge durumundaki konumlarında bir değişim olur. Dolayısıyla, dielektrik malzeme polarize olur ve böylece içerisinde bir elektrik alan oluşur. Malzeme içerisinde oluşan bu elektrik alan kısmen, dışarıdan uygulanan elektrik alanı dengelemeye çalışır. Özellikle de metallerde bu iç elektrik alan uygulanan dış elektrik alanı sıfırlayınca kadar devam eder. Yaygın olarak kullanılan "yalıtkan" terimi düşük elektriksel iletimi ima etmesine rağmen, "dielektrik" tipik olarak yüksek polarize (kutuplanma) olabilme yeteneği olan malzemeleri tanımlamak için kullanılır. Bu da "dielektrik sabiti" denilen bir büyüklükle ifade edilir (Murarka ve diğerleri 2003; Sun ve dg. 2010; Qi ve, 2000; Homma ve dg., 2007; Murarka, 2003).

Dielektrik malzemeler elektronik sanayisinde, çok katmanlı seramik kapasitörlerde, transdüserlerde (dönüştürücüler), dinamik rasgele erişimli bellek cihazlarında ve otomobilde ve uçak endüstrisinde kullanılan ve diğer birçok elektronik cihazda kullanımları ile giderek önem kazanmıştır. Talepleri gelecekteki gereksinimleri karşılamak için daha da büyümektedir. Dielektrik malzemelerin, Metal-yarıiletken (MY) kontaklar ve metal-yarıiletken-alan etkili transistörler (MESFET), metal-oksid-yarıiletken FET (MOSFET) ve organik FET (OFET) gibi elektronik aygıtlardaki (devre elemanlarındaki) önemi yadsınamaz bir gerçektir. Bu aygıtların kalitелisi, güvenilirliği ve kullanılabilirliği için kullanılacak malzemelerin dielektrik parametrelerinin belirlenmesi çok önemlidir. Zira teknolojiye kullanılan ışık yayan organik diyotlar (organic light emission diode-OLED), organik potovoltaik (OPV-güneş pilleri) gibi ticari ürünlerin fabrikasyonunda bile, malzemelerin elektrik ve dielektrik özellikleri incelenmekte ve ona göre aygıtlar optimize edilmektedir.

Çalışmamızda, metal-yarıiletken kontaklar ve MESFET, MOSFET ve OFET, OPV gibi elektronik aygıtların fabrikasyonunda kullanılabilecek olan ferroelektrik perovskit malzemelerin dielektrik parametrelerinin belirlenmesi amaçlanmıştır. Çalışmamızda %1 Pd katkılı  $\text{LaCrO}_3$  ferroelektrik perovskit malzeme kullanılmıştır. Bu malzemenin dielektrik sabiti, impedans, elektrik modülasyon ve iletkenlik gibi dielektrik parametreleri impedans spektroskopisi metoduyla belirlenmiştir.  $\text{LaCrO}_3$  (LCO) dielektrik malzeme, son yıllarda en çok çalışılan ferroelektrik malzemelerden biri olmuştur. LCO ortorombik bir kristal yapıya sahiptir ve kafes parametreleri şöyledir:  $a = 5.513 \text{ \AA}$ ,  $b = 5.476 \text{ \AA}$ ,  $c = 7.759 \text{ \AA}$ . Bu özelliğinden dolayı, katı yakıt güneş hücrelerin de (Pudmich ve diğerleri, 2000), katalitik

dönüştürücülerinde (Zwinkels ve diğerleri,1999) ve oksijen sensörlerinde (Lund ve diğerleri, 2012) kullanılabılmışlardır. Son yıllarda yapılan çalışmalar LCO nun elektriksel ve manyetik özelliklerinin farklı malzemeler ile La atomuna katkılama yapılarak değiştirilebileceğini göstermiştir (Sun ve diğerleri, 2010; Qi ve diğerleri, 2000; Homma, ve diğerleri, 2007). Fakat yeni yapılan çalışmalar bu özelliklerin Cr atomuna yapılan katkılarla da modifiye edilebileceğini göstermiştir (Martijn, ve diğerleri,1997). LCO optik bant aralığı 3 ile 3,5 eV olan bir *p*-tipi yarı iletken malzemedir (Arima, ve diğerleri, 1993). Bu yüksek bant aralığından dolayı LCO sadece UV bölgesinde bulunan solar enerjiyi absorbe edebilmektedir. Absorbe edilen bu enerji de güneş spektrumunda yaklaşık %3 lük bir enerjiye karşılık gelmektedir. Yarı iletken malzemelerin band aralığını değiştirmek için yapılan çalışmalar “bant aralığı mühendisliği” (band gap engineering) olarak adlandırılır. Son zamanlarda, bant aralığı mühendisliği yardımıyla perovskit yapılarda 3-4 eV luk bant aralıklarının 1-2 eV kadar düşürülebileceği göstermiştir (Choi ve diğerleri, 2012). Literatürde, Arima ve arkadaşları LCO nun bant yapısının Fe ve Mn ların Cr yerine katılanmasıyla değiştirilebileceğini belgelemişlerdir (Arima, ve diğerleri, 1993).

Kimyasal formülü  $ABO_3$  olan Perovskit oksitlerin kristal yapılarından kaynaklan benzersiz elektriksel ve manyetik özellikleri nedeniyle araştırmacılar tarafından büyük ilgi görmüştür (Arima, ve diğerleri, 1993; Murarka, ve dg. 2003). Bu yapılarda A ve B katyonlarının boyutları birbirinden farklıdır. Peroksitlerde A atomu B atomundan daha büyük bir yapıya sahiptir. Oksijen (O) atomu ise anyondur. A katyonu farklı atom gruplarından olabilir. Örneğin, toprak alkali, alkali, Lantanit nadir-toprak vb. seçilmesine rağmen B katyonu genellikle periyodik tablonun geçiş elementlerinden seçilir. İdeal yapıları kübik olan bu malzemelerin kristal yapıları katkılama yapılarak değiştirilebilir. Bu kristal yapılardaki değişimlerde bu malzemelerin elektriksel ve manyetik özelliklerinin değişimine neden olur (Murarka ve dg. 2003; Bogusz va ve diğerleri, 2016).

Bu tez çalışması içerik olarak, ilk başta, bu çalışmayla ilgili kısa bir literatür bilgisi ve çalışmanın önemi ve amacını içeren bir “Giriş” bölümü; daha sonra ikinci bir ana başlık olarak, dielektrik malzemelerin tanımına vesile olan onun karakteristik parametrelerinin belirlenmesi için teorik bilgileri ihtiva eden “Materyal ve Yöntem” bölümü; üçüncü ana başlık olarak, dielektrik parametrelerin hesaplanması için ölçüm sıcaklığına ve *ac* frekansına bağlı grafik ve hesaplamaları içeren “DeneySEL Bulgular” ve elde edilen sonuçların yorumlanma kısmı olan “Sonuç Tartışma” ve gerekli kaynakların verildiği “Kaynakça” bölümlerinden oluşmaktadır.

## 2. TEORİK BİLGİLER

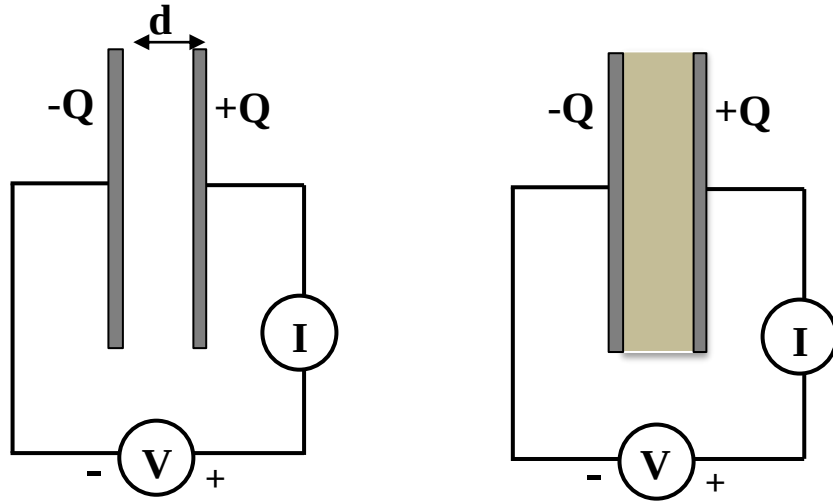
### 2.1. Malzemelerin Dielektrik Özellikleri

#### 2.1.1. Giriş

Bir dielektrik malzeme, bir dış elektrik alan uygulandığında polarize olabilme özelliğine sahip bir yalıtkandır. Böyle bir durumda, dielektrik malzeme polarize olduğu halde içinden herhangi bir akım geçmez. Buna rağmen, malzemenin yüklerinin denge durumundaki konumlarında bir değişim meydana gelir ve böylece polarizasyon olayı gerçekleşir. Bunun sonucu olarak, dielektrik içerisinde dış elektrik alanı dengelemeye veya sıfırlamaya yönelik bir içelektrik alan oluşur (Murarka ve dg. 2003; Vadim, 2012). Dielektrik" terimi, genel olarak, özellik olarak yüksek oranda polarize olabilen malzemeler olarak tanımlanırlar ve bu da "dielektrik sabiti" denilen bir nicelikle ifade edilir. Geleneksel olarak, bildiğimiz "yalıtkan" terimi düşük elektriksel iletme işaret eder.

#### 2.1.2. Kondansatörler

Deneyisel çalışmalarda, genellikle, malzemelerin dielektrik özellikleri belirlenirken, malzeme, belli bir kalınlıkta pellet haline getirilir ve sonra birbirine paralel iki iletken levha arasına konularak gerekli dielektrik ölçümleri yapılır.



Şekil 2.1 Paralel Levhalı (metal) boş ve dielektrik malzemeli kondansatörler

Bu düzenek, paralel levhalı bir kondansatör olarak adlandırılır. Şekil 2.1 'de gösterildiği gibi, düzenek, iki iletken levha arasına konulan yalıtkan bir tabakadan oluşur. Bu düzende,

dielektrik malzemenin yüzey alanı  $A$  ve kalınlığı olan  $d$  hesaplamalarda önemlidir. Önce, iletken levhalar arasında herhangi bir dielektrik malzeme olmadan  $\Delta V_0$  potansiyel farkı ölçülür. Bu durumda, levhaların  $Q_0$  yükü dikkate alınarak, kondansatör,

$$C_0 = \frac{Q_0}{\Delta V_0} = \frac{A\epsilon_0}{d} \quad (2.1)$$

olarak ifade edilir. Levhalar arasına dielektrik malzeme konulduğunda levhaların uçları arasındaki potansiyel farkı değişir, fakat levhaların yükünde herhangi bir değişiklik olmaz. Böylece yeni düzeneğin kondansatörü için eşitlik,

$$C = \frac{Q_0}{\Delta V} \quad (2.2)$$

şeklini alır. Burada, heriki durum için yazılan ifadeler birbirine oranlanırsa,

$$\frac{C}{C_0} = \frac{\Delta V_0}{\Delta V} = \epsilon \quad (2.3)$$

olur. Burada  $\epsilon$ , dielektrik malzemenin dielektrik sabiti olarak adlandırılır. Böylece, iletken levhalar arasında dielektrik malzeme varken kondansatör

$$C = \epsilon C_0 = \epsilon \frac{A\epsilon_0}{d} \quad (2.4)$$

eşitliğiyle verilir.

### 2.1.3. Dielektrik Kutuplanma Çeşitleri

Bir dış elektrik alanın etkisi altında yüklü parçacık düzenlenmesiyle bir kutuplanma oluşur. Dielektrik malzemelerde dört farklı kutuplanma mevcuttur.

1. Elektronik Kutuplanma
2. İyonik Kutuplanma
3. Doğrultuya bağlı Kutuplanma
4. Arayüzey Kutuplanması

### 2.1.4. Elektronik Kutuplanma

Bir dış elektrik alan uygulandığında, atomun çekirdeği etrafındaki elektronların yer değiştirmeleri sonucu bu kutuplanma ortaya çıkar. Elektronik kutuplanma, dielektrik malzemelerde diğer kutuplanmalar olmasa bile gözlenebilir. Bu kutuplanmanın kendine has bir özelliği de dış bir elektrik alanının varlığında  $10^{-15}$  s gibi çok kısa bir sürede meydana gelmesidir.

### 2.1.5. İyonik Kutuplanma

NaCl gibi farklı cins iyonik moleküllerde, iyonların karşılıklı yer değiştirmeleriyle iyonik kutuplanma ortaya çıkar. Bu tür kutuplanma oluşması için, elektronik kutuplanma için gerekli olan süreden daha büyük olan  $10^{-13}$  -  $10^{-12}$  s gibi bir zaman aralığında meydana gelmesidir. İyonik bağlar içeren bir molekül, dışarıdan uygulanan elektrik alan etkisinde bu tür moleküllerin bağ uzunluğu gerilmeye başlar. İyonik NaCl molekülü bu duruma örnek verilebilir. Bu bağ gerilmesi birim hücrede yeni net bir dipol momentinin oluşmasına sebep olur. Sağa yönelimli elektrik alanın etkisinden dolayı, pozitif  $\text{Na}^+$  iyonları sağa ve negatif  $\text{Cl}^-$  iyonları da sola doğru kayar ve sonuçta bağlar arasındaki uzaklık artar. İyonik kutuplanma, NaCl gibi iyoniklerin yanı sıra  $\text{H}_2\text{O}$  gibi dipolar moleküllerde de oluşur. Bu moleküllerin sahip oldukları iyonik bağlardan dolayı bu tür bir kutuplanma her zaman beklenebilir (Murarka ve dg. 2003).

### 2.1.6. Yönelme Kutuplanması

Dielektrik malzemeye bir dış elektrik alan uygulanmadan önce, malzemenin dipolleri gelişigüzel yönelirler. Dış elektrik alanının varlığında, dipoller düzene girer ve sonuçta alan yönünde net bir kutuplanma oluşur. Bu kutuplanmada dipollerin çevresini saran moleküllerin direncini yenip yönelebilmesi için bir enerjiye gereksinimleri vardır. Bu yüzden, bu yönelme sıcaklığa da kuvvetli bir şekilde bağlıdır.

### 2.1.7. Arayüzey Kutuplanması

Şimdiye kadar anlattığımız kutuplanma çeşitlerinde atomun içindeki negatif ve pozitif yükler ve bunlar arasındaki bağlardan dolayı birbirinden ayrılamayacağını tartıştık. Bununla beraber kutuplanma hareketli ve tuzak yükü ile de oluşabilir. Bu kutuplanma çeşidine arayüzey kutuplanması veya uzay yükü kutuplanması diyeceğiz. Bu kutuplanma temelde amorf veya polikristal (polycrystalline) katılarda veya tuzak içeren malzemelerde meydana gelir.

## 2.2. Dielektrik Fonksiyonu ve Dielektrik Kayıp

Dielektrik malzemelerde, dielektrik sabiti ve dielektrik kayıp elektrik mühendisleri için önemli parametrelerdir. Çünkü bu iki parametre diğerlerine nazaran bir malzemenin belirli bir amaç için uygunluğu ve uygulanabilirliği hakkında bilgi verir. Pratikte mekanik dayanıklılık ve yalıtım gibi önemli alanlarda kullanılan malzemelerin enerji kayıplarını azaltmak için dielektrikler üzerinde çalışılmaktadır (Murarka ve dg. 2003). Bir iyonik kristalde dielektrik sabitinin frekansla değişimi kutuplanabilirliğin ve kutuplanmanın

değişimi ile benzerdir. Düşük frekans değerlerinde dielektrik sabiti elektronik, iyonik ve uzay yükü kutuplanmalarından oluşur. Frekansın fonksiyonu olarak ölçümlerde, belli bir frekanstan sonra uzay yükü kutuplanması gayet zayıflar ve böylece dielektrik sabiti frekanstan bağımsız davranmaya başlar. Dielektrik sabitinin gerçek değeri olan  $\epsilon_s$  bu frekansta ortaya çıkar.

Frekansın daha ileri değerlerinde, rezonans soğurma frekansı kırmızı ötesi bölgeye kadar değişmez. Rezonansın vuku bulduğu frekansdan sonra, elektrik alan değişimi iyonlar tarafından takip edilemeyeceğinden dolayı, kutuplanma sadece elektronik katkıdan dolayı devam eder ve bu bölgedeki dielektrik sabiti terimi optik ( $\epsilon_{opt}$ ) veya yüksek frekans dielektrik sabiti olarak isimlendirilir ( $\epsilon_\infty$ ) (Murarka ve dg. 2003; Vadim, 2012; Tareev, 1975; Kao, 2004; Raju, 2003). Dielektrik malzeme bir alternatif akım alanı altında yüklerde, eylemsizlik etkilerinden ve uzay yönelimli kusurların varlığından dolayı, elektrik alanını takip edemeyeceklerinden herhangi bir yük yer değiştirme olayı meydana gelmeyecektir. Böyle bir durumda, dielektrik sabiti ( $\epsilon^*(\omega)$ ) ile ifade edilen kompleks bir sayı gibi davranır. Dielektrik sabitinin reel ve imajiner kısımları,

$$\epsilon^*(\omega) = \epsilon'(\omega) + i\epsilon''(\omega) \quad (2.5)$$

Bu ifadede  $\epsilon'$  ve  $\epsilon''$  nicelikleri; dielektrik sabitinin reel ve imajiner kısımlarıdır ve  $i$  imajiner  $\sqrt{-1}$  ile verilir. Kompleks dielektrik sabitinin reel ve kompleks kısmı açık olarak

$$\epsilon' = \frac{C}{C_0} = \frac{Cd}{\epsilon_0 A}, \quad \epsilon'' = \frac{G}{\omega C_0} = \frac{Gd}{\omega \epsilon_0 A} \quad (2.6)$$

eşitlikleri şeklinde yazılabilir, Burada  $C_0$  değeri boş kapasitörün sığasını,  $A$  elektrodun yüzey alanını ifade eder.

### 2.3. Kompleks İmpedans ve Admittans

Kompleks impedans  $Z^*$  ile kompleks dielektrik sabiti  $\epsilon^*$  arasındaki ilişki aşağıdaki ifadeyle verilir (Nicollian & Brews, 1982; Nicollian, E., & Goetzberger, 1967):

$$Z^* = Z' - jZ'' = \frac{M^*}{j2\pi f \epsilon_0} = \frac{1}{j2\pi f \epsilon^* C_0} = \frac{\epsilon'' - j\epsilon'}{2\pi f C_0 [(\epsilon')^2 + (\epsilon'')^2]} \quad (2.7)$$

Bu ifadede  $Z'$  ve  $Z''$  sırasıyla gerçek ve sanal impedanstır ve  $M^*$  ise kompleks elektrik modülüdür.

Malzemelerde meydana gelen relaksasyon süreçlerinin incelenmesinde elektrik modülüs en çok kullanılan methodların başında gelir. Kompleks impedans veya kompleks dielektrik sabiti ( $\epsilon^* = 1/M^*$ ) değeri aşağıdaki eşitlik ile modülüs denklemine dönüştürülebilir:

$$M^* = j\omega C_0 Z^* \quad (2.8)$$

$$M^* = \frac{1}{\epsilon^*} = M' + jM'' = \frac{\epsilon'}{\epsilon'^2 + \epsilon''^2} + j \frac{\epsilon''}{\epsilon'^2 + \epsilon''^2} \quad (2.9)$$

Bu denklemlerin yanısıra, kompleks admittans ( $Y^*$ ) 'da önemli bir parametredir ve aşağıdaki gibi tanımlanır

$$Y^* = \frac{1}{Z^*} = Y' - jY'' = G + jB \quad (2.10)$$

bu denklemde  $Y'$  ve  $Y''$  gerçek ve sanal admittanstır ve  $G$  konduktans,  $B=C/\omega$  susseptanstır. Kompleks impedans,  $Z^*$  aşağıdaki gibi yazılabilir:

$$Z^* = Z' - jZ'' = R_s - jX \quad , \quad (2.11)$$

burada  $R_s$ , seri direnç veya kapasitif reaktans and  $X$  induktif reaktans. Böylece,

yukarıda bulunan denklemleri de dikkate alarak kompleks admittans için

$$Y^* = \frac{1}{R_s - jX} = Y' - jY'' = G + jB \quad (2.12)$$

$$Y^* = \frac{1}{R_s - jX} = \frac{R_s + jX}{R_s^2 + X^2} = \frac{R_s}{R_s^2 + X^2} + j \frac{X}{R_s^2 + X^2} \quad (2.13)$$

$$Y' = \frac{R_s}{R_s^2 + X^2} = G \quad (2.14)$$

$$Y'' = \frac{X}{R_s^2 + X^2} = B \quad (2.15)$$

eşitlikleri yazabiliriz.

### 3. DENEYSEL BULGULAR

#### 3.1. Numunelerin Hazırlanması

##### 3.1.1. Kimyasal Tozların ve Magnetron Hedeflerin Sentezlenmesi:

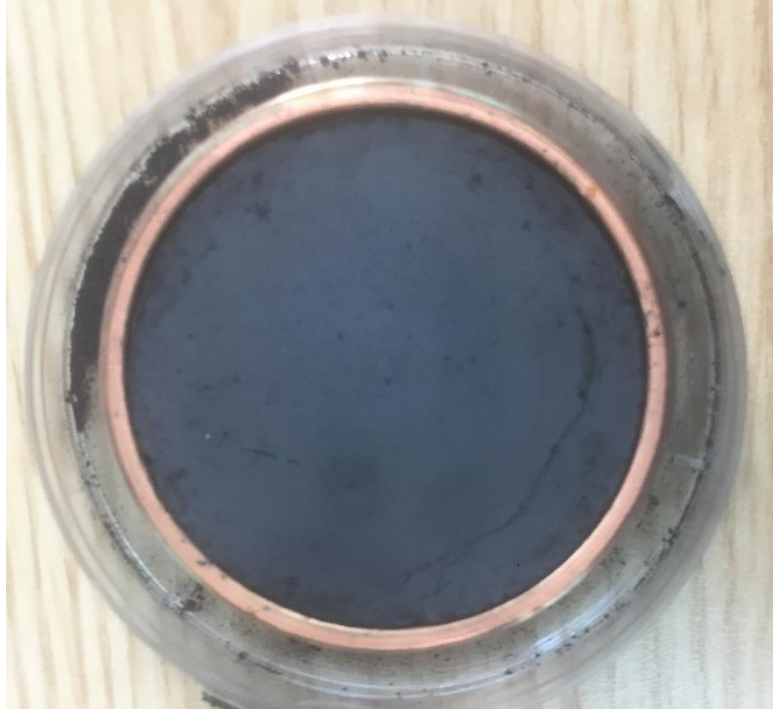
%1 Pd katkılanmış  $\text{LaCrO}_3$  (LCMO) tozları katı hal reaksiyon (solid state reaction) metodu kullanılarak hazırlanmıştır. Tozlarının hazırlanmasında, istenilen stokiometrilere seçilen tozlarımız havanda etanol ile ıslatılarak bir saat kadar iyice karıştırılmış ve  $900^\circ\text{C}$ 'de 10 saat fırında ısıl tavlama işlemine tabi tutulmuştur. Homojen halde tozlar elde etmek için fırından çıkarılan tozlar yeniden havanda bir saat süreyle dövülmüştür. Daha sonra  $1200^\circ\text{C}$ 'de hava ortamında 12 saat boyunca ikinci defa ısıl tavlama işlemi yapılmıştır. Böylece, istenilen malzemelerin kimyasal stokiometrilere elde edilmiştir. Tozlar elde edildikten sonra mıknatıslı büyütme (DC magnetron sputtering) için tozlar 2 inç büyüklüğündeki bakır kaplara konarak yaklaşık 400 bar basınçta 20 dakika boyunca sıkıştırılmıştır. Ayrıca, dielektrik ve XRD ölçümleri için, %1 Pd katkılı  $\text{LaCrO}_3$  tozları, bir dakika boyunca 10 ton basınçta 13 mm çaplı pelletler (Şekil 3. 1.) oluşturmak için preslendi. Hedeflerin sinterlenmesi için pelletler yavaş yavaş dört saat boyunca  $1150^\circ\text{C}$  'ye kadar ısıtıldı. Novocontrol Broadband Dielektrik/Empedans Spektrometresi cihazı frekansa bağlı elektrik ve dielektrik ölçümleri için kullanılmıştır. Numunelerin ölçüm sıcaklığı,  $20^\circ\text{C}$  'lik basamaklarla  $-100^\circ\text{C}$  'den  $+100^\circ\text{C}$  'ye kadar değiştirilmiştir.

##### 3.1.2. Mıknatıslı Püskürtme İçin Gerekli olan Tozların Hazırlanması İnce Filmlerin Sentezlenme Koşulları:

Şekil 3.2 'de, 2 inç büyüklüğünde bakır kaplara %1 Pd katkılı  $\text{LaCrO}_3$  tozların sıkıştırılmasıyla hazırlanan hedefler (targets) görülmektedir. Bu hedefler, Şekil 3.4 'de verilen, ince film kaplama veya büyütme Ünitesi yerleştirildikten sonra sistem içerisindeki hava ve diğer gazlar gece boyunca turbo pompa ile boşaltılıp sistemin basıncı  $2 \times 10^{-6}$  mbar'a kadar indirilmiştir. İnce film sentezleme işlemi yaklaşık 2 milibar basınçta ve  $500^\circ\text{C}$ 'de Silisyum ve cam alttaşlar üzerine yapılmıştır. Sentezleme sırasında Ar gazı kullanılmıştır. Filmler sentezlendikten sonra sistem düşük basınçta ( $\sim 10^{-6}$  mbar) soğumaya bırakılmış daha sonra sistemden alınan ince filmlerin karakterizasyonları yapılmıştır.



**Şekil 3.1** %1 Pd katkılanmış  $\text{LaCrO}_3$  malzemesinden hazırlanmış pelletler



**Şekil 3.2.** %1 Pd katkılanmış  $\text{LaCrO}_3$  ince film için hazırlanmış hedef (target) numune

## X IŞINI DİFRAKTOMETRESİ



- 2.2 kW Cu X –Işını Kaynağı
- Paralel ışın POLYCAP, Spot çapı >4mm
- Cu için Göbel aynası
- Ge022 4-yansımali monokromatör
- Cu-K $\beta$  radyasyonu için Ni filtre
- Motorlu Chi, Phi, X, Y ve Z eksenleri ile
- Euler beşik için kılcal döndürücü (capillary spinner)
- 5" dönebilen vakumlu numune standı
- Dönebilen vakumlu numune standı için bıçak sırtı optik yönlendirici
- Lazer-video mikroskop
- 0/90 ° monte ile 1D LYNXEYE XE detektörü
- VANTEC-500 2D detektörü

**Şekil 3.3** X-ışını Difraktometresi



#### İNCE FİLM SİSTEMİ SPUTTER VE TERMAL EVAPORATÖR

- Metal ve oksit malzeme kaplama
- 2 adet 2" sputter kaynak
- 2 termal buharlaştırma kaynağı
- $7 \times 10^{-8}$  torr taban vakum seviyesi

**Şekil 3.4** İnce film kaplama Ünitesi, Saçtırma ve buharlaştırma Sistem



#### KOMPLEKS DİELEKTRİK VE EMPEDANS SPEKTROMETRESİ

- Frekans: 3 $\mu$ Hz-40MHz
- Sıcaklık: -160/+400°C (+/- 0.1°C)
- Alfa-ANB, aktif baş numune hücreli ZGS test arayüzü
- Yazılım: WinDeta, WinTemp, WinPlot ve WinFIT

**Şekil 3.5** Dilektrik ölçümleri için kullanılan Kriyos Kompleks Dielektrik ve Empedans Spektrometresi

## 3.2. Karakterizasyon

### Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM)

Sentezlenen malzemenin mikro yapı analizleri ULTRAPLUS ZEISS ve FEI XL40 Sirion FEG model dijital taramalı mikroskobu (numuneler SEM analizi öncesinde 2 dk.10mA altın ve palladium ile kaplanarak) kullanılmıştır.

### X-ray Fotoelektron Spektroskopisi (XPS)

Elde edilen malzemelerin oksidasyon durumlarının tespiti için SPECS XPS kullanılmıştır. Analizlerde C 1s in 284.6 eV daki pikine göre kalibrasyon yapılmıştır.

### Malzemenin Dielektrik Özelliklerin Ölçülmesi

FE malzemelerin elektriksel özellikleri örneğin empedans, elektrik modülü, dielektrik sabiti, iletkenlik gibi Novocontrol Broadband Dielectric/Impedance Spektrometresi kullanılarak ölçülmüştür. Ölçülen numunenin sıcaklıkları  $-100^{\circ}\text{C}$  ile  $100^{\circ}\text{C}$  arasında  $20^{\circ}\text{C}$  artırılarak ölçülmüştür.

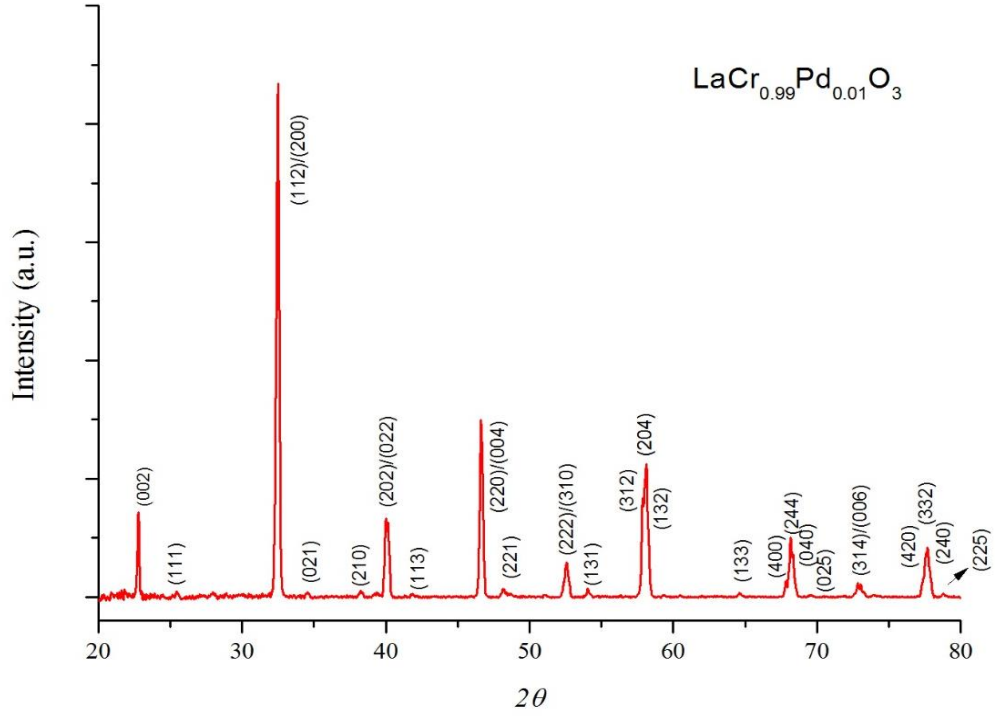
### UV-Vis Ölçümleri:

UV-Vis ölçümleri için SHIMADZU UV-2600 (UV-Vis) spektrometre kullanılmıştır. Ölçümler 300 ile 750 nm dalgaboyu aralığında yapılmıştır.

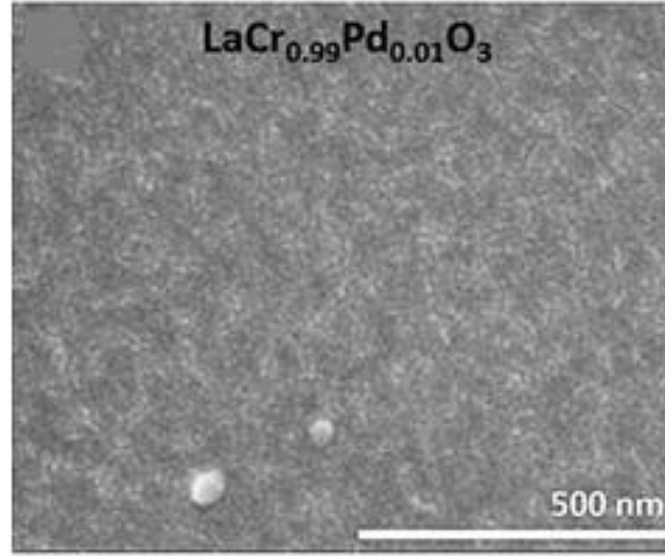
### XRD Analizi

Elde edilen %1 Pd katkılı  $\text{LaCrO}_3$  malzemenin tozların kristal yapıları X-ışınları kırınımı (XRD) spektrumu görülebilir. Bu şekillerden de görüldüğü üzere LCO ve LCMO numuneleri perovskit yapıya sahiptir. Bilindiği üzere Bragg kanununa göre kırınım açısı ile kafes parametresinin büyüklüğü ters orantılıdır. Bundan dolayı kafes parametresi küçük olan malzemelerin  $2\theta$  pikleri daha büyük açılara doğru kayar, buna benzer sonuçlar literatürde daha önce görülmüştür (Corrêa vd.; 2008; Jiao vd., 2016). %1 Pd katkılı  $\text{LaCrO}_3$  numunesinin XRD eğrilerine (Şekil 3.6) baktığımızda ise  $2\theta$  pik açıları küçük değerlere doğru kaymaktadır. Yukarıda da açıkladığımız üzere bu da  $2\theta$  kırınım açılarının daha küçük açılara doğru kaymasına neden olmaktadır.

### 3.3. Yapısal ve Optik Özellikler



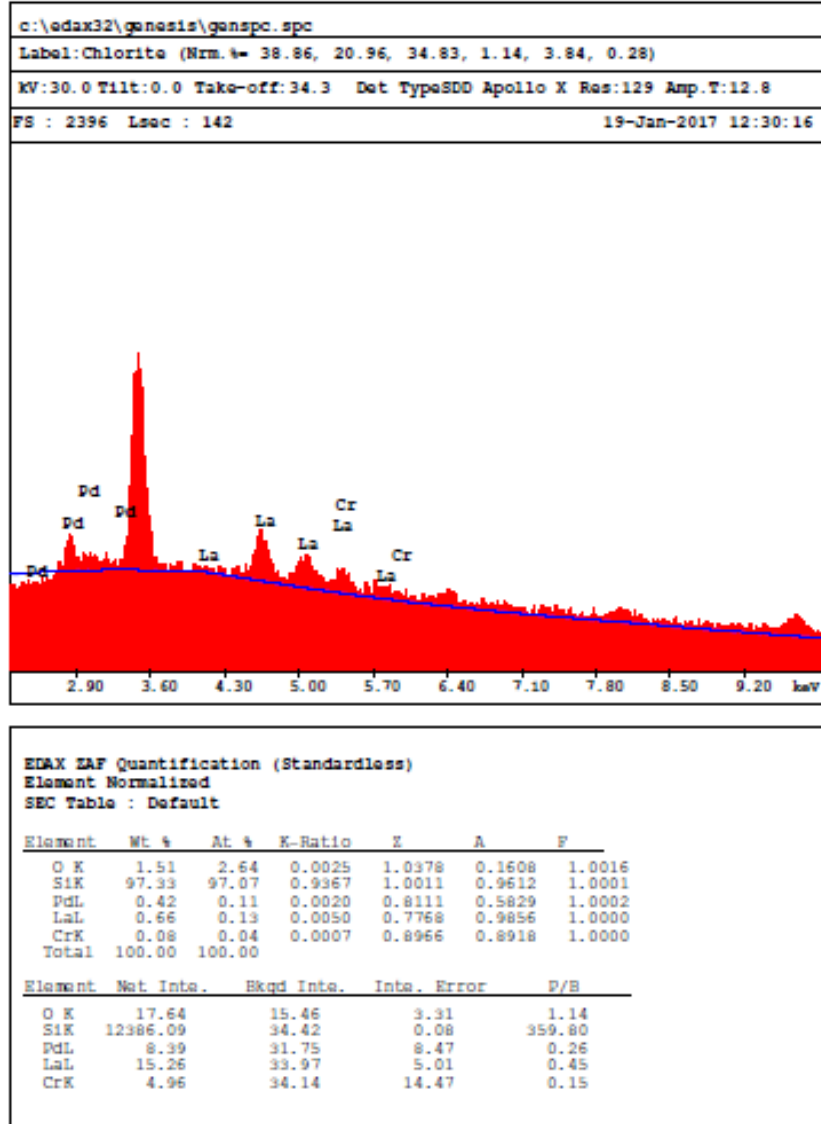
Şekil 3.6 %1 Pd katkılı  $\text{LaCrO}_3$  tozlarının XRD kırınım spektrumları



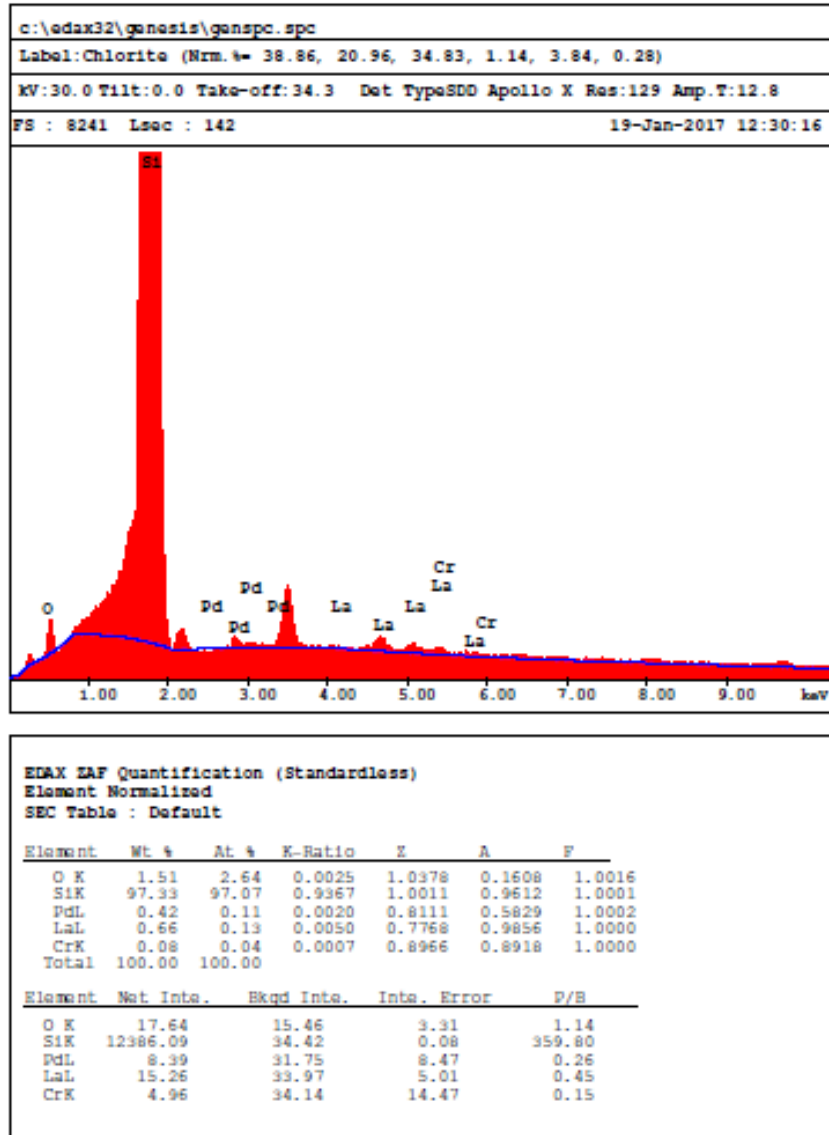
Şekil 3.7 Silisyum üzerine büyütülen %1 Pd katkılanmış  $\text{LaCrO}_3$  ince filminin SEM görüntüsü

Silisyum alttaş üzerine büyütülen %1 Pd katkılanmış  $\text{LaCrO}_3$  in yüzey topografileri taramalı elektron mikroskobu (SEM) yardımı ile incelenmiştir. Film örneklerinin SEM

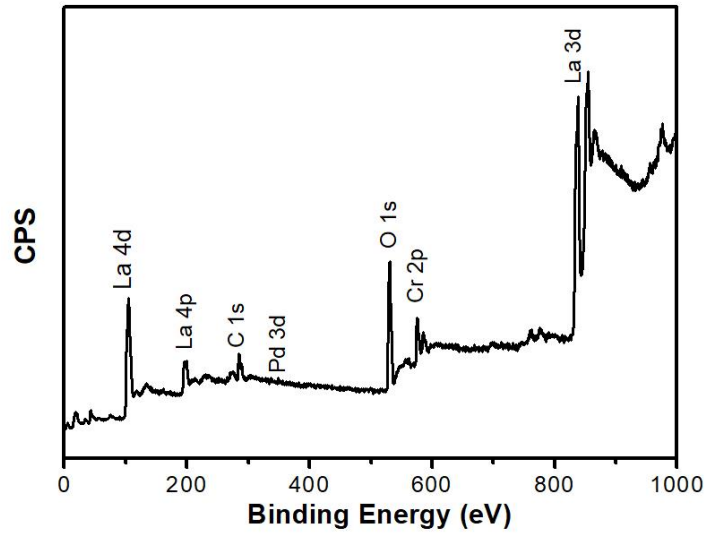
görüntülerini almak için yalıtkan filimlerde net görüntü elde edilmesi amacıyla yüzeylerin iletken bir tabaka ile çok ince bir şekilde kaplanması gerektiğinden Pd ile yüzeyleri kaplanmış ve elde edilen görüntü **Şekil 3.7** de verilmiştir. Görüldüğü üzere sentezlenen bütün filmin yüzeyinde herhangi bir çatlama, kırık, yarık veya delik gibi kusurlar görünmemektedir. Elde edilen filmlerin yüzeyi gayet temiz ve homejen bir yapıya sahiptir.



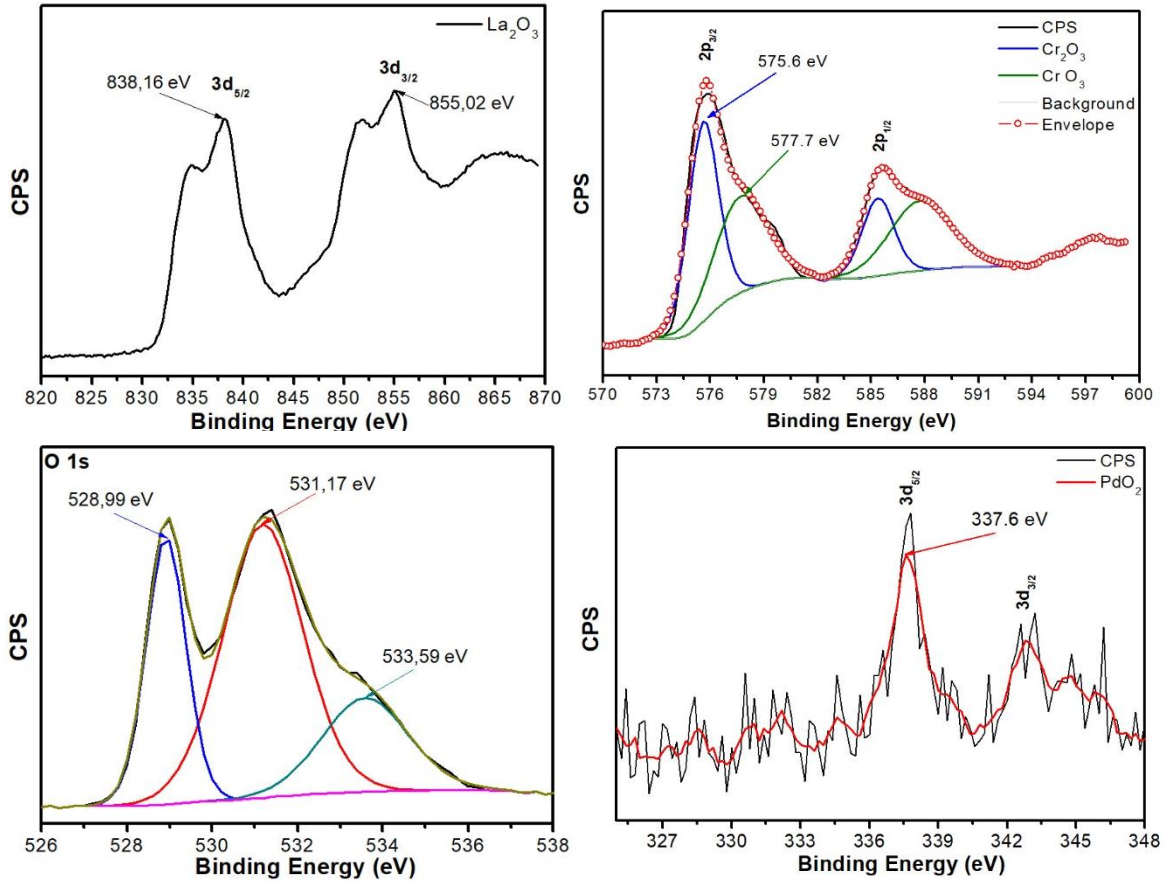
**Şekil 3.8** Cam üzerine büyütülen %1 Pd katkılanmış  $\text{LaCrO}_3$  ince filmin (Enerji dağılımlı X-ışını spektroskopisi) EDX spektrumları



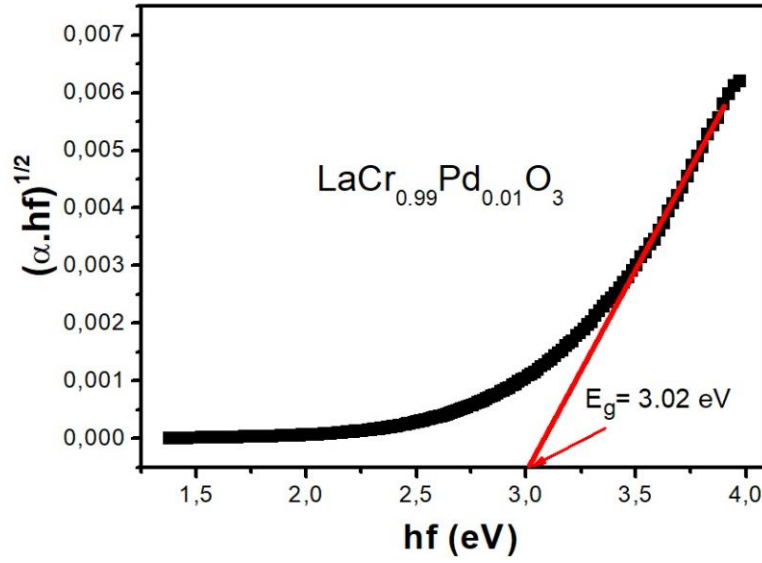
**Şekil 3.9** Silisyum taban malzeme üzerine büyütülen %1 Pd katkılanmış  $\text{LaCrO}_3$  ince filmin EDX spektrumları



**Şekil 3.10** %1 Pd katkılanmış  $\text{LaCrO}_3$  'nin (X-ışını fotoelektron Spektroskopisi) XPS spektrumu



**Şekil 3.11** XPS spektrumları, a)  $\text{LaCrO}_3$  için La 3d spektrumu, b)  $\text{LaCrO}_3$  için Cr 2p spektrumu, c) Pd katkılanmış  $\text{LaCrO}_3$  için O 1s spektrumu, d) Pd katkılanmış  $\text{LaCrO}_3$  için Pd 3d spektrumu



Şekil 3.12 %1 Pd katkılanmış  $\text{LaCrO}_3$  ince filmin optiksel soğurma grafiği

%1 Pd katkılanmış  $\text{LaCrO}_3$  filmlerinin optik bant değeri, soğurma denklemini kullanılarak çalışıldı:

$$(\alpha hf) = A(hf - E_g)^n \quad (3.1)$$

burada  $\alpha$ , soğurma katsayısıdır,  $hf$ , foton enerjisi,  $A$  bir sabittir ve  $E_g$ , malzemenin optik bant aralığıdır.  $E_g$  değeri, yukarıda verilen  $(\alpha hf)^{1/n} \sim hf$  grafiğini çizilerek ve grafiğin lineer kısmını  $(\alpha hf)^{1/n} = 0$  'a ekstrapole ederek elde edildi. Yukarıdaki denklemde  $n$ , geçiş sürecinin türünü karakterize eder. Doğrudan geçişler için,  $n = 1/2$  ve dolaylı geçiş işlemleri için  $n = 2$ . Şekil 3.12 'den görüldüğü gibi, %1 katkılı  $\text{LaCrO}_3$  için 3,02 eV 'luk bir bang aralığı değeri elde edilmiştir.

### 3.4. Elektriksel Analizler

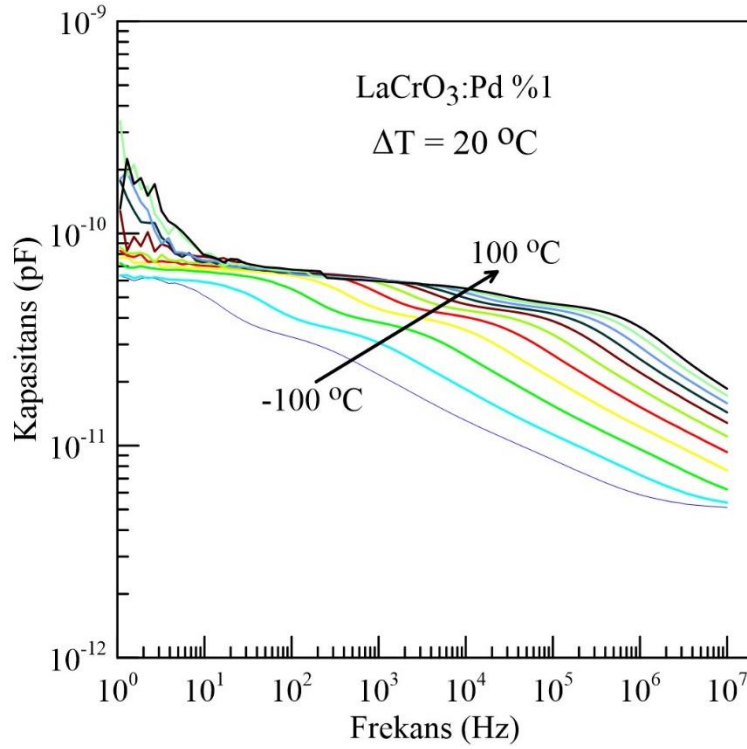
%1 Pd katkılı  $\text{LaCrO}_3$  malzemesinin dielektrik özellikleri detaylarıyla anlatılacaktır. Malzemenin elektriksel özellikleri, numune ölçüm sıcaklığı olarak 20 °C'lik artışlar ile -100 °C'den +100 °C'e ve 1 Hz-10<sup>7</sup> Hz 'lik frekans aralığında incelenmiştir. Yapılan ölçümlerin verileri aşağıda sırasıyla sunulmaktadır. Frekansa ve sıcaklığa bağlı  $\epsilon'$ ,  $\epsilon''$ ,  $\sigma_{ac}$ ,  $\tan(\delta)$ ,  $M'$  ve  $M''$  parametreleri sırasıyla aşağıdaki, Kompleks dielektrik sabiti:

$$\varepsilon^* = \varepsilon' - j\varepsilon'' \quad (3.2)$$

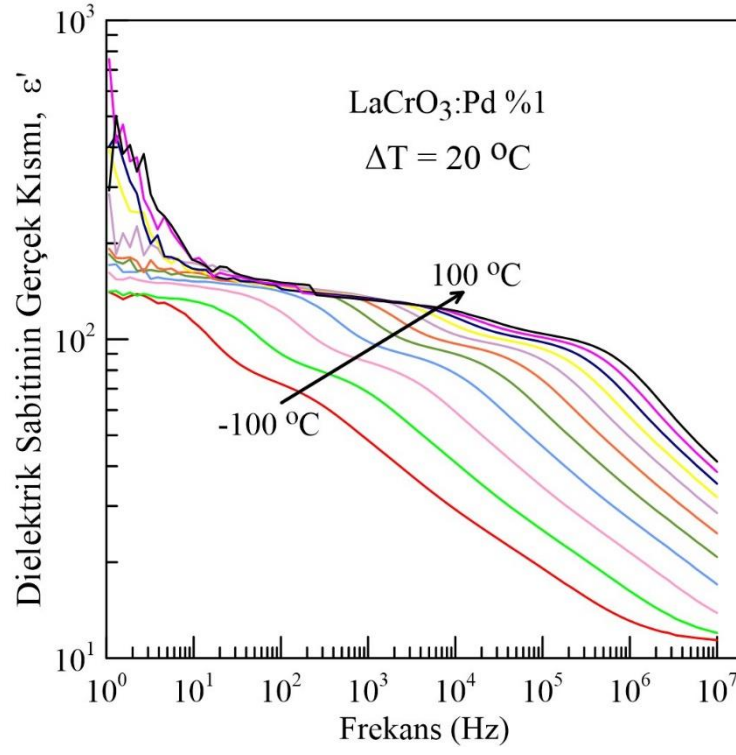
$\varepsilon'$  ve  $\varepsilon''$  değerleri; dielektrik sabitinin reel ve imajiner kısımlarıdır ve  $i$  imajiner  $\sqrt{-1}$  ile verilir. Komplek dielektrik sabitinin reel kısmı için

$$\varepsilon' = \frac{C}{C_0} = \frac{Cd}{\varepsilon_0 A} \quad (3.3)$$

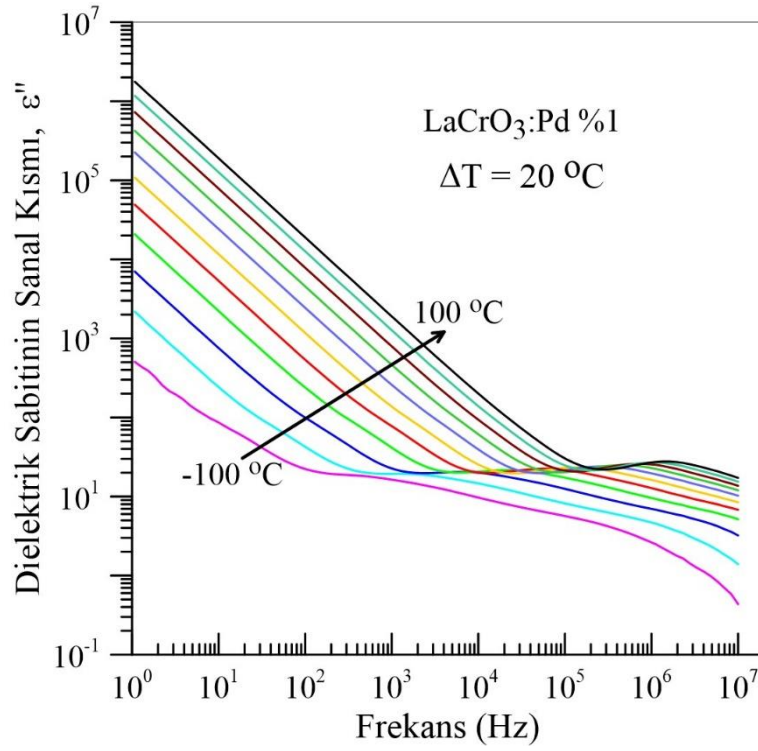
Eşitliği yazılabilir, Eşitlik 3.21'deki  $C_0$  değeri boş kapasitörün sığasını,  $A$  elektrodun alanını ( $\text{cm}^2$ );  $d$ , pellet halindeki %1 Pd katkılı  $\text{LaCrO}_3$  'nin kalınlığını,  $\varepsilon_0$  serbest uzay dielektrik sabitini ( $\varepsilon_0=8,85 \times 10^{-14}$  F/cm) ifade etmektedir. Kullandığımız dielektrik numunenin sıcaklığın bir fonksiyonu olarak kapasitans-frekans ( $C$ - $T$ - $f$ ),  $\varepsilon'$ - $T$ - $f$  ve  $\varepsilon''$ - $T$ - $f$  grafikleri aşağıdaki şekillerde verilmiştir.



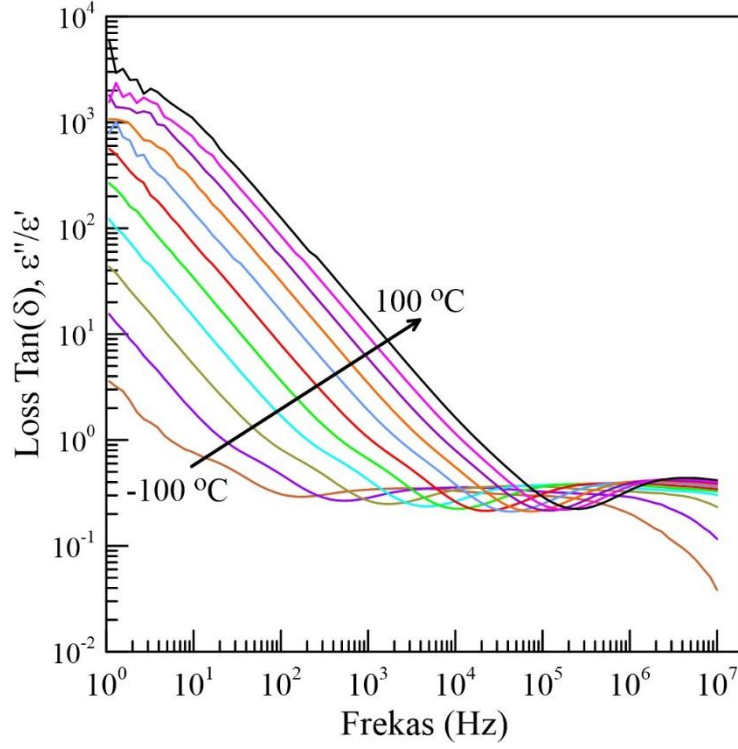
**Şekil 3.13.** %1 Pd katkılı  $\text{LaCrO}_3$  malzemesinin  $20^\circ\text{C}$ 'lik artışlar ile  $-100^\circ\text{C}$ 'den  $+100^\circ\text{C}$  % Frekansa karşı Kapasitans grafiği



Şekil 3.14. Malzemenin frekansa karşı dielektrik sabitinin gerçek kısmının grafiği



Şekil 3.15. Malzemenin Frekansa karşı dielektrik sabitinin sanal kısmının grafiği



**Şekil 3.16.** Malzemenin Frekansa karşı Loss Tanjant grafiği

Kompleks dielektrik sabitinin sanal kısmı  $\varepsilon''$ ,

$$\varepsilon'' = \frac{G}{\omega C_0} = \frac{Gd}{\varepsilon_0 \omega A} = \frac{d}{RA\varepsilon_0 \omega} = \frac{\sigma}{\varepsilon_0 \omega} = \frac{1}{\rho \varepsilon_0 \omega} \quad (3.4)$$

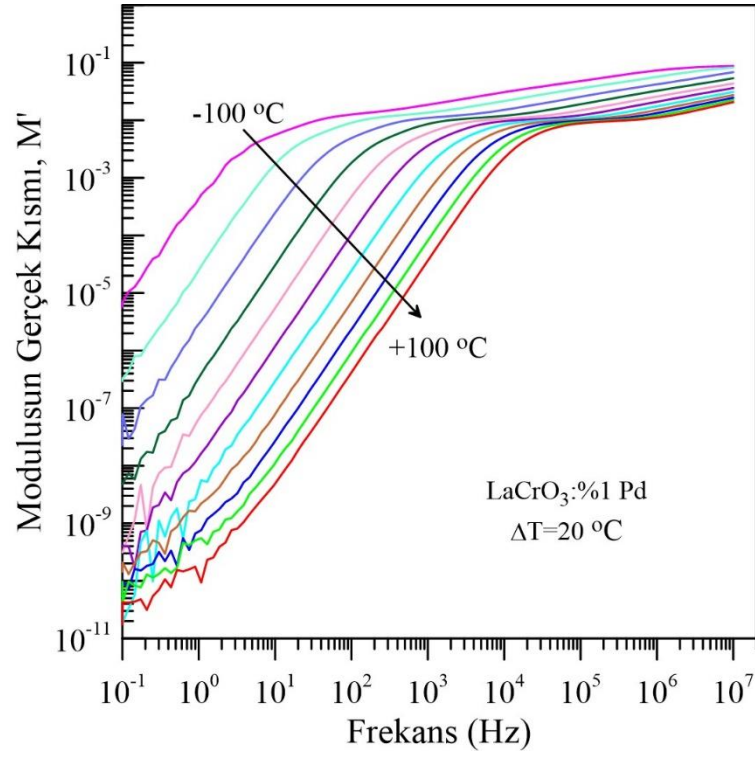
Denklemlerle ifade edilebilir. Tanjan Loss,  $\tan(\delta)$ :

$$\tan \delta = \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'} \quad (3.5)$$

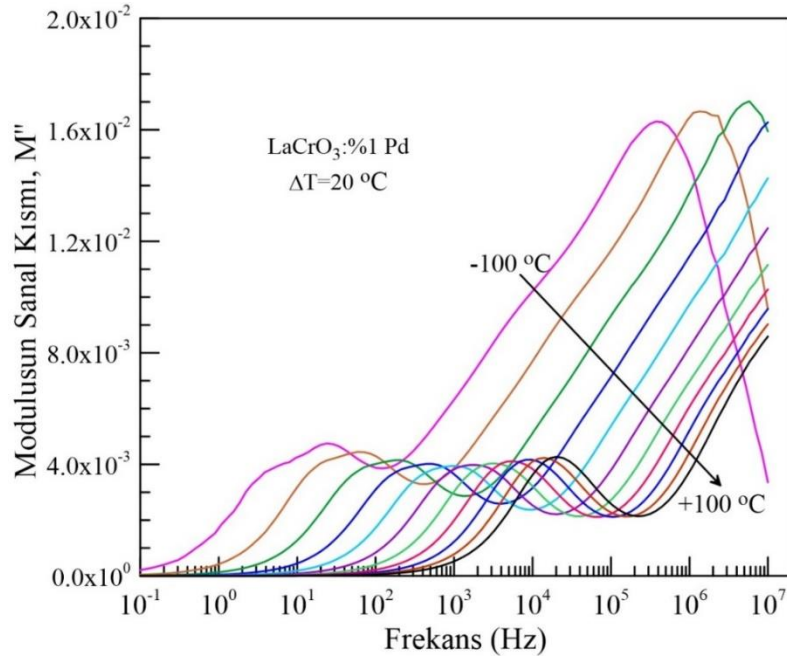
Şeklinde verilir. Loss  $\tan(\delta)$  parametresinin farklı sıcaklıklarda frekansa bağlı grafikleri Şekil 3-16 ile verilmiştir. Dielektrik özelliklerin belirlenmesinde kullanılan elektriksel modülüs kısaca dielektrik fonksiyonunun tersi olarak avertedir. Malzemelerde meydana gelen relaksasyon (durulma) süreçlerinin incelenmesinde elektrik modülüs en çok kullanılan methodların başında gelir. Kompleks impedans veya kompleks dielektrik sabiti ( $\varepsilon^* = 1/M^*$ ) değeri aşağıdaki eşitlik ile modülüs ifadesine dönüştürülebilir:

$$M^* = \frac{1}{\varepsilon^*} = i\omega C_0 Z^* = M' + jM'' = \frac{\varepsilon'}{\varepsilon'^2 + \varepsilon''^2} + j \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'^2 + \varepsilon''^2} \quad (3.6)$$

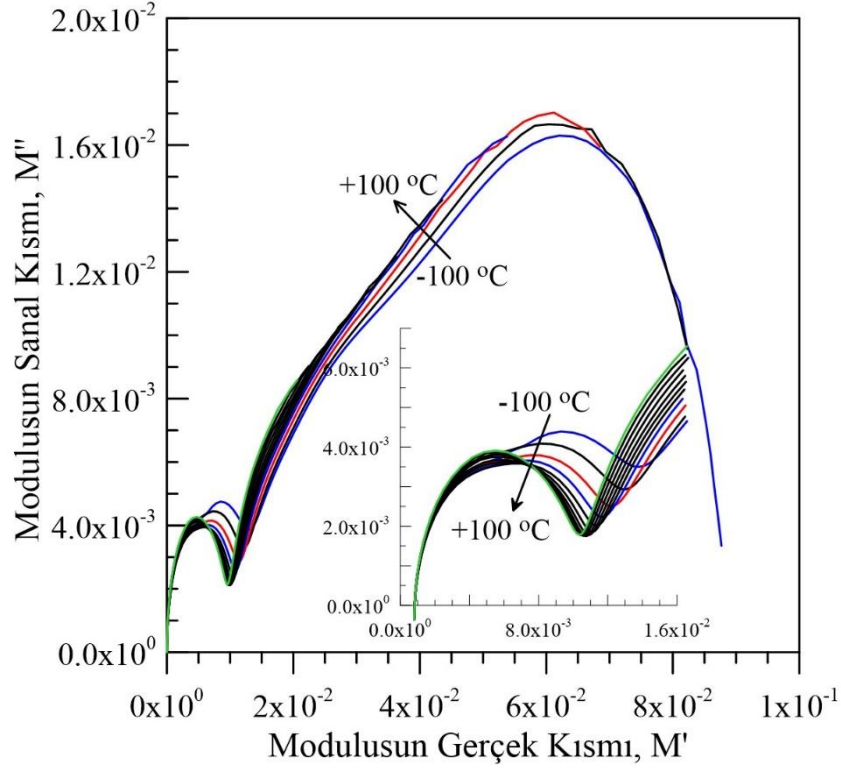
Reel kısım  $M'$ , ve imajiner kısım  $M''$  'nin sıcaklığın bir fonksiyonu olarak Frekansa karşı grafikleri aşağıdaki şekillerde verilmiştir.



**Şekil 3.17.** Elektriksel modulusun gerçek kısmı  $M'$  'nin sıcaklığın bir fonksiyonu olarak Frekansa karşı grafiği



**Şekil 3.18.** Elektriksel modulusun sanal kısmı  $M''$  'nün sıcaklığın bir fonksiyonu olarak Frekansa karşı grafiği

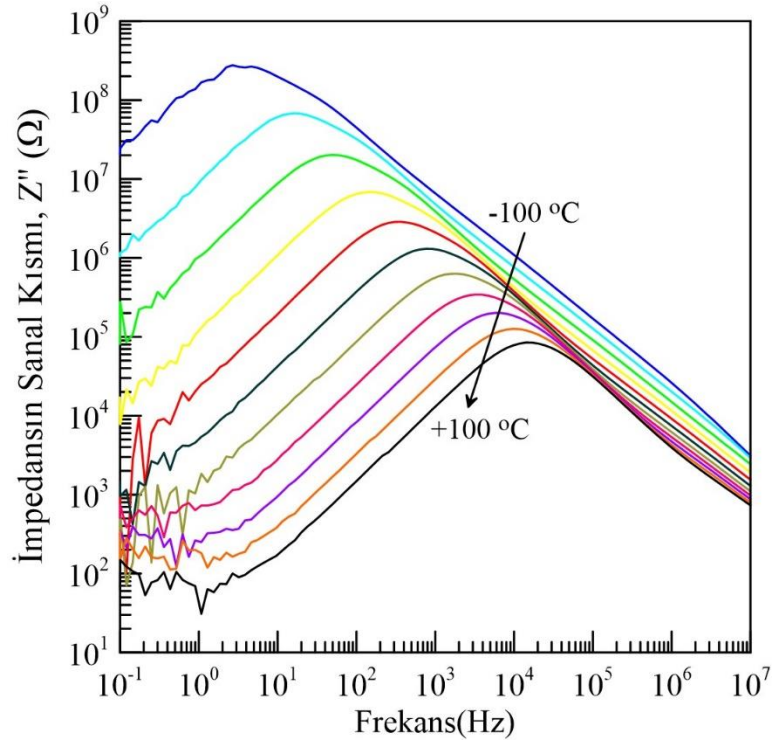
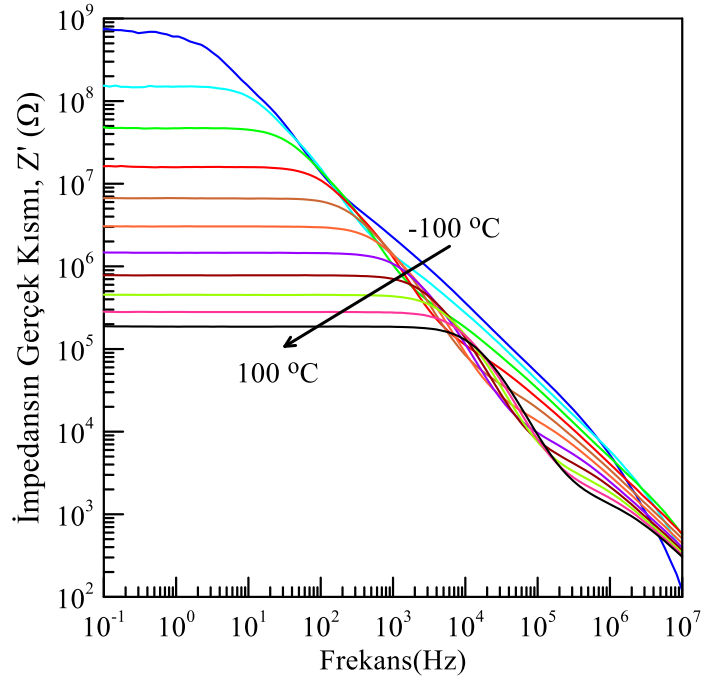


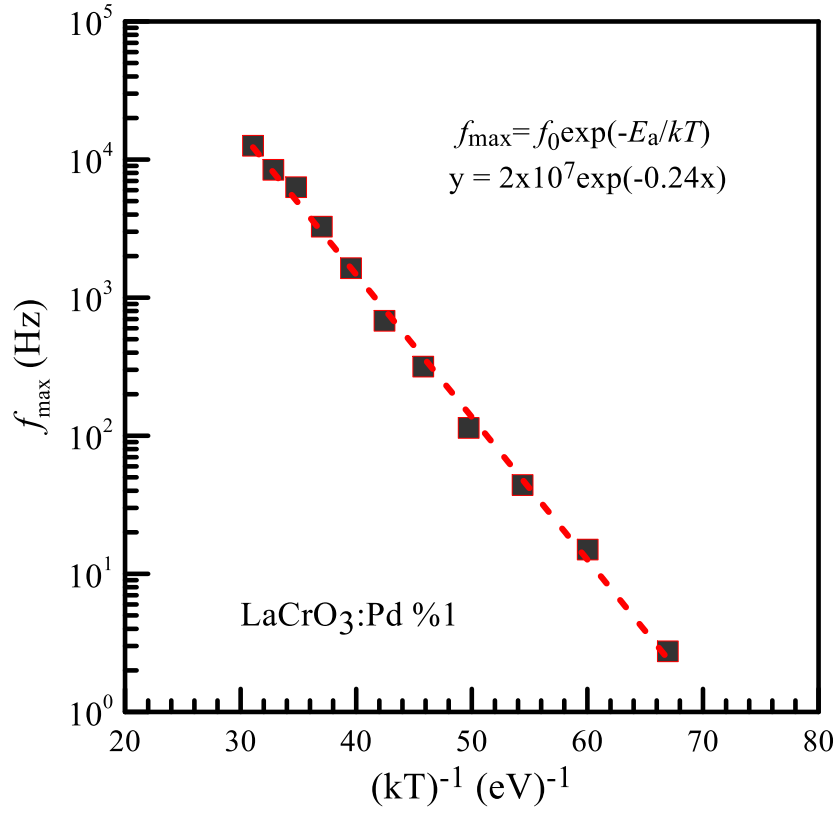
**Şekil 3.19** Numune sıcaklığı ve frekansın bir fonksiyonu olarak elektriksel modulusun gerçek kısmı  $M'$  'nin sanal kısmına  $M''$  karşı grafiği

Kompleks impedans ile kompleks dielektrik sabiti arasındaki ilişki aşağıdaki ifadeyle verilir:

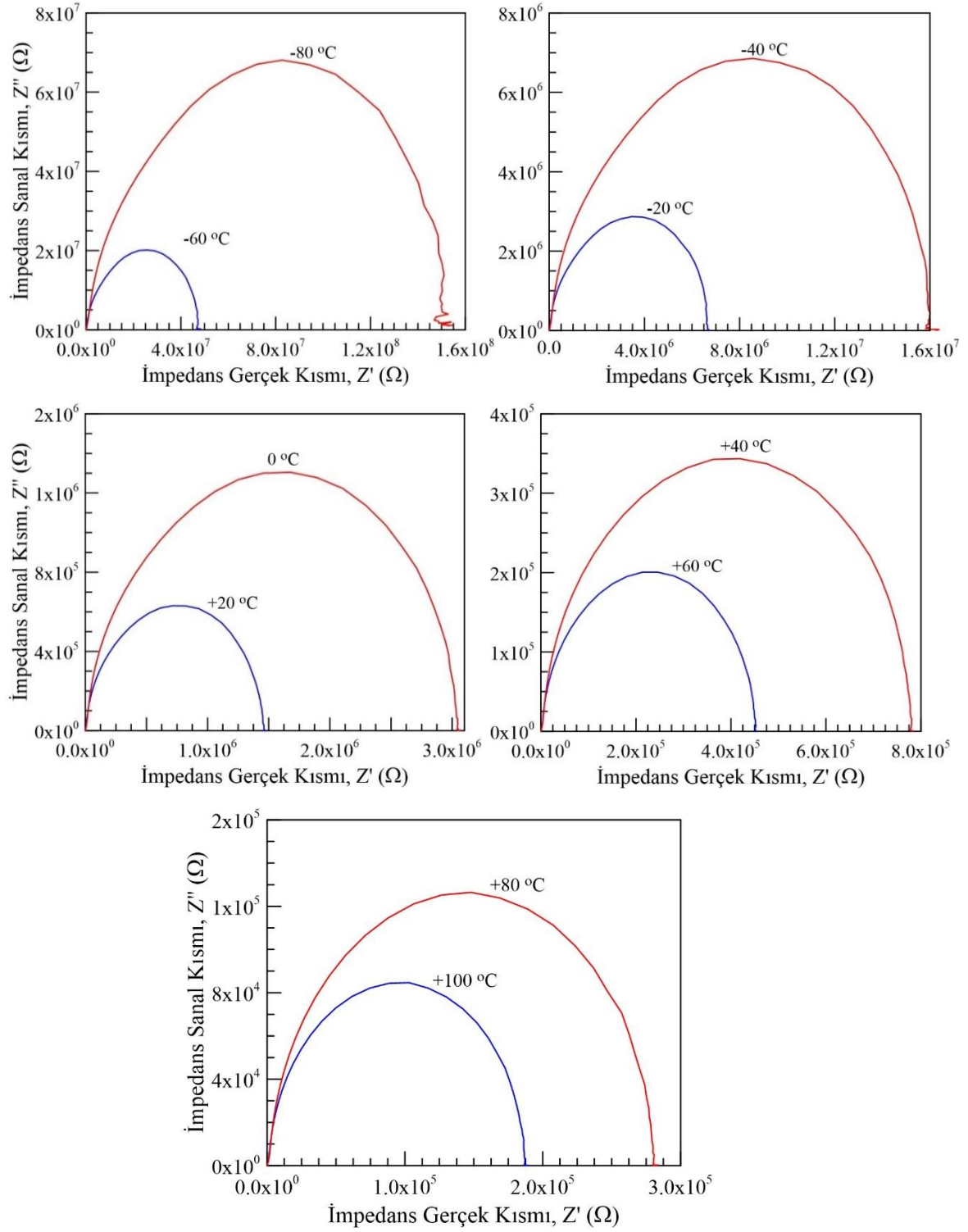
$$Z^* = Z' - jZ'' = \frac{M^*}{j2\pi f \varepsilon_0} = \frac{1}{j2\pi f \varepsilon^* C_0} = \frac{\varepsilon'' - j\varepsilon'}{2\pi f C_0 [(\varepsilon')^2 + (\varepsilon'')^2]} \quad (3.7)$$

Bu ifadede  $Z'$  ve  $Z''$  sırasıyla gerçel ve sanal impedans olarak adlandırılır.

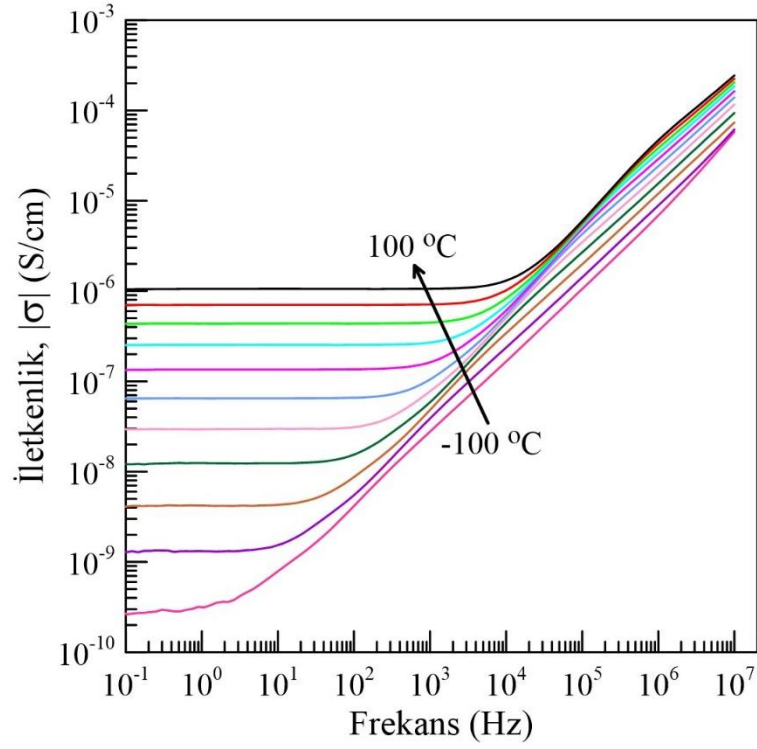




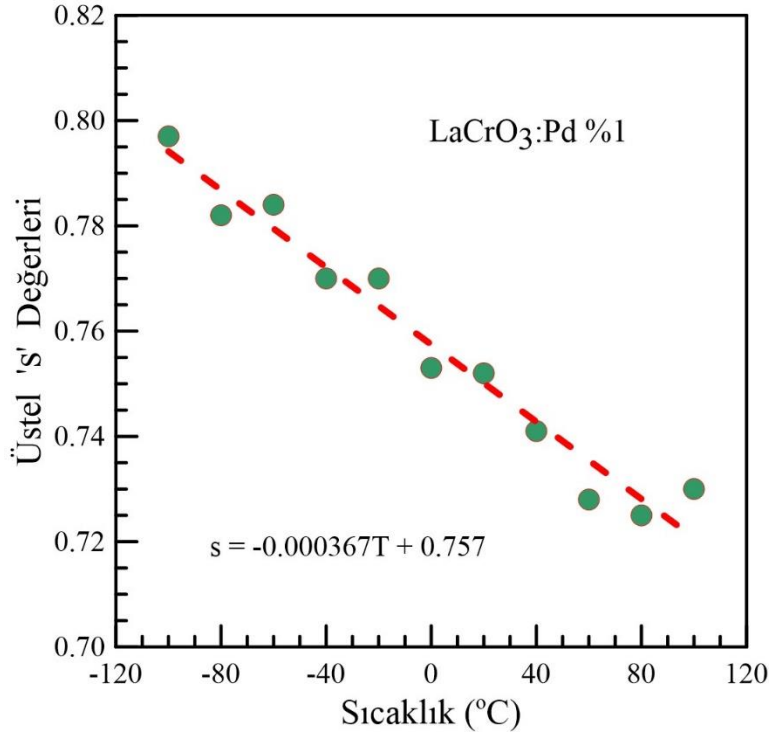
**Şekil 3.22.** Şekil 3.21 ‘de verilen Frekansa karşı impedansın sanal kısmı  $Z''$  eğrilerinin piklerine karşılık gelen frekans değerleri kullanılarak çizilen Arrhenius grafiği,  $f_{\max}$  vs.  $(kT)^{-1}$



**Şekil 3.23.** Farklı ölçüm sıcaklıklarında %1 Pd katkılı  $\text{LaCrO}_3$  malzemesi için impedansın gerçekte kısmı  $Z'$  'nin sanal kısmı  $Z''$  'ye karşı grafiği, Frekans değeri sağa doğru azalmaktadır.



**Şekil 3.24.** 20 °C’lik artışlar ile -100 °C’den +100 °C’e frekansa karşı iletkenlik grafiği



**Şekil 3.25.** Şekil 3.24 ‘deki iletkenlik eğrilerinin yüksek frekans aralığındaki lineer kısımların eğimlerinden elde edilen üstel “s” değerleri

$ac$  elektrik iletkenliđi ( $\sigma_{ac}$ )

$$\sigma_{ac} = \omega C \tan \delta \left( \frac{d}{A} \right) = \epsilon'' \omega \epsilon_0 \quad (3.8)$$

ifadesiyle verilebilir.

Dielektrik maddelerin iletkenliđinin Jonscher'in güç yasası iliřkisi ile iyi tanımlandıđını gösterilmiřtir (Murarka ve dg. 2003; Vadim, 2012; Tareev, 1975; Kao, 2004; Raju, 2003):

$$\sigma = \sigma_{ac} + \sigma_{dc} \quad (3.9)$$

$$\sigma_{ac}(\omega) = A \omega^s \quad (3.10)$$

burada  $\sigma_{dc}$ , doğru akım iletkenliđini ve  $\sigma_{ac}$  alternatif akım ( $ac$ ) iletkenliđini ifade eder ve  $\omega$  açısal frekanstır. Güç yasası üssü  $s$ , taşınan iyonlar ve kafesler (örgü noktaları) arasındaki etkileřimin derecesini gösterir.  $A$  sabiti polarize edilebilirliđin gücünü gösterir.  $s$ 'nin sıcaklık bağımlılıđı, malzemedeki iletim mekanizmasının kökenini incelemek için kullanılabilir. Çalışmamızda, deney spektrumu (3.10) denklemine uydurularak  $s$  hesaplanmış ve Şekil 3.25 'de verilmiřtir. Şekil 3.24 'de, frekansa karşı iletkenlik grafiđinde, düşük frekans bölgesindeki paralel doğrular  $\sigma_{dc}$  'ye ve yüksek frekans bölgesindeki eğriler de  $\sigma_{ac}$  'ye karşılık gelir. Yüksek frekans bölgesindeki bu eğrilerin eğimiden  $s$  deđerlerini her bir sıcaklık için hesaplayabiliriz.

#### 4. SONUÇLAR VE TARTIŞMA

%1 Pd katkılanmış  $\text{LaCrO}_3$  ferroelektrik (FE) perovskite malzeme, katıhal sentezleme tekniği kullanılarak öncelikle toz halinde sentezlenmiştir. Daha sonra bu malzemenin toz halinden yüksek basınçta pelletler elde edilerek bunların empedans, modulus, dielektrik sabiti ve iletkenlik gibi dielektrik özellikleri ölçülmüştür. Yapısal özellikleri için XRD ve EDAX ölçümleri, yapılmıştır. Daha sonra bu tozlardan magnetron püskürtme hedefleri elde edilmiş ve magnetron püskürtme tekniğiyle ince film formları elde edilmiş ve yüzey ve yasaklanmış enerji band aralığı optik ölçümleri için bu filmlerin UV-Vis ve SEM teknikleri kullanılmıştır.

Elde edilen tozların kristal yapıları X-ışınları kırınımı (XRD) ile çalışılmıştır Şekil 3.6 'da %1 Pd katkılanmış olan  $\text{LaCrO}_3$  ün XRD spektrumu görülebilir. Bu şekillerden de görüldüğü üzere LCO numuneleri perovskit yapıya sahiptir. Bilindiği üzere Bragg kanununa göre kırınım açısı ile kafes parametresinin büyüklüğü ters orantılıdır. Bundan dolayı kafes parametresi küçük olan malzemelerin  $2\theta$  pikleri daha büyük açılara doğru kayar. %1 Pd katkılanmış olan  $\text{LaCrO}_3$  numunelerinin XRD eğrilerinde, (Şekil 3.6)  $2\theta$  pik açıları küçük değerlere doğru kaymaktadır. Bilindiği gibi  $\text{Pd}^{2+}$  iyonunun yarıçapı (0.064 nm)  $\text{Cr}^{3+}$  iyonun yarıçapından (0.0615 nm) daha büyüktür. Bu durumda iyonik yarıçapı büyük olan  $\text{Pd}^{2+}$  yi iyonik yarıçapı küçük olan  $\text{Cr}^{3+}$  un yerine koyarak  $\text{LaCrO}_3$  bileşenin birim hücre parametresi arttırılmıştır. Bundan dolayı,  $2\theta$  kırınım açılarının daha küçük açılara doğru kaymasına neden olmaktadır. Buna benzer sonuçlar yine başka bilim insanları tarafından da elde edilmiştir (Adaika ve Omari, 2015; Nithya vd., 2012). Şekil 3. 8 ve 9, sırasıyla, cam ve silisyum taban malzemeler üzerine büyütülen %1 Pd katkılanmış  $\text{LaCrO}_3$  ince filmin EDX (energy-dispersive X-ray spectroscopy), spektrumlarını gösterir. Bu, bir yarı-kantitatif (nicel) element analizi tekniğidir. Kullandığımız  $\text{LaCrO}_3$  malzemesinde Cr 'un içine %1 mol Pd katılmış numunenin EDX spektrumlarına bakıldığında, Pd ve diğer elementlerin pikleri açık olarak görülmektedir.

Filmlerin kimyasal olarak bağlanmasını belirlemek için XPS analizi yapıldı. Şekil 3. 10, %1 Pd katılmış  $\text{LaCrO}_3$  'nin ve Şekil 3. 11 ise, a)  $\text{LaCrO}_3$  için La 3d, b)  $\text{LaCrO}_3$  için Cr 2p, c) Pd katkılanmış  $\text{LaCrO}_3$  için O 1s, d) Pd katkılanmış  $\text{LaCrO}_3$  için Pd 3d 'nin XPS spektrumlarını göstermektedir. Şekil 3. 11, 150 nm kalınlığında Pd katkılanmış  $\text{LaCrO}_3$  filmi için tipik elektron bağlama enerjilerin XPS spektrumları, filmlerin faz saflığını gösteren La, Cr ve O'ya karşılık gelir. Sırasıyla La 3d, Cr 2p ve O 1s piklerinden dolayı, Şekil 3. 11 a) La  $3d_{5/2}$  ve La  $3d_{3/2}$  pik konumları, sırasıyla 358,16 ve 855,02 eV bağlama enerjilerindedir. b) Cr 2p için, Cr  $2p_{3/2}$  ve Cr  $2p_{1/2}$  pik konumları, sırasıyla, 575,6 ve 577,7 eV civarında

bulunmaktadır. c) Pd 3d<sub>5/2</sub> ve Pd 3d<sub>3/2</sub> pik konumları, sırasıyla 337,6 ve 343,75 eV ve d) O 1s 'lerin bağlanma enerjilerinin konumlarının 528,99; 531,17 ve 539,59 eV olduğu bulunmuştur. Şekil 3. 12 'de, malzememizin ince filminin optiksel soğurma grafiğinden görüldüğü gibi, grafik malzememiz için 3.02 eV 'luk bir yasaklanmış enerji aralığı, yani, band aralığı değeri verir. Bu değer, %1 Pd katkılanmış LaCrO<sub>3</sub> ince filminin bir yarıiletken davranışı gösterdiğine işaret eder (Bogusz vd., 2016).

Bu safhadan sonra, deneysel ölçümlerinden elde edilen verilerden çizilen grafiklerden malzemenin dielektrik davranışını irdeleyebiliriz. Toz halindeki %1 Pd katkılanmış LaCrO<sub>3</sub> malzemesinden hazırlanan pelletlerin sığasının (kapasitans), dielektrik sabitinin gerçek  $\epsilon'$  ve sanal  $\epsilon''$  kısımlarının, frekans ve ölçüm sıcaklığına bağlı olarak nasıl değiştiği, Şekil 3.13-25 'de on üç grafik halinde verilmiştir. Şekillerden görüldüğü gibi, ölçümler 1 Hz ile 107 Hz aralığında ve 20 °C'lik artışlarla -100 °C 'den +100 °C 'ye kadar yapılmıştır. Bu Şekillerden de anlaşılacağı üzere, her bir sıcaklıkta, malzemenin sığası, gerçek  $\epsilon'$  ve sanal  $\epsilon''$  dielektrik sabitleri değerleri, artan frekans ile azalmaktadır. Ayrıca, frekansa karşı  $\epsilon'$  eğrilerinde, her bir sıcaklıkta, biri düşük frekanslarda ve diğeri yüksek frekanslarda olmak üzere iki hafif pik göze çarpmaktadır. Bu her iki pik de sıcaklık artıkcı daha yüksek frekanslara doğru kaymaktadır. Yu and Chen (2018) bu pikleri, Maxwell-Wagner polarizasyon mekanizmasına atfedilen, relaksasyon (durulma) pikleri olarak adlandırdılar. Şekil 3.14 'de, dielektrik sabitinin gerçek kısmı  $\epsilon'$  'nin tüm sıcaklıklardaki frekansa bağlı değişimi dikkate alındığında, bu piklerden biri -100 °C 'de 60 Hz 'den +100 °C 'de 3000 Hz 'e; diğeri ikinci pik de -100 °C 'de 200 Hz 'den +100 °C 'de 300 kHz 'e kadar aralıklanır.

Dielektrik analizi, tipik olarak, malzemelerin kompleks permitivitesi  $\epsilon^*$  'nin kombinasyonu olan permitivite (geçirgenlik) ve iletkenlikliği belirler. Bu kompleks dielektrik sabiti  $\epsilon^*$  niceliği, kompleks impedans  $Z^*$  kavramının bir benzeridir. Kompleks impedans  $Z^*$  ve kompleks dielektrik sabiti  $\epsilon^*$  nicelikleri gerçek ve sanal kısımlardan oluşurlar.  $\epsilon^*$  niceliği, reel permitivite  $\epsilon'$  (çoğu kez permitivite veya dielektrik sabiti) ve sanal permitivite  $\epsilon''$  (veya dielektrik loss, dielektrik kayıp) olarak,  $\epsilon^* = \epsilon' - j\epsilon''$ , iki bileşene ayrılır. Dielektrik malzemelerde, enerji depolama bileşeni olan gerçek kısım  $\epsilon'$ , dipollerin dizilmesini ve düzenlenmesini ve sanal kısım  $\epsilon''$  enerji kaybını temsil eder.

Dielektrik sabitinin gerçek kısmı  $\epsilon'$  değerinin düşük frekans bölgesinde azalması şu tür kutuplanmalar ile ilişkilendirilebilir; ara yüzey, konumsal/yönelim, iyonik ve elektronik kutuplanmalar (Lu ve diğerleri, 2000). Bu polarizasyonların ilki olan ara yüzey polarizasyonu yük taşıyıcılarının ara yüzeyler tarafından engellenmesinden kaynaklanan kutuplanmalardır

(Duan vd., 2014; Abdel-Khalek vd., 2019). Bu tür kutuplanma, genellikle, 1Hz ile 1000 Hz aralığında olur. İkinci kutuplanmanın (konumsal/yönelim) oluşum sebebi ise malzemenin içinde bulunan moleküllerin sürekli olan elektrik dipollerinin yöneliminden kaynaklanmaktadır. Üçüncü tür (iyonik) polarizasyon ise pozitif ve negatif iyon kutuplanmalarının değişiminden kaynaklanmaktadır. Böyle bir kutuplanma  $10^{13}$  Hz frekansına kadar gidebilir. Sonuncu kutuplanma olan elektronik kutuplanma ise malzeme içindeki değerlik elektronlarının çekirdeğe göre göreceli hareketlerinden kaynaklanmaktadır. Dielektrik malzemelerdeki polarizasyonun bu dört tür kutuplanmanın bir toplamı şeklinde olabileceği de öne sürülmüştür (Hegab ve El-Mallah, 2009). Çalışılan örneklerde frekans artırıldığında konumsal/yönelim kutuplanması azalmaktadır, çünkü bu kutuplanma uygulanan elektrik alan ile kendi konumunu değiştirebilecek yeteri zamanı bulamamaktadır. Fakat iyonik ve elektronik kutuplanmalarda ise durum farklıdır. Bu kutuplanmalar çok kısa sürelerde uygulanan elektrik alanı ile etkileşime girerler. Bunun sonucu olarak, konumsal/yönelim kutuplanması  $\epsilon'$  değerlerinin azalmasına ve daha yüksek frekanslarda sabit bir değere yaklaşmasına sebep olur. Bu davranış yüksek frekanslarda ara yüzey kutuplanmasına karşılık gelir. Frekansın fonksiyonu olarak yapılan ölçümlerde, belli bir frekanstan sonra uzay yükü kutuplanması gayet zayıflar ve böylece dielektrik sabiti frekanstan bağımsız davranmaya başlar. Dielektrik sabitinin gerçek değeri olan  $\epsilon_s$  bu frekansta ortaya çıkar.

Şekil 3.14 'den görülebileceği gibi,  $\epsilon'$  sıcaklığa bağlıdır ve sıcaklık arttıkça artar. Bu tür bir davranış konumsal/yönelim polarizasyonu ile ilişkilendirilebilir. Çünkü sıcaklık arttıkça moleküller ısısal olarak daha aktif olurlar. Düşük sıcaklıklarda dipoller kendilerini belli bir sıraya/düzene getirecek yeterli enerjiyi bulamazlar, fakat sıcaklık arttıkça yeniden sıralanıp düzenlenebilirler. Sıcaklığın artmasıyla dipollerin yeniden düzenlenmeleri  $\epsilon'$  değerinin sıcaklıkla artmasına sebep olur (Cao ve Gerhardt, 1990).

Kompleks dielektrik sabitinin sanal kısmı,  $\epsilon''$ , uygulanan elektrik alandan dolayı malzemede ne kadar enerjinin dağıldığının ve kaybolduğunun bir ölçüsüdür. Şekil 3.15,  $\epsilon''$  'nın farklı sıcaklıklarda frekans ile nasıl değiştiğini gösterir.  $\epsilon''$  değeri artan sıcaklık ve uygulanan frekans ile keskin bir şekilde azalmaktadır. Fakat Şekil 3.16 'den görülebileceği gibi, sanal kısım  $\epsilon''$ ,  $-100\text{ }^{\circ}\text{C}$  'de 200 Hz 'den ve  $+100\text{ }^{\circ}\text{C}$  'de 1000 kHz 'den itibaren  $10^7$  Hz'e kadar doyuma ulaşmış denilebilecek şekilde çok yavaş bir azalma sergilemektedir. Bu tür bir davranış, sentezlenen malzemelerde bir gevşeme (relaxation) sürecinin olduğuna işaret etmektedir. Malzemelerdeki elektrik kaybının (electric loss) iletkenlik, dipol ve titreşimsel kayıp olarak sınıflandırılabilmesini öne sürmektedir (Singh vd., 1991). İletkenlikten dolayı elektrik kaybı iyonların uzun mesafe hareket etmelerinden kaynaklanmaktadır. Bu iyonlar

hareket ederlerken enerjilerinin bir kısmını kafes (örgü) yapıya ısı olarak verirler. Bundan dolayı, düşük sıcaklıklarda iletkenlik kaybı minimum bir değerdedir. Fakat yüksek sıcaklıklarda iletkenlik kaybı artar ve bu da  $\epsilon''$  değerinin artmasına sebep olur. Düşük frekans aralıklarında ise dipol polarizasyonu  $\epsilon''$  değerinin azalmasında çok önemli rol oynar. Sanal kısmın  $\epsilon''$  değerinin düşüklüğü yani, enerji kaybının düşük olması, malzemenin iyi bir dielektrik malzeme olduğunun bir göstergesidir (Coskun vd. 2018; Polat vd. 2018)

Kompleks elektrik modülü kavramı,  $M^* = M' + jM''$ , Macedo ve vd. (1972) tarafından uzay yükü gevşeme veya durulma (relaksasyon) olayını açıklamak için ortaya atılmıştır (Macedo vd. 1972; Angel, 1990). Modulus kavramı daha sonra polikristalin seramik (Liu vd., 2003) ve iyonik iletkenlerde (Angel, 1990) durulma olaylarını incelemek için diğer bilim adamları tarafından da kabul edilmiştir. Bugün, kompleks elektrik modulus, tane sınırının (grain boundry) ve tanenin (grain) malzemelerin gevşeme mekanizmasına katkısını incelemek/analiz etmek için dielektrik sabiti ve empedans ile birleştirilmiştir. Dahası, elektrik modulus, dielektrik sabiti ve empedansın birleşimi bize uzun mesafe iletimleri ve lokalize dielektrik durulma olaylarını mikroskobik seviyede inceleme fırsatı sunar. Şekil 3.17, elektriksel modulusun gerçek kısmı  $M'$  'nün sıcaklığın bir fonksiyonu olarak frekansa karşı grafiğini verir. Grafikten görüldüğü gibi, verilen bir frekansta,  $M'$  artan ölçüm sıcaklığıyla azalmıştır. Her bir ölçüm sıcaklığında,  $M'$  artan frekans ile artmış ve belli bir frekanstan sonra doyuma ulaşmıştır. Bu doyumun başlama frekansı artan sıcaklıkla artmıştır. Şekil 3.18, elektriksel modulusun sanal kısmı  $M''$  'nün sıcaklığın bir fonksiyonu olarak frekansa karşı değişimini veren eğrileri gösterir. Örnek olarak, -100 °C 'deki eğriye bakacak olursak, bu eğri, biri düşük frekansta ve diğeri de yüksek frekansta olmak üzere iki pik vermiştir. İkinci pik sadece -100, -80 ve -60 °C 'deki eğriler için ölçüm frekansı aralığına düşmektedir. -60 °C 'nin üzerindeki sıcaklıklarda, bu ikinci pikler ölçüm frekansının üst sınırı olan  $10^7$  Hz 'in dışına taşıklarından grafikte görülememektedir. Bu tür bir kayma, sıcaklık artışına bağlı olarak arayüzeydeki serbest yük birikiminden kaynaklanabilir. Böylece, yük taşıyıcı hareketliliğindeki (mobility) artış gevşeme süresini azaltır. Piklerin artan sıcaklıkla daha yüksek frekans bölgelerine kayması, dielektrik gevşeme işleminin ısısal olarak aktif hale geldiğinin bir işaretidir. Şekil 3.19, numune sıcaklığı ve frekansın bir fonksiyonu olarak elektriksel modulusun gerçek kısmı  $M'$  'nin sanal kısmı  $M''$  'ne karşı grafiği temsil etmektedir. Bu grafikte düşük frekans bölgesine karşılık gelen küçük yarı-çemberler veya yaylar tane sınırlarının katkısından ve yüksek frekans bölgesindeki yüksek yarı-çemberler de malzemeyi oluşturan tanelerin katkısından oluşmaktadır (Coskun vd. 2018; Polat vd. 2018).

%1 Pd katkılı LaCrO<sub>3</sub> ferroelektrik malzemenin farklı sıcaklık ve frekanslarda elektrik

empedansının reel ( $Z'$ ) ve sanal ( $Z''$ ) kısımları da çalışılmıştır. Şekil 3.20 log-log ölçeğinde numunenin empedansının sıcaklık ve frekans ile nasıl değiştiği gösterilmektedir. Görüldüğü üzere, her bir sıcaklıkta, ( $Z' \sim f$ ) eğrisi, belli bir frekansa kadar sabit ve bu frekanstan itibaren yüksek frekanslara doğru keskin bir şekilde azalmaktadır. İmpedansın sabit kaldığı frekans aralığının artan sıcaklıkla artmaktadır. Mesela, +100 °C 'de 0.1 Hz ile 10 kHz aralığında ve -100 °C 'de 0.1 Hz ile 20 Hz aralığında gerçekleşir. Bunun yanı sıra  $Z'$  değeri ile sıcaklık arasında ters bir orantı vardır. Sıcaklık yükseldiğinde  $Z'$  değerleri azalmaktadır, bu da sıcaklıkla beraber  $ac$  iletkenliğinin arttığını göstermektedir. Fakat bu tür bir davranış dielektrik malzemelerde sıkça görülmektedir (Benalia vd., 2015). Eğer lineer ölçekte  $Z'$  'nün frekansa bağlılığına baktığımızda, yüksek frekanslarda  $Z'$  değerleri birleşerek frekanstan bağımsız olma eğilimi göstermektedir. Bu tür bir davranış enerji bariyerlerinin yüksek sıcaklıklarda azalmasına ve uzay yüklerinin (space charges) salınmasından kaynaklanabilmektedir.

İmpedansın sanal kısmı,  $Z''$  'nin pik değerine karşılık gelen karakteristik frekansını kolayca tanımlayabilme konusunda önemli bir avantaja sahiptir. Bu piklerin görülebilmesi için genellikle, ( $Z'' \sim f$ ) eğrileri log-log ölçeğinde çizilir. Bu sayede bizler sentezlenen malzemelerin aktivasyon enerjilerini  $Z''$  değerinin maksimum pikine karşılık gelen frekansın maksimum,  $f_{max}$ , değerinden yola çıkarak hesaplayabiliriz. Bunun için, Arrhenius yasasına uyan  $f_{max}$  değerleri  $f_{max} = f_0 \exp\left(-\frac{E_a}{k_B T}\right)$  formülünde kullanılacaktır, burada  $f_0$  frekansa bağlı bir sabit,  $E_a$  aktivasyon enerjisi,  $k_B$  ve  $T$  sırasıyla Boltzmann sabiti ve ölçüm sıcaklığıdır. Şekil 3.21, log-log ölçeğinde numunenin empedansının sanal kısmının sıcaklık ve frekans ile nasıl değiştiği gösterir. Araştırılan malzemelerin aktivasyon enerji grafiği Şekil 3.22 de verilmiştir. Lineer bir davranış sergileyen bu grafiğin doğrusunun eğiminden  $E_a$  aktivasyon enerjisi 0,24 eV olarak hesaplandı.

Şekil 3. 24, 20 °C'lik artışlar ile -100 °C'den +100 °C'e frekansa karşı iletkenlik grafiğini verir. Herhangi bir sıcaklıkta, frekansa karşı iletkenlik eğrisinin düşük frekans bölgesindeki kısmı doğru akım ( $dc$ ) iletkenliğine ve yüksek frekans bölgesindeki kısmı da  $ac$  iletkenliğine karşılık gelmektedir. Yani düşük frekanslarda iletkenlik frekanstan bağımsız bir davranış gösterir. Yüksek frekans bölgesindeki kısımların eğiminden malzemedeki iletim mekanizmasının kökenini incelemek için kullanılan üstel terim  $s$  'nin değeri hesaplanabilir. Dielektrik malzemelerin iletkenliği, Jonscher 'in (1977, 1996) üstel “ $s$ ” yasası ilişkisi ile gösterilebilir:

$$\sigma = \sigma_{ac} + \sigma_{dc} \quad (2)$$

$\sigma_{dc}$  (doğru akım iletkenliği) ve  $\sigma_{ac}$  (alternatif akım iletkenliği) aşağıdaki ifadelerle verilir:

$$\sigma_{dc} = \sigma_0 e^{\left(-\frac{E_a}{kT}\right)} \quad (3)$$

$$\sigma_{ac}(\omega) = A\omega^s \quad (4)$$

$\sigma_0$ , üssel öncesi faktörü,  $E_a$ , dc iletkenliği için aktivasyon enerjisini ve  $kT$ , açılmal frekansı gösterir. “s” ile sembolize edilen güç yasası üssü iyonlar ve kafesler arasındaki etkileşimin derecesini verir. A sabiti polarize edilebilirliğin gücünü gösterir. Bu çalışmada, incelenen materyallerde iletkenlik mekanizmasının temelini incelemek için s'nin sıcaklık bağımlılığını kullanıyoruz. Yukarıda belirtildiği gibi, ac iletkenliği kısmından belirlenen, üstsel s terimi grafiği Şekil. 3.25 'de verilmiştir. Bu grafikte s değeri +100 °C 'de yaklaşık 0,74 'den ve -100 °C 'de yaklaşık 0,8 'e kadar değişmektedir.

Sonuç olarak, %1 Pd katkılı LaCrO<sub>3</sub> ferroelektrik malzemenin farklı sıcaklık ve frekanslarda dielektrik admittans spektroskopisiyle dielektrik özelliklerini deneysel olarak inceledik. İmpedans, elektriksel modulus, dielektrik loss (dielektrik sabitinin sanal kısmı) ve iletkenliğin hem sıcaklığa hem de frekansa kuvvetli bir bağımlılık gösterdikleri, yani bu ölçüm parametrelerine bağlı olarak değişim sergiledikleri görüldü. Bundan başka, malzemenin yapısal ve optik özelliklerini de irdeledik. Optik soğurma ölçümleriyle, malzeme 0.32 eV 'luk bir band gap, yani yasaklanmış enerji aralığı, değeriyle bir yarıiletken gibi davrandığı görüldü. Gerçek ve sanal dielektrik ölçümlerinden, hususan yüksek frekanslarda, çok düşük bir dielektrik loss (sanal kısım) değeriyle, %1 Pd katkılı LaCrO<sub>3</sub> malzemenin, çok iyi bir dielektrik malzeme olduğu sonucuna varıldı. Bu malzeme metal ve inorganik (Si, GaAs, Ge, InP vb.) yarıiletken arasında arayüzey tabakası olarak kullanılırsa, hetero-eklemler, p-n, eklem diyotlar, alan etkili transistörler (FET), alan etkili metal-oksit-yarıiletken FET'ler (MOSFET), dirençli anahtarlama aygıtı (memristör-resistive swiching) olarak kullanılabileceğini tavsiye edebiliriz.

## KAYNAKÇA

- Abdel-Khalek, H., Abd-El Salam, M. and El-Mahalawy, A. M., .2019. The electrical conductivity and dielectric response of cupric acetylacetonate thin films, J. Electron. Mater. 48(6) 3736-3751.
- Adaika, K., Omari, M. 2015. "Synthesis and physicochemical characterization of  $\text{LaCr}_{1-x}\text{Cu}_x\text{O}_3$ ", Journal Sol-Gel Sci Technol 75, 298-304.
- Arima, T., Tokura, Y., Torrance, J. B. 1993. "Variation of optical gaps in perovskite-type 3d transition-metal oxides", Phys. Rev. B 48, pp.17006.
- Angell, C. A., 1990. Dynamic processes in ionic glasses, Chem. Rev. 90, 523.
- Benalia, A., Bejara, M., Dhahria, E., Graçab, M.F.P., Costab, L.C. 2015. "Electrical conductivity and ac dielectric properties of  $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2-x}\text{Pb}_x\text{FeO}_3$  ( $x = 0.05, 0.10$  and  $0.15$ ) perovskite compounds", Journal of Alloys and Compounds 653, 506-512.
- Bogusz, A., Bürger, D., Skorupa, I., Schmidt, O. G., Schmidt, H. 2016, Bipolar resistive switching in  $\text{YMnO}_3/\text{Nb:SrTiO}_3$  *pn*-heterojunctions, Nanotechnology 27, 455201.
- Cao, W., Gerhardt, R. 1990. "Calculation of various relaxation times and conductivity for a single dielectric relaxation process Solid State Ionics. 42, 213-221.
- Choi, W. S., Chisholm, M. F., Singh, D. J., Choi, T., Jellison Jr, G. E. Lee, H. N. 2012. "Wide bandgap tunability in complex transition metal oxides by site-specific substitution", Nat. Commun. 3, 689.
- Coskun, M., Polat, O., Coskun, F.M., Durmus, Z., Caglar, M., Turut, A., 2018. The electrical modulus and other dielectric properties by the impedance spectroscopy of  $\text{LaCrO}_3$  and  $\text{LaCr}_{0.90}\text{Ir}_{0.10}\text{O}_3$  perovskites, RSC Adv., 2018, 8, 4634–4648
- Dhahri, A., Rhou, F.I.H., Dhahri, J., Dhahri, E., Valente, M.A., 2011. Structural and electrical characteristics of rare earth simple perovskite oxide  $\text{La}_{0.57}\text{Nd}_{0.1}\text{-Pb}_{0.33}\text{Mn}_{0.8}\text{Ti}_{0.2}\text{O}_3$ , Solid State Commun. 151, 738-742.
- Duan, Z., Jiang, K., Wu, J., Sun, J., Hu, Z., Chu, J., 2014. Thickness-dependent optical properties in compressively strained  $\text{BiFeO}_3/\text{LaAlO}_3$  films grown by pulsed laser deposition, Materials Research Bulletin 51, 351-355.
- Ganguly, P., Vasanthacharya N.Y. 1986. "Infrared and Mössbauer spectroscopic study of the metal-insulator transition in some oxides of perovskite structure", J. Solid State Chem. 61, 164-170.
- Gerhardt, R., 1994. Impedance and dielectric spectroscopy revisited: Distinguishing localized relaxation from long-range conductivity, J. Phys. Chem. Solids 55, 1491.
- Hegab, N.A., El-Mallah, H.M., 2009. "AC Conductivity and Dielectric Properties of Amorphous  $\text{Te}_{42}\text{As}_{36}\text{Ge}_{10}\text{Si}_{12}$  Glass", Acta Phys. Pol. A 116, 1048-1052.
- Homma, K., Nakamura, F., Ohba, N., Sui, A.M., Hashimoto, T. 2007. "Improvement of Sintering Property of  $\text{LaCrO}_3$  System by Simultaneous Substitution of Ca and Sr", J. Ceram. Soc. Jpn. 115, 81-84.
- Jayabal, P., Sasirekha, V., Mayandi, J., Jeganathan, K., Ramakrishnan, V.2014. "A facile hydrothermal synthesis of  $\text{SrTiO}_3$  for dye sensitized solar cell application," J. Alloys

Compd. 586, 456-461.

Jonscher, A.K. 1977. The ‘universal’ dielectric response, *Nature* 267, 673-679.

Jonscher, A.K., *Universal Relaxation Law*, Chelsea Dielectric Press, London, 1996.

Lund, A., Jacobsen, T., Vels Hansen, K., Mogensen, M. 2012. “Composite Sr- and V-doped LaCrO<sub>3</sub> /YSZ sensor electrode operating at low oxygen levels”, *J. Solid State Electrochem.* 16, 2113-2120.

Kao, K. C., “Dielectric Phenomena in Solids”, Elsevier Academic Press, Newyork, (2004) 68.

Liu, J., Duan, C.G., Yin, W.G., Mei, W.N., Smith, R.W., Hardy, J.R., 2003. Dielectric permittivity and electric modulus in Bi<sub>2</sub>Ti<sub>4</sub>O<sub>11</sub>, *J. Chem. Phys.* 119 2812-2819.

Lu, W., Jiang, S., Zhou, D., Gong, S. 2000. “Structural and electrical properties of Ba(Sn,Sb)O<sub>3</sub> electroceramics materials”, *Sensors and Actuators A: Physical* 80, 35-37.

Macedo, P. B., Moynihan, C. T., Bose, R., 1972. The Role of Ionic Diffusion in Polarization in Vitreous Ionic Conductors, *Phys. Chem. Glasses* 13, 171.

Martijn, H.R.L., Henny, J.M.B., Henk, V. 1997. “Thermodynamics and Transport of Ionic and Electronic Defects in Crystalline Oxides”, *J. Am. Ceram. Soc.* 80, 2175.

Murarka, S. P., Eizenberg, M., Sinha, A. K., *Interlayer dielectrics for semiconductor technologies*, Amsterdam: Elsevier/Academic Press, 2003, pp. 7-37.

Nicollian, E., & Brews, J. (1982). *MOS (metal oxide semiconductor) physics and technology*. Wiley.

Nicollian, E., & Goetzberger, A. (1967, 7 8). The Si-SiO<sub>2</sub> Interface – Electrical Properties as Determined by the Metal-Insulator-Silicon Conductance Technique. *Bell System Technical Journal*, 46(6), 1055-1133.

Nithya, V. D., Jacob, I. R., Senthilkumar, S. T., Sanjeeviraja, C., Perelshtein, I., Zitoun, D., Selvan, R. K. 2012. “Studies on the structural, electrical and magnetic properties of LaCrO<sub>3</sub>, LaCr<sub>0.5</sub>Cu<sub>0.5</sub>O<sub>3</sub> and LaCr<sub>0.5</sub>Fe<sub>0.5</sub>O<sub>3</sub> by sol-gel method”, *Mater.s Research Bull.* 47, 1861-1868.

Polat, O., Coskun, M., Coskun, F.M., Durmus, Z., Caglar, M., Turut, A., 2018. Os doped YMnO<sub>3</sub> multiferroic: A study investigating the electrical properties through tuning the doping level, *J. Alloys Compd.* 752, 274-288.

Pudmich, G., Boukamp, B. A., Gonzalez-Cuenca, M., Jungen, W., Zipprich, W., Tietz, F. 2000. “Chromite/titanate based perovskites for application as anodes in solid oxide fuel cells”, *Solid State Ion.* 135, 433-438.

Raju, G. G., *Dielectric in Electric Fields*”, Marcel Dekker, Inc, Newyork, (2003) 97-100.

Singh, R., Tandon, R.P., Panwar, V.S., Chandra, S., 1991. “Low-frequency ac conduction in lightly doped polypyrrole films”, *J. Appl. Phys.* 69, pp. 2504.

Sun, X., Dong, X.T., Wang, J.X., Liu, G.X., 2010. “Electrospinning fabrication and

photocatalytic properties of  $\text{LaCrO}_4$  and  $\text{LaCrO}_3$  nanobelts”, *Chem. J. Chin. Univ.* 32, 2262-2267.

Tan, S., Yue S., Zhang, Y. H., 2003. “Jahn-Teller distortion induced by Mg/Zn substitution on Mn sites in the perovskite manganites,” *Phys. Lett. A* 319, 530-538.

Tareev, B.: “Physics of Dielectric Materials”, Mir Publishers, Moscow, (1975) 88, 89.

Vadim F. Lvovich, Impedance spectroscopy with application to electrochemical and dielectric phenomena, John Wiley & Sons, Inc., Hoboken, New Jersey, 2012.

Yu, Z. D. and Chen, X.M., 2018. Electrical Conduction of  $\text{Ba}(\text{Ti}_{0.99}\text{Fe}_{0.01})\text{O}_{3-d}$  Ceramic at High Temperatures, *J. Elect. Mater.* 47(7) 3459-3467.

Zwinkels, M. F. M., Haussner, O., Govind Menon, P., Jaras, S. G. 1999. “Preparation and characterization of  $\text{LaCrO}_3$  and  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  methane combustion catalysts supported on  $\text{LaAl}_{11}\text{O}_{18}$ - and  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -coated monoliths”, *Catal Today* 47, 73-82.

## ÖZGEÇMİŞ

### KİŞİSEL BİLGİLER

Adı Soyadı: Ayşegül Kübra ÖCAL

Elektronik Posta: kubraocal89@gmail.com

### EĞİTİM

| Derece        | Kurum                                                                         | Mezuniyet Yılı |
|---------------|-------------------------------------------------------------------------------|----------------|
| Lisans        | Marmara Üniversitesi<br>Fen Edebiyat Fakültesi FİZİK BÖLÜMÜ                   | 2010 - 2014    |
| Yüksek Lisans | İMU Lisansüstü Eğitim Enstitüsü<br>Nanobilim ve Nanomühendislik Anabilim Dalı | 2016 - 2019    |