



T.C.

SELÇUK ÜNİVERSİTESİ

FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

Montmorillonitçe Zengin Bentonitlerde Sıcaklık, Basınç ve Parçacık Büyüklüğünün Dielektrik Özelliklere ve Aktivasyon Enerjilerine Etkisi

Abdullah DERYAL

DOKTORA TEZİ

Fizik Anabilim Dalı

Ocak-2011
KONYA
Her Hakkı Saklıdır

TEZ KABUL VE ONAYI

Abdullah DERYAL tarafından hazırlanan "Montmorillonitçe Zengin Bentonitlerde Sıcaklık, Basınç ve Parçacık Büyüklüğünün Dielektrik Özelliklere ve Aktivasyon Enerjilerine Etkisi" adlı tez çalışması 26/01/2011 tarihinde aşağıdaki jüri üyeleri tarafından oy birliği ile Selçuk Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Fizik Anabilim Dalı'nda DOKTORA TEZİ olarak kabul edilmiştir.

Jüri Üyeleri	**İmza**
Başkan Prof.Dr.Muazzez ÇELİK KARAKAYA	.....
Danışman Yrd.Doç.Dr.Hayreddin KÜÇÜKÇELEBİ	.....
Üye Yrd.Doç.Dr.Mehmet TAŞER	.....
Üye Yrd.Doç.Dr.Ertuğrul İZCİ	.....
Üye Yrd.Doç.Dr.Haziret DURMUŞ	.....

Yukarıdaki sonucu onaylarım.

Prof. Dr. Bayram SADE
FBE Müdürü

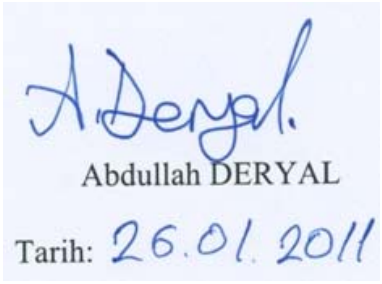
Bu tez çalışması Selçuk Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri (SÜBAP) Koordinatörlüğü tarafından 09201031 nolu proje ile desteklenmiştir.

TEZ BİLDİRİMİ

Bu tezdeki bütün bilgilerin etik davranış ve akademik kurallar çerçevesinde elde edildiğini ve tez yazım kurallarına uygun olarak hazırlanan bu çalışmada bana ait olmayan her türlü ifade ve bilginin kaynağına eksiksiz atıf yapıldığını bildiririm.

DECLARATION PAGE

I hereby declare that all information in this document has been obtained and presented in accordance with academic rules and ethical conduct. I also declare that, as required by these rules and conduct, I have fully cited and referenced all material and results that are not original to this work.



ÖZET

DOKTORA TEZİ

MONTMORİLLONİTÇE ZENGİN BENTONİTLERDE SICAKLIK, BASINÇ VE PARÇACIK BÜYÜKLÜĞÜNÜN DİELEKTRİK ÖZELLİKLERE VE AKTİVASYON ENERJİLERİNE ETKİSİ

Abdullah DERYAL

Selçuk Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü
Fizik Anabilim Dalı

Danışman: Yrd.Doç.Dr. Hayreddin KÜÇÜKÇELEBİ

2011, 138 Sayfa

Jüri
Danışman Yrd.Doç.Dr.Hayreddin KÜÇÜKÇELEBİ
Prof.Dr.Muazzez Çelik KARAKAYA
Yrd.Doç.Dr.Mehmet TAŞER
Yrd.Doç.Dr.Ertuğrul İZCİ
Yrd.Doç.Dr.Haziret DURMUŞ

Bu çalışmada, Ordu ili Ulubey ve Ünye bölgelerinden temin edilen, montmorillonit bakımından farklı yüzdeler içeren iki kil örneğinin dielektrik özellikleri, 100 Hz – 5 MHz frekans bölgesinde ve 230 K – 360 K sıcaklık aralığında incelenmiştir. Bu frekans bölgesinde etkili olan yönelimli ve arayüzeysel kutuplanma süreçlerinin temsilinde, sırasıyla Havriliak-Negami (HN) ve iletkenliğin de dielektrik geçirgenlik gibi frekansla değiştiğini varsayan güç yasalı Maxwell-Wagner-Sillars (MWS) bağıntıları kullanılmıştır. Özellikle düşük frekanslar kısmında önemli hale gelen elektrot kutuplanması etkisini minimum yapmak için ve geçirgenlik modunda çizilen grafiklerde Cole-Cole eğrilerinin elde edilememesi nedeniyle, kutuplanma süreçlerini ifade eden bağıntılar (HN ve MWS), elektrik modülü formalizminde ele alınmıştır.

Numuneler, dört farklı parçacık boyutunda elekten geçirilmiş ve bunların her biri üç farklı basınç altında pelet haline getirilmiştir.

HN süreci için bulunan aktivasyon enerjilerinin (20,30 – 39,85 kJ/mol), MWS süreci için belirlenen enerjilerden (13,59 – 21,31 kJ/mol) daha büyük olduğu tespit edilmiştir. Her iki süreç için de aktivasyon enerjilerinin artan basınç ve artan parçacık büyüklüğü ile arttığı bulunmuştur. Artan montmorillonit yüzdesiyle aktivasyon enerjilerinin HN süreci için azaldığı, MWS süreci için ise arttığı görülmüştür.

Ayrıca, sanal geçirgenliklerden elde edilen ac iletkenlikleri kullanılarak, Jonscher'ın iletkenlikle ilgili güç yasası ifadesinden σ_{dc} doğru akım iletkenliği ve diğer parametreler bulunmuştur.

Anahtar Kelimeler: Aktivasyon enerjisi, arayüzeysel kutuplanma, basınç, iletkenlik, montmorillonit, parçacık büyüklüğü, yönelimli kutuplanma.

ABSTRACT

Ph.D THESIS

THE EFFECT ON DIELECTRIC PROPERTIES AND ACTIVATION ENERGIES OF TEMPERATURE, PRESSURE AND PARTICLE SIZE AT BENTONITES THAT MONTMORILLONITE RICH

Abdullah DERYAL

THE GRADUATE SCHOOL OF NATURAL AND APPLIED SCIENCE OF SELÇUK UNIVERSITY
THE DEGREE OF DOCTOR OF PHILOSOPHY
IN PHYSICS

Advisor: Asst.Prof.Dr. Hayreddin KÜÇÜKÇELEBİ

2011, 138 Pages

Jury
Advisor Asst.Prof.Dr.Hayreddin KÜÇÜKÇELEBİ
Prof.Dr.Muazzez Çelik KARAKAYA
Asst.Prof.Dr.Mehmet TAŞER
Asst.Prof.Dr.Ertuğrul İZCİ
Asst.Prof.Dr.Haziret DURMUŞ

In this study, dielectric properties of two clay samples which collected from Ordu Ulubey and Ünye regions and have different amounts of montmorillonite was examined in the 100 Hz – 5 MHz frequency region, and at 230 K – 360 K temperature range. In order to represent the orientational and interfacial polarization processes which are effective in this frequency region were used Havriliak-Negami (HN) and Maxwell-Wagner-Sillars (MWS) relations. A power law term was included in MWS relation which assumes that the conductivity changes depending on the frequency like dielectric permeability. Because the Cole-Cole curves could not obtained from the graphs drawn in permeability mode, and also to minimize the electrode polarization effects that becomes important at especially low frequencies, relations (HN and MWS) that represents the polarization processes were used in electrical module formalism.

Samples were sifted into four different particle size, and each one of these were pressed into pellets under three different pressures.

It was determinated that activation energies for HN processes (20,30 – 39,85 kJ/mol) are greater than for MWS processes (13,59 – 21,31 kJ/mol). It was also determinated that activation energies increase with increasing pressure and particle size for both processes. It was observed that activation energies for HN processes decrease and for MWS processes increase with increasing montmorillonite percentage.

Furthermore, we have determinated the dc conductivity σ_{dc} and the other parameters appearing in the expression of Jonscher's power law using ac conductivities obtained from the imaginary permittivities.

Keywords: Activation energy, conductivity, interfacial polarization, montmorillonite, orientational polarization, particle size, pressure.

ÖNSÖZ

Bu çalışma, Selçuk Üniversitesi Fen Fakültesi Fizik Bölümü öğretim üyesi Yrd.Doç.Dr.Hayreddin KÜÇÜKÇELEBİ yönetiminde tamamlanarak, Selçuk Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü'ne Doktora Tezi olarak sunulmuştur.

Tez konusunun seçiminde ve tezin hazırlanmasında yol gösteren danışman hocam Yrd.Doç.Dr.Hayreddin KÜÇÜKÇELEBİ'ye ve çalışmalarımın her aşamasında bana destek olan değerli hocam Yrd.Doç.Dr.Haziret DURMUŞ'a sonsuz şükranlarımı sunarım. Verdikleri önemli bilgilerle yardımcı olan Tez İzleme Komitesi Üyeleri Prof.Dr.Muazzez Çelik KARAKAYA'ya ve Yrd.Doç.Dr.Mehmet TAŞER'e ve numunelerin elde edilmesinde büyük katkıları olan Doç.Dr.Necati KARAKAYA'ya teşekkür ederim. Verdikleri teorik desteklerle sorunların üstesinden gelmeme yardımcı olan Prof.Dr.Stephen BIALKOWSKI'ye, Prof.Dr.Sally LOGSDON'a ve Dr.Abidin KAYA'ya, ayrıca S.Ü. Fizik Bölümünün tüm üyelerine teşekkür ederim.

Deneylerde kullanılan cihazların otomasyonu için geliştirilen yazılımda fikirleriyle sürekli destek olan Dennis KNUTSON'a ve Osman AKÇİN'e, pelet kalıbının yapımında Torbalı CNC Atölyesi'ne, KonTaşSan'a, PoziTerm Isıl İşlem'e Nurhas Silindir Kapak Taşlama'ya ve Faz Hidrolik Makine LTD'ye, numune tutucu yapımında Servo Otomasyon'a, kontak yapımında Veysel Kuyumculuk'a, pelet presleme işleminde KoçSan Makine Sanayi'ne, maske yapımında Konlazer'e, kriyostat penceresi yapımında MBO Lazer Teknik'e, kullanılan teknik malzemenin sağlanmasında Ademoğulları Teknik Hırdavat'a, verdikleri destekten dolayı teşekkür ederim.

Son olarak, araştırmalarımda gösterdiği anlayıştan dolayı Meram İlçe Milli Eğitim Müdürlüğü camiasına, karşılaştığım zorluklarda daima yanımda olan sevgili eşim Esem'e, çalışmalarıma büyük sabır gösteren oğlum Fevzi Mert'e ve her zaman manevi destek veren aileme teşekkür ederim.

Abdullah DERYAL
KONYA-2011

İÇİNDEKİLER

ÖZET ..... **iv**

ABSTRACT ..... **v**

ÖNSÖZ ..... **vi**

İÇİNDEKİLER ..... **vii**

SİMGELER VE KISALTMALAR ..... **ix**

1. GİRİŞ **1**

2. KAYNAK ARAŞTIRMASI **5**

3. MATERYAL VE METOT **9**

3.1. Dielektrik Teori 9
3.1.1. Elektrostatik temel 9
3.1.2. Dipol ve dipol momenti kavramı 9
3.1.3. Statik elektrik alanın dielektrik maddelere etkisi 10
3.1.4. Dielektriksiz ve dielektrikli paralel plakalı kondansatör 11
3.1.5. Değişken elektrik alanın dielektrik maddelere etkisi 13
3.1.6. Kompleks dielektrik geçirgenlik ve elektriksel iletkenlik 21
3.1.7. Dielektrik geçirgenliği hesaplama yöntemi 24
3.1.8. Dielektrik maddelerin sınıflandırılması 26
3.1.9. Dielektriklerde kutuplanma 27
3.1.10. Dielektriklerde kutuplanma mekanizmaları 33
3.1.11. Dielektrik durulmayı tanımlayan ifadeler 38
3.1.12. Elektrik modülü formalizmi 51
3.1.13. Arrhenius denklemi ve aktivasyon enerjisi 53
3. 2. Kil Mineralleri ve Montmorillonit Mineralinin Yapısı 54
3.2.1. Killer ve kil mineralleri 54
3.2.2. Montmorillonit mineralinin yapısı 57
3. 3. Deneysel Hazırlık Süreci 59
3.3.1. Numunelerin temini ve parçacık büyüklüğüne göre sınıflandırılması 59
3.3.2. Pelet kalıbının hazırlanışı ve numunelerin preslenmesi 59
3.3.3. Pelet yüzeylerinin kaplanması 60
3.3.4. Kriyostat sisteminin ve numune tutucunun modifikasyonu 61
3.3.5. Ölçüm sistemlerinin otomasyonu 62
3.3.6. Ölçüm şartları ve aşamaları 63
3.3.7. Veri toplama ve değerlendirme yöntemi 65

4. ARAŞTIRMA SONUÇLARI VE TARTIŞMA **66**

4.1. XRD ve Kimyasal Analiz Sonuçları 66
4.2. Dielektrik Sonuçlar 67
4.2.1. Vakumsuz oda sıcaklığı ölçümleri 67
4.2.2. Vakumun oda sıcaklığındaki etkisi 69

4.2.3. Sabit frekansta sıcaklık ölçümleri 70
4.2.4. Sabit sıcaklıkta frekans ölçümleri 72
4.2.5. Arrhenius grafikleri ve aktivasyon enerjileri 81
4.2.6. İletkenlik ölçüm sonuçları 86

5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER 90

KAYNAKLAR 93

EKLER 101

ÖZGEÇMİŞ 138

SİMGELER VE KISALTMALAR

Simgeler

α : Simetrik kaymayı tanımlayan Cole-Cole parametresi
α_p : Kutuplanabilirlik
β : $\gamma(1-\alpha)$ çarpımıyla tanımlanan şekil parametresi
χ : Elektriksel alınganlık
γ : Asimetrik bozulmayı tanımlayan Cole-Davidson parametresi
ε : Elektriksel geçirgenlik (F/m)
ε^* : Kompleks dielektrik geçirgenlik
ε_0 : Boşluğun dielektrik geçirgenliği (8,854x10^{-12} F/m)
ε_r : Bağıl geçirgenlik
ε' : Reel geçirgenlik
ε'' : Sanal geçirgenlik
ε_s : Düşük frekanstaki reel geçirgenlik
ε_∞ : Yüksek frekanstaki reel geçirgenlik
μ : Dipol momenti (Debye)
μ_m : Manyetik geçirgenlik (H/m)
ρ_e : Yük yoğunluğu (C/m^3)
σ : İletkenlik (S/m)
σ_{ac} : Alternatif iletkenlik (S/m)
σ_{dc}, σ_0 : Doğru akım iletkenliği (S/m)
σ' : Reel iletkenlik (S/m)
σ'' : Sanal iletkenlik (S/m)
σ_Q : Yüzey yük yoğunluğu (C/m^2)
τ : Durulma zamanı (s)
φ : Faz farkı açısı
ω : Açısal frekans (rad/s)
$\tan\delta$: Kayıp tanjant
A : Paralel plakaların yüzey alanı (m^2)
A_σ : Kuvvet yasası parametresi ($Sm^{-1}\omega^n$)
B : Magnetik indüksiyon (T)
B : Suseptans (Siemens)
C : Sığa (F)
d : Paralel plakalar arası uzaklık (m)
D : Dielektrik yer değiştirme vektörü
E : Elektrik alan vektörü (V/m)
E_A : Aktivasyon enerjisi (kJ/mol)
f : Frekans (Hz)
G : Kondüktans (Siemens)
H : Magnetik alan vektörü (H)
i : Akım (A)
J : Akım yoğunluğu (A/m^2)
k : Boltzmann sabiti (1,38x10^{-23} J/K)

M	:	Toplam dipol momenti (Debye)
M^*	:	Kompleks elektrik modülü
M'	:	Reel elektrik modülü
M''	:	Sanal elektrik modülü
M_s	:	Düşük frekanstaki reel elektrik modülü
M_∞	:	Yüksek frekanstaki reel elektrik modülü
n	:	Kuvvet yasası parametresi
N_0	:	Birim hücredeki dipol sayısı
P_l	:	Güç kaybı (Watt)
P	:	Kutuplanma vektörü
q	:	Elektrik yükü (C)
Q	:	Plaka yükü (C)
t	:	Zaman (s)
T	:	Mutlak sıcaklık (K)
V	:	Potansiyel farkı (V)
V_∞	:	Yüksek sıcaklıkta durulma hızı (s^{-1})
Y^*	:	Admitans (Siemens)
Z^*	:	Empedans (ohm)

Kısaltmalar

ac	:	Alternatif akım
dc	:	Doğru akım
CC	:	Cole-Cole
CD	:	Cole-Davidson
HN	:	Havriliak-Negami
MWS	:	Maxwell-Wagner-Sillars
OUS	:	Ordu Ulubey Sarı
OÜP	:	Ordu Ünye Pembe
XRD	:	X-Işınları Difraktogramı

1. GİRİŞ

Kil mineralleri binlerce yıldır ya kendisi teknoloji olmuş yada üretilen teknolojide kullanılmıştır. En basit kap-kacak yapımından en karmaşık uzay sanayisine kadar kullanılmasının en belirgin nedenleri bol ve kolay bulunması, ucuz olması ve yapılarına farklı maddelerin katılmasıyla fiziksel ve kimyasal özelliklerinin değişmesidir. Pek çok sektörde kendini gösteren ve kullanım alanı gün geçtikçe artan kil mineralleri araştırmacıların ilgisini üzerine çekmektedir. Yapısı, kimyası, oluşumu birbirinden değişik olan kil minerali türlerinin farklı alanlardaki özellikleri birçok branşta incelenmiştir. Bu çalışmada özellikleri araştırılacak olan ve çok geniş bir alanda kullanım alanı bulunan montmorillonit türü kil minerali de pek çok özelliği bakımından sayısız bilimsel çalışmada araştırılmış, ancak burada yalnızca elektriksel özellikleri üzerinde durulmuştur.

Günümüz teknolojisinde kaydedilen gelişmelerle birlikte elektriksel yalıtkan malzemelerin kullanım alanları da hızla artmaktadır. Çok geniş bir endüstriyel yelpazede ve değişik şartlar altında kullanılan bu yalıtkanların elektriksel karakteristiklerinde gösterdikleri değişimin bilinmesi oldukça önem kazanmıştır. Bu nedenle, farklı alanlarda ve koşullarda kullanılan yalıtkan malzemelerin dielektrik özelliklerinin belirlenmesi oldukça gereklidir. Çağımızda fizikten kimyaya, tıptan mühendisliğe bir çok bilimsel alanda sayısız malzeme üzerinde bu özelliklerin tanımlanmasına çalışılmaktadır. Bahsedilen özelliklerin başında da dielektrik sabiti, kayıp faktörü ve iletkenlik gelmektedir (Jonscher, 1983).

Maddeler elektriksel davranışları açısından, elektriksel iletkenlik, magnetik geçirgenlik ve dielektrik sabiti ile karakterize edilir. İletkenlikleri açısından ise iletken, yarıiletken ve yalıtkan (dielektrik) olmak üzere üç ana grup altında toplanabilirler. İletken maddeler, bir elektrik alan altında elektrik akımını geçirirler. Bu maddelerin elektriksel iletkenlikleri 10^5 S/m den daha büyüktür. Dielektrik maddelerin iletkenlik değerleri 10^{-8} S/m den daha küçüktür. Yarıiletkenlerin iletkenlikleri ise bu ikisi arasındadır. Bu üç ana gruptaki maddeler, elektrik alan altında farklı farklı davranışlar gösterir. İletken maddelerin içinde serbestçe dolaşan çok sayıda elektron vardır. Fiziksel olarak, metal atomlarından her birinin bir veya iki elektronu belli bir atoma bağlı olmayıp, ortamda serbestçe dolaşabilirler. Buna karşılık dielektriklerde tüm yükler belirli atom yada moleküllere bağlıdır. Bu nedenle hareketleri atom yada molekül içinde

sınırlıdır. Bu sınırlı mikroskobik yer değiştirmeler dielektrik maddelerin karakteristik davranışlarını belirler. Bu malzemelere doğru akım (dc) gerilimi uygulandığında elektrik akımının geçmesine karşı çok büyük direnç gösterirler. Teorik olarak bu direncin değeri sonsuz olması gerekirken, yani malzeme içerisinden hiç akım geçmemesi gerekirken, pratikte çok zayıf da olsa bir akım (sızıntı akımı) gözlenir. (Anderson, 1967).

Bir malzemeye dışarıdan elektrik alan uygulandığında malzeme enerji depolama yeteneği gösteriyorsa, bu tip malzemelere genel olarak dielektrik malzeme denir. Paralel plakalı bir kapasitör yöntemi kullanılarak malzemenin dielektrik sabitini tespit etmek genel bir uygulamadır. Sığanın tanımına göre, plakalar arasına konulan dielektrik madde, plakalar arasındaki potansiyel farkını ne kadar azaltırsa sığa o kadar büyük olacağından, bu maddenin dielektrik sabiti de o kadar büyük olur. Elektrik alan etkisinde malzeme içerisindeki elektronlar ve protonlar yer değiştirir. Sonuçta elektrik yük merkezleri kayacağından elektriksel kutuplanma meydana gelir (Howell ve Licastro, 1961).

Malzemedeki kutuplanma derecesini dielektrik sabiti ε göstermektedir. Kutuplanma derecesi, dipollerin yoğunluğuna ve büyüklüğüne bağlıdır. Genel olarak, bir elektrik alan tarafından kutuplanabilen ortama dielektrik adı verilir. Buradaki kutuplanma kavramı, elektrik alan içine konulan maddenin moleküllerine ait elektrik dipol momentlerinin, elektrik alanla aynı doğrultuda yönelmesini ifade etmektedir.

Maddeyi oluşturan moleküllerin dipol momentleri ister olsun ister olmasın bir elektrik alan içine konulduklarında böyle bir momente geçici olarak sahip olabilirler ve bunlar kısmen de olsa uygulanan alanla paralel duruma geçerler. Bu nedenle, paralel levhaları arasında boşluk bulunan kondansatörün plakaları arasındaki potansiyel farkı, plakalar arasına dielektrik madde konulduğunda azalır.

Dielektriklerin kutuplanması fikri ilk olarak 1830'lu yıllarda Faraday tarafından ileri sürülmüştür. Dielektrik terimi ise, Michael Faraday'ın isteğine bir cevap olarak William Whewell tarafından dia-elektrik şeklinde ortaya atılmıştır. Günümüz kavramlarına göre kutuplanma olayı, malzeme içindeki elektriksel yüklü parçacıkların uzay içindeki düzenlenimlerinin değişmesini ifade eder. Dielektrikler yani yalıtkanlar, elektriksel iletkenliği sağlayacak kadar serbest taşıyıcıya sahip değillerdir. Dielektrik bir madde, elektrik alan içerisine konulduğunda mümkün olan tek hareket, pozitif ve negatif yüklerin, oluşan elektrostatik kuvvet altında zıt yönlerdeki küçük yer değiştirmeleridir. Bunun sonucunda dipol momentleri oluşur. İçinde böyle küçük yer

değiştirmelerin oluştuğu dielektriklere kutuplanmış dielektrikler denir. Elektrik alan etkisi ortadan kaldırıldığında bu yükler eski yerlerine dönerler ve net dipol momenti tekrar sıfır olur. Bu tür maddelere kutupsuz (apolar) dielektrikler adı verilir. Bazı dielektrik maddeler ise elektrik alan içine konmadan da içerisinde bu yük ayrışımı vardır. Bu maddeler net bir dipol momente sahiptir. Bunlara kutuplu (polar) dielektrikler denir (Taraev, 1975; Jonscher, 1983).

Mikrodalga frekans bölgesinde malzemenin özelliklerinin bilinmesi oldukça önemlidir. Ortamları belirleyen elektromagnetik özellikler manyetik geçirgenlik (μ_m), elektriksel geçirgenlik (ε) ve iletkenlik (σ) şeklinde sıralanabilir. Elektriksel özelliklerin, çalışılan frekans aralığına göre çok geniş bir değişim alanı vardır. Dielektrik maddelerin elektriksel özellikleri genellikle dielektrik sabiti cinsinden ifade edilir. Dielektrik sabiti alışılmış anlamda bir sabit değildir. Dielektrik sabiti, uygulanan alanın frekansına, maddenin sıcaklığına, maddenin içerdiği nem miktarına, yük taşıyıcıların bulunma ve serbestlik oranlarına, yerel alan bozulmalarına ve malzemeye uygulanan basınca bağlı olarak değişebilir. Ancak, uygulanan alanın şiddetine bağımlı değildir. Eğer malzemeye alternatif bir gerilim uygulanırsa, malzemede ısınma gözlenir ve açığa çıkan bu ısı gerilimin frekansı ile artar. Açığa çıkan ısının sebebi, dış alanın değişen yönüne göre yönelme eğilimi gösteren moleküllerin birbirlerine sürtünmeleridir (Taraev, 1975; Kaya ve Fang, 1997).

Dielektrik spektroskopi, malzemenin elektrik dipol momentleriyle, frekans aralığı 10^{-6} Hz ila 10^{10} Hz aralığında olan elektrik alanın etkileşimi temeline dayanır. 10^{10} Hz üstündeki bölgede radyasyonun soğurulması ve yayınlanması atom yada moleküllerin kutuplanabilirliğine bağlı olan indüklenmiş dipol momentlerdeki değişimlerden kaynaklanır. Daha düşük frekanslarda indüklenmiş dipol momentlerin katkısı, sistemin kalıcı dipol momentleriyle karşılaştırıldığında küçük kalır (Hedvig, 1977).

Bu çalışmada, dört farklı parçacık boyutunda ve üç farklı basınçta pelet haline getirilen iki farklı montmorillonit yüzdesine sahip olan kil numunelerinin dielektrik özellikleri, 100 Hz – 5 MHz frekans bölgesinde ve 230 K – 360 K sıcaklık aralığında incelenmiştir. Yapılan ölçümlerden, numunelere ait dielektrik geçirgenlik, kayıp faktörü, iletkenlik ve aktivasyon enerjisi gibi parametreler belirlenmiştir. İncelenen montmorillonit numunelerinde, yukarıda bahsedilen frekans bölgesinde etkili olan yönelimli ve arayüzeysel kutuplanma süreçlerinin temsilinde sırasıyla Havriliak-

Negami ve iletkenliğin de dielektrik geçirgenlik gibi frekansla değiştiğini varsayan güç yasalı Maxwell-Wagner-Sillars bağıntıları kullanılmıştır. Basınç, parçacık boyutu, içerik, sıcaklık ve frekansın, ölçülen dielektrik parametreleri nasıl etkilediği ayrıntılı olarak tartışılmıştır. Çalışmada kullanılan montmorillonit türü kil mineralinin de bir dielektrik malzeme olduğu hatırlanırsa, bahsedilen dış faktörlerin diğer dielektrik malzemelerin dielektrik özellik ve parametrelerini ve de davranışlarını nasıl etkileyebileceği hakkında yorum getirebileceği düşünülmektedir.

Çalışmanın bir sonraki bölümünde genel anlamıyla maddelerin dielektrik özelliklerinin araştırılması için literatürde izlenen yol ve yöntemler, bu yöntemler üzerinde yapılan değişiklikler ve özel olarak, montmorillonitin dielektrik özelliklerine farklı teorik yaklaşımları özet olarak sunulacaktır. Sonraki bölümlerde temel ifadelerin türetilişi, dielektrik kutuplanmayı tanımlayan ifadeler, montmorillonit mineralinin yapısı ve kullanım alanları, numunelerin hazırlanışı, ölçüm süreci, deneysel bulgular ve sonuçlar bulunmaktadır.

2. KAYNAK ARAŞTIRMASI

Yaklaşık iki yüzyıl içerisinde dielektrik maddelerin dielektrik özellikleri hakkında çok sayıda araştırma yapılmış olup, bunların bir kısmı da kil mineralleri ve montmorillonit üzerinedir. İncelenen özelliklerin en başında da dielektrik geçirgenlik gelmektedir. Literatürde malzemelerin dielektrik geçirgenlikleri, genellikle uygulanan alanın frekansı ve sıcaklık olmak üzere farklı değişkenlere göre incelenmiştir. Ancak sürecin daha iyi yorumlanması için dielektrik geçirgenlik, reel ve sanal kısımlarına ayrılarak değerlendirilmiştir. Reel geçirgenlik malzemenin dış alandan ne kadar enerji depoladığını, sanal geçirgenlik ise enerji kayıplarını temsil eder. Araştırmalar, reel geçirgenliğin artan frekansla azaldığını, sanal geçirgenliğin ise özel bir frekans değerinde pik verdiğini göstermektedir. Pikin gerçekleştiği frekans değerinde enerji kayıpları maksimumdur. Bunlara ilave olarak, sanal geçirgenliğin reel geçirgenliğe oranının uygulanan elektrik alanın frekansına göre değişimini incelemek de bir yöntem haline gelmiştir. Kayıp tanjant diyagramı adı verilen bu gösterimdeki piklerin yerinin dış etmenlere göre değişimi, malzemenin bu etmenlere karşı gösterdiği tepkiyi ve malzemenin yapısını anlamak adına önemli bilgiler içermektedir. (Davidson ve Cole, 1951; Prabu ve ark., 2010; Diandra ve ark., 1994; Das ve ark., 2007; Psarras ve ark., 2002; Nobre ve Lanfredi, 2003; Bona ve ark., 2002; Hoekstra ve Delaney, 1974; Mitchell ve ark., 1968; Kremer, 2002; Liu ve ark., 2004; Lunkenheimer ve ark., 1996; Kundu ve Chaudhuri, 2003; Moynihan, 1994; Perrier ve Bergeret, 1995; Dutta ve ark., 2002; Schwan ve ark., 1962; Saad, 2005; Axelrod ve ark., 2002; Singh ve ark., 1991; Gatos ve ark., 2007; Hammami ve ark., 2007; Nikonorova ve ark., 2007; Einfedt ve ark., 2001; İzci, 2001; İyibakanlar, 2003; Deryal, 2004; Parlaktürk, 2007; Yücedağ, 2007; Gökçen, 2007).

Dielektrik durulma süreçlerinin geometrik açıklamasını kolaylaştıran başka bir yöntem de reel geçirgenliğin yatay eksene, sanal geçirgenliğin ise düşey eksene çizildiği kompleks düzlem çizim yöntemidir. Bu noktada bu değerlerden dielektrik parametreleri belirlemek için teorik modelleme yapmak gerekir. İlk modelleme Debye (1929) tarafından gerçekleştirilmiştir. Tek durulma zamanlı homojen sistemler için kullanışlı olan Debye modelinde bu grafik bir yarım dairedir. Ancak heterojen sistemlerde bu model, yarım daireden olan bozulmaları açıklayamamaktadır. Bu yüzden Cole ve Cole (1941), simetrik bozulmayı açıklamak için, Debye modeline bir parametre ekleyerek heterojen sistemler için modeli geliştirmiştir. Ancak bu model, yarım dairenin yüksek

frekanslar kısmında görülen asimetrik bozulmayı ifade edemediğinden, Davidson ve Cole (1950), Debye ifadesine yeni bir parametre eklemiştir. Fakat bu model, Cole-Cole tarafından sunulan simetrik kayma durumlarına karşı cevap verememiştir. Havriliak ve Negami (1966), modellerinde Cole-Cole ile Davidson-Cole ifadelerini birleştirerek, deneysel verilere uyum bölgesini oldukça genişletmiştir. Bu model diğer üç modele göre çok daha iyi uyum göstermesine rağmen, özellikle düşük frekanslarda baskın hale gelen arayüzeysel kutuplanmayı açıklayamamaktadır. Yukarıda bahsedilen yönelimli kutuplanmayı temsil eden modellere ilave olarak, iletkenlik kavramını da ele alan model, Maxwell-Wagner-Sillars (MWS) tarafından geliştirilmiştir (Maxwell, 1892; Wagner, 1914; Sillars, 1937). Jonscher (1977), geçirgenliğin frekansa bağlı olması gibi, MWS bağıntısındaki iletkenliğin de frekansa bağlı olduğunu varsayan güç yasasını ileri sürmüştür. Dielektrik malzemeler genellikle heterojen olduklarından, yapıları içinde hem yönelimli hem de arayüzeysel kutuplanma birlikte bulunmaktadır. Bu yüzden bir çok araştırmacı, toplam sürecin temsilinde, kutuplanma süreçlerini ifade eden teorik bağıntıların çeşitli karışık toplamlarını kullanmışlardır.

Araştırmacılar kendi inceledikleri malzemenin özelliğine göre, yukarıda açıklanan modelleri özelleştirerek kullanmış ve sonuçlar elde edebilmişlerdir. Bu amaçla, bazen bu modellerin birden fazla toplamını alarak bazen de farklı modellerin toplamını alarak, farklı durulma mekanizmaları içeren heterojen sistemlerin özellikleri ortaya çıkarılmıştır. Örneğin Bona ve ark. (2002) ile Raissi ve ark. (2005), bu çalışmada da kullanılacak olan, Havriliak-Negami (HN) modeline güç yasalı MWS ifadesini ekleyerek süreci açıklamaya çalışmışlardır. Urban ve ark. (2002) simektit türündeki numuneleri için iki Cole-Cole (CC) modelini toplayarak, Zhou ve ark. (2010) bir çeşit siloksan sürfaktan için iki CC modelinin toplamına elektrot kutuplanması ifadesini ekleyerek, Smits ve ark. (2001) Glysol karışımları için MWS modelini kullanarak, Mpoukouvalas ve ark. (2006) bir çeşit polikarbonat için birden fazla HN modeline MWS modeli ekleyerek, Hwang ve ark. (2007) şeker için HN ifadesine CC modelini ekleyerek, Blum ve ark. (1995) koloidal parçacık çözeltileri için CC'li MWS modelini kullanarak süreçleri daha iyi anlamaya çalışmışlardır.

Pratikte pek çok malzeme için dielektrik geçirgenliğin reel ve sanal kısımlarının değişimini gözlemlemek özellikle düşük frekanslarda, elektrot kutuplanması etkisi ve MWS sürecinin sanal geçirgenliği çok büyük yapması nedeniyle, geçirgenlik modunda Cole-Cole eğrileri elde edilememektedir. Bu sorunu ortadan kaldırmak amacıyla, McCrum ve ark. (1967), elektrik modülü formalizmini geliştirmiştir. Elektrik modülü

teorik olarak basitçe dielektrik geçirgenliğin tersinin alınmasıyla elde edilir. Buna göre modülün reel kısmının değeri uygulanan alanın frekansı ile artarken, sanal kısmının değeri tıpkı dielektrik geçirgenliğin sanal kısmı gibi özel bir frekans değerinde pik göstermektedir. Matematiksel türetilişi bir sonraki bölümde tartışılacak olan modülün sanal kısmının reel kısmına oranı geçirgenlik modunda elde edilen değerin aynısıdır. Doğal olarak bu formalizmde de belirli bir frekans değerinde maksimum değer göstermektedir (Macedo ve ark., 1972; Moynihan ve ark., 1973; Tsangaris ve ark., 1998; Scwagierczak ve Kulawik, 2010; Hilker ve ark., 2010; Costa ve ark., 2010; Raghavender ve ark., 2004; Mostafa ve ark., 2002; Prabakar ve ark., 2002; Molak ve ark., 2005; Starkweather ve Avakian, 1992; Simon ve Flesch, 1999; Moynihan, 1998).

Dielektrik malzemelerin araştırılan diğer bir özelliği de iletkenliklerinin uygulanan alanın frekansıyla değişimleridir. Literatürde yapılan araştırma sonuçlarından, iletkenliğin uygulanan dış elektrik alanın frekansının artışıyla ve metallerdekinin aksine artan sıcaklıkla arttığı bulunmuştur. Gerek frekansa karşı, gerek sıcaklığa karşı çizilen iletkenlik grafiklerinin yardımıyla malzemenin iletkenlik durulması süreci incelenebilmektedir (Bobnar ve ark., 2002; Pastor ve ark., 2010; Kaya ve Fang, 1997; Salman, 2004; Wu ve ark., 2010; Fasquelle ve ark., 2010).

Süreci etkileyen dış etkenlerden bir diğeri de malzemeye uygulanan basınçtır. İncelenen malzemeye göre basıncın etkisi değişmekle birlikte genel olarak artan basınçla geçirgenlik değerleri azalmakta, sanal geçirgenliğin frekansa göre değişiminde gözlenen pikin yeri, basınç arttıkça düşük frekans bölgesine, sıcaklığa göre değişiminde gözlenen pikin yeri ise basınç arttıkça düşük sıcaklık bölgesine doğru kaymaktadır. Buradan anlaşılmaktadır ki, basıncın artması malzemedeki dipollerin yönelim almasını zorlaştırarak daha uzun sürede durulmasına neden olmaktadır (Paluch ve ark., 1996; Kedyulich ve ark., 2002; Guranich ve ark., 2007; Suchanicz ve Wojcik, 2003; Mierzwa ve ark., 2000; Shusta ve ark., 2007; Lee ve Auh, 2001).

Tez çalışmasında incelenen malzeme, Çelik ve ark. (1999) tarafından Ordu ili Ulubey ve Ünye bölgelerinden temin edilen montmorillonit türü kil mineralidir. Farklı bölgelerden elde edilen ve değişik katyonlar içeren ya da farklı maddelerle katkılanan montmorillonit killerinin dielektrik özelliklerinin değişik yöntemlerle analizlerinin yapıldığı, literatürde görülmektedir. Örneğin Calvet (1975), iki değerli katyonlarla (magnezyum, kalsiyum gibi) katkılanan montmorillonitlerin sanal geçirgenliklerinin sıcaklığa göre değişimlerini inceleyerek (reel geçirgenlikleri hesaba katmadan), bu katkıların aktivasyon enerjilerini nasıl etkilediklerini araştırmış ve elektriksel

iletkenlikten kaynaklanan aktivasyon enerjisi değerlerini, Mg-montmorillonit için yaklaşık olarak 24 ile 42 kJ/mol, Ca-montmorillonit için 29 ile 39 kJ/mol; durulma frekansı aktivasyon enerjisi değerlerini ise, Mg-montmorillonit için 29 ile 39 kJ/mol, Ca-montmorillonit için 80 ile 105 kJ/mol arasında bulmuştur. Durmuş ve ark. (2008), bu çalışmada da kullanılan numunelerinde nem ve sıcaklığın dielektrik sürece etkisini incelemişler ve aktivasyon enerjilerinin yaklaşık 32 ile 41 kJ/mol arasında olduğunu göstermişlerdir. Arroyo ve ark. (2000), sodyum montmorillonit çözeltilerinin dielektrik özelliklerini inceleyerek artan asitliğin dielektrik kazançları azalttığını vurgulamışlardır. Raythatha ve Sen (1986), farklı oranlarda sofra tuzu içeren montmorillonitleri 500 kHz dış alan frekansında inceleyerek, artan tuz oranının dielektrik geçirgenliği ve iletkenliği artırdığını belirtmişlerdir. Sengwa ve ark. (2009) hidrofilik polimer-montmorillonit karışımlarından oluşturdukları nanokompozit sulu çözeltileri kullanarak farklı konsantrasyondaki karışımların geçirgenlik, iletkenlik ve empedans değerlerini incelemiş ve artan konsantrasyon oranının iletkenliği artırdığını, empedans grafiklerini ise değiştirdiğini göstermişlerdir. Dudley ve ark. (2003), üç farklı parçacık büyüklüğünden ve iki farklı katyon içeriğinden oluşan montmorillonitlerin düşük frekanslar bölgesindeki dielektrik özelliklerini incelemişlerdir. Dielektrik özelliklerin belirlenmesi için iki Debye modeline arayüzeysel (MWS) modeli ekleyerek deneysel verilere en iyi uyumu yakalamaya çalışmışlardır. Artan sıcaklığın ve artan parçacık boyutunun dielektrik durulma sürelerini azalttıklarını göstererek, aktivasyon enerjilerinin, Na-montmorillonit için 13 ile 20 kJ/mol ve Ca-montmorillonit için 18 ile 28 kJ/mol arasında olduğunu bulmuşlardır. Haouzi ve ark. (2004) ise farklı alkali katyonlarla katkılanan montmorillonitin iletkenlik durulması süreçlerini incelemiş ve iletkenlik durulması aktivasyon enerjilerini yaklaşık 90 ile 120 kJ/mol arasında belirlemiştir. Logsdon ve Laird (2004), Ca, Mg, Na ve K katyonları içeren simektitlerin aktivasyon enerjilerini sırasıyla, 14,0, 22,3, 11,4 ve 29,6 kJ/mol bulmuşlardır.

Bu şekilde örnekleri artırmak mümkün olsa da, literatürde incelenen montmorillonit kilinin elde edilen bölgeye göre değişmesi, yapısında doğal olarak bulunan ya da laboratuar ortamında eklenen katkıların miktarının ve türünün birbirinden farklı olması nedeniyle, dielektrik tepkilerinde de farklılık olması gayet doğaldır. Bu yüzden, çalışmada ele alınan numunelerin diğer çalışmalarla birebir karşılaştırılması olanaklı görülmemektedir.

3. MATERYAL VE METOT

3.1. Dielektrik Teori

Maddelerin elektriksel ve dielektrik özelliklerini tanımlayabilmek için süreci analiz edecek ifadelerin ortaya çıkarılması gerekir. Bununla birlikte maddelerin elektrik alan altındaki davranışlarını anlamak da oldukça önemlidir. Çalışmanın bu kısmında, temel elektrostatik tanımlar verilerek, herhangi bir dielektrik maddeye statik ve değişken elektrik alan uygulandığında malzemede meydana gelen fiziksel değişimler ele alınacak ve dielektrik tepkiyi açıklayan ifadeler işlenecektir.

3.1.1. Elektrostatik temel

Elektromagnetik alanların madde ile etkileşmesi Maxwell denklemleriyle tanımlanır:

$$\nabla \mathbf{E} = -\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{B} \tag{3.1}$$

$$\nabla \mathbf{H} = \mathbf{J} + \frac{\partial}{\partial t}\mathbf{D} \tag{3.2}$$

$$\operatorname{div} \mathbf{B} = 0 \tag{3.3}$$

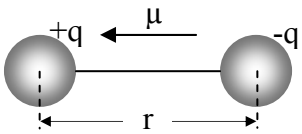
$$\operatorname{div} \mathbf{D} = \rho_e \tag{3.4}$$

Bu denklemlerdeki **E** ve **H** elektrik ve magnetik alanları, **D** dielektrik yer değiştirmeyi, **B** magnetik indüksiyonu, **J** akım yoğunluğunu ve ρ_e ise yük yoğunluğunu tanımlar (Maxwell, 1865).

3.1.2. Dipol ve dipol momenti kavramı

Yunanca “di” ve “pole” kelimelerinden türetilen dipol terimi, kutup çifti anlamına gelmektedir. Fizikte bir çok farklı türde dipol vardır. Bunlar arasında; pozitif ve negatif yüklerin ayrışması olan elektriksel dipol, elektrik akımından kaynaklanan magnetik dipol, yüksek viskoziteli ortamlarda oluşan akış dipolü ile akustik dipol sayılabilir. Ancak bu çalışmada yalnızca elektriksel dipol ele alınacak ve bu yüzden

sadece “dipol” diye adlandırılacaktır. Dipolün en basit tanımı, “büyüklükleri aynı, işaretleri zıt olan ve genelde küçük bir mesafeyle birbirinden ayrılan elektriksel yük çifti” şeklindedir (Hippel, 1954). Bir vektör olan dipolün yönü, negatif yükten pozitif yüke doğrudur. Böyle bir dipolün şematik gösterimi Şekil 3.1’de verilmektedir.



Şekil 3.1 Bir dipol oluşumunun şematik gösterimi (İzci, 2001)

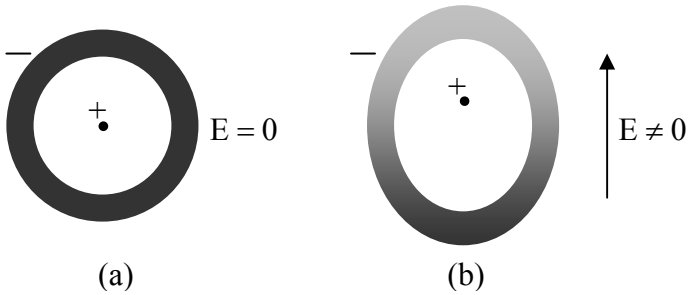
Bu tipteki bir polar molekülün elektrik dipol momentinin büyüklüğü ise,

$$\mu = qr \tag{3.5}$$

bağıntısı ile verilir. Burada q, molekülün pozitif yükünü; r, negatif ve pozitif yük arasındaki mesafe olan dipol uzunluğunu gösterir (İzci, 2001).

3.1.3. Statik elektrik alanın dielektrik maddelere etkisi

İdeal dielektrikler, iletkenlerde olduğu gibi, iletkenliği sağlayacak kadar serbest yük içermezler ve atom yada moleküllerinin yük merkezleri, Şekil 3.2.a’da görüldüğü gibi çakışıktır. Dielektriklerde neredeyse tüm yükler belirli atom yada moleküllere bağlıdırlar. Bu yüzden hareketleri molekül içerisinde sınırlıdır. Bununla birlikte bir dış statik elektrik alan uygulandığında, negatif ve pozitif yükler iletkenlerde olduğu gibi malzemenin yüzeyine doğru hareket etmezler. Bağlı pozitif ve negatif yüklerin gerçekleştirebileceği en olası hareket, bu yüklerin denge konumlarına göre zıt yönlerdeki çok küçük yer değiştirmeleridir (Şekil 3.2.b). Bunun sonucunda dipoller ve buna bağlı olarak dipol momentler oluşur. Malzemenin dış alanla etkileşimi dielektrik malzemeye elektrik enerjisi depolama özelliği sağlar. Dış elektrik alanın etkisi ortadan kaldırıldığında bu yükler eski denge konumlarına dönerler. Bu şekilde net dipol moment yine sıfır olur.

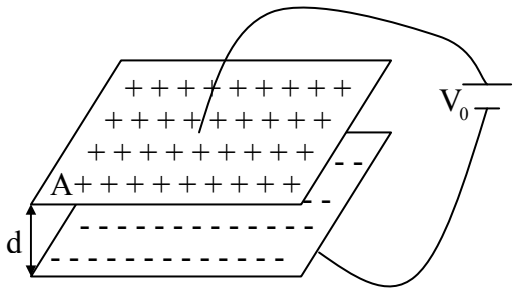


Şekil 3.2. (a) Elektrik alan uygulanmadığı durumdaki, (b) elektrik alan uygulandığı durumdaki çekirdek ve elektron bulutu dağılımlarının şematik gösterimi

Dielektrik maddeler genel olarak net bir dipol momente sahiptir. Dış elektrik alan, bu tür kutuplu maddelerde yalnızca pozitif ve negatif yükleri denge konumundan saptırmakla kalmaz, var olan sürekli dipolleri de kendi doğrultusunda yönelim almaya zorlar.

3.1.4. Dielektriksiz ve dielektrikli paralel plakalı kondansatör

Aralarında d uzaklığı bulunan, A yüzey alanına sahip paralel plakalı bir kondansatörün şematik gösterimi Şekil 3.3'te verilmiştir.



Şekil 3.3. İçinde dielektrik madde bulunmayan paralel plakalı kondansatör

Bu plakalara bir doğru gerilim uygulanırsa, plakalar yüklenmeye başlar. Plakalardan birinin +Q, diğerinin de –Q yüküyle yüklendiği kabul edilirse, plakalar arasında oluşan elektrik alan şiddeti,

$$E_0 = \sigma_Q / \varepsilon_0 \tag{3.6}$$

ifadesi ile verilir. Burada ε_0 boşluğun elektriksel geçirgenlik sabitidir ($\varepsilon_0 = 8,854\text{x}10^{-12}$ Farad/m). Bu nicelik, boş uzaydaki belli bir kapalı yüzeyin içindeki toplam elektrik yükünün bu yüzeyden geçen elektrik akısına oranına eşittir (Taraev, 1975). σ_Q ise her bir plaka üzerinde birim yüzey alanı başına düşen yük miktarı olup, yüzey yük yoğunluğu adını alır. Bu durumda, aralarında d uzaklığı bulunan paralel plakalar arasında oluşan potansiyel farkı,

$$V_0 = E_0.d \tag{3.7}$$

olur. Buna göre, her bir plakanın sahip olduğu toplam yük $Q_0 = \sigma_Q.A$ olmak üzere, paralel plakalı kondansatörün sığası,

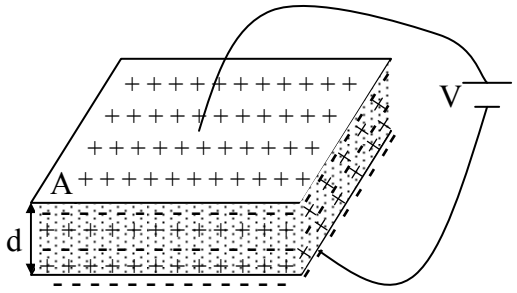
$$C_0 = \frac{Q_0}{V_0} = \varepsilon_0 \frac{A}{d} \quad \text{(Farad)} \tag{3.8}$$

olarak ifade edilir. Ayrıca σ_Q yüzey yük yoğunluğu, plakalar arasındaki bölgede elektrik yer değiştirme kaynağı olarak düşünülebilir. Buna göre elektrik yer değiştirme (yada elektrik akı yoğunluğu);

$$\mathbf{D}_0 = \sigma_Q = \varepsilon_0.\mathbf{E}_0 \tag{3.9}$$

ile ifade edilir.

Paralel plakalı kondansatörün plakaları arasına dielektrik bir madde konulduğu durumda, kapasitans ε çarpanı kadar artar. Bu ε çarpanına dielektrik sabiti (geçirgenlik) denir ve maddenin elektrik alanla etkileşmesini tanımlar. Bu sabit, her zaman boşluğun geçirgenliği (ε_0) cinsinden ifade edilir ve daima 1'den büyük bir sayıdır. Şekil 3.4'te içinde dielektrik madde bulunan paralel plakalı bir kondansatörün şematik gösterimi verilmiştir.



Şekil 3.4 İçinde dielektrik madde bulunan paralel plakalı kondansatör

Plakalar arasına dielektrik bir madde konulduğunda V potansiyel farkı ve E elektrik alanı, dielektrik madde konulmadığı durumdakine göre ε çarpanı kadar azalır;

$$V = V_0 / \varepsilon , \tag{3.10}$$

$$E = E_0 / \varepsilon . \tag{3.11}$$

Kondansatör üzerinde biriken Q yükü değişmediğinden sığanın değeri ε çarpanı kadar artar;

$$C = \frac{Q_0}{V} = \varepsilon \frac{Q_0}{V_0} = \varepsilon C_0 . \tag{3.12}$$

O halde plakalar arasındaki uzay dielektrik madde ile doldurulduğunda, kondansatörün sığası,

$$C = \varepsilon \varepsilon_0 \frac{A}{d} \tag{3.13}$$

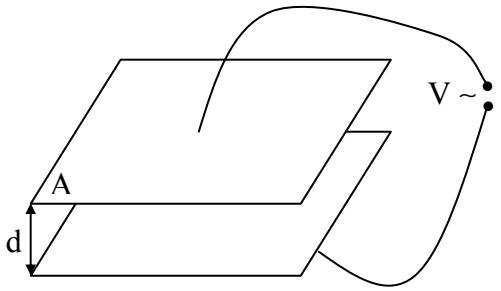
olarak ifade edilebilir.

3.1.5. Değişken elektrik alanın dielektrik maddelere etkisi

Şekil 3.3'te verilen, A yüzey alanına sahip, aralarında d mesafe bulunan paralel plakalı bir kondansatörün uçları arasına, Şekil 3.5'teki gibi bir V alternatif gerilimi uygulandığında, depo edilen yük,

$$Q = C_0 V \tag{3.14}$$

olacaktır (Smyth, 1955; Hippel, 1954). Bağıntıdaki C_0 kapasitansı, V ise plakalara uygulanan gerilimi göstermektedir.



Şekil 3.5 Alternatif gerilim kaynağına bağlı dielektriksiz kapasitör

Kapasitörün bağlı olduğu alternatif kaynağın sağladığı V gerilimi,

$$V = V_0 e^{i\omega t} \tag{3.15}$$

$$\omega = 2\pi f \tag{3.16}$$

ile gösterilir. Burada ω açısal frekansı, f frekansı göstermektedir. i ise $i = \sqrt{-1}$ şeklinde tanımlıdır. Bu durumda, akımın birim zamanda geçen yük miktarı olduğu bilgisi kullanılırsa, kapasitörün akımı,

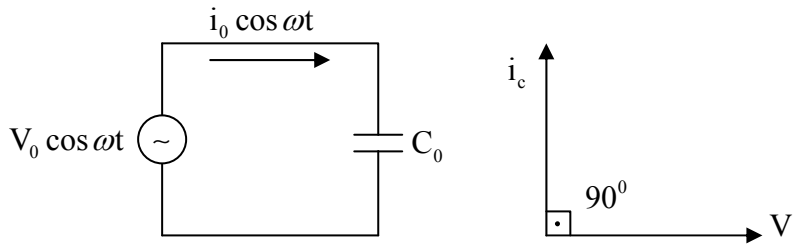
$$i_c = \frac{dQ}{dt} \tag{3.17}$$

şeklinde yazılabilir. Q için Denklem (3.14) ve V için Denklem (3.15) ifadeleri kullanılıp, Denklem (3.17)'deki türev alınırsa, akım için,

$$i_c = i\omega C_0 V \tag{3.18}$$

ifadesi elde edilir (Hippel, 1954). İdeal bir kapasitördeki akım-gerilim ilişkisi Şekil 3.6'daki gibidir. Bu şekle göre, alternatif bir gerilim altında yüklenen kapasitörün

üzerinden geçen akım ile gerilim arasındaki ilişki incelenirse, ideal durumda kapasitörden geçen i_c akımı ile V gerilimi arasındaki açının 90^0 olduğu görülür.



Şekil 3.6 İdeal bir kapasitörün akım-gerilim ilişkisi (Hippel, 1954)

Dielektrik geçirgenlik, dielektrikle doldurulmuş bir kapasitörün C kapasitansının, plakalar arası boş olduğu durumdaki değeri olan C_0 kapasitansına oranı olarak tanımlanır. Plakalar arası uzay, dielektrik madde ile doldurulduğunda ve bağıl geçirgenlik $\varepsilon_r = \varepsilon / \varepsilon_0$ şeklinde kabul edildiğinde, kapasitörün kapasitansı dielektrik geçirgenlik çarpanı kadar artacaktır,

$$C = C_0(\varepsilon / \varepsilon_0) = C_0 \varepsilon_r \tag{3.19}$$

Burada ε dielektrik maddenin, ε_0 boşluğun dielektrik geçirgenliğidir. ε_r ise malzemenin bağıl dielektrik geçirgenliğidir. Denklem (3.19) göz önüne alındığında, Denklem (3.18)'deki akım ifadesi,

$$i_c = i\omega\varepsilon_r C_0 V \tag{3.20}$$

haline dönüşür.

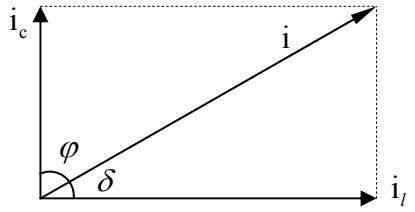
Kayıplı bir dielektrikte kazanç akımı i_c'ye ilave olarak, genelde kondansatör plakaları arasındaki resistif bir akıma karşılık gelen eş fazlı bir kayıp akım (i_l) bileşeni oluşur ve kayıp akım,

$$i_l = GV \tag{3.21}$$

şeklinde tanımlanır. Burada G, dielektrik malzemenin kondüktansıdır. Bu tür bir akım tamamen dielektrik ortam sebebiyle oluşmuştur ve ortamın bir özelliğidir. Bu durumda kapasitördeki toplam akım,

$$\mathrm{i} = \mathrm{i}_c + \mathrm{i}_l = (i\omega \mathrm{C} + \mathrm{G})\mathrm{V} \tag{3.22}$$

olacaktır (Hippel, 1954). Kayıplar nedeniyle akım ile gerilim arasında Şekil 3.7'deki gibi bir φ faz farkı açısı (faz açısı) oluşur. Faz açısı, bir dielektrikteki kayıplar yönünden kapasitörü tanımlar. Faz açısı 90^0'ye ne kadar yakınsa dielektriğin o kadar kaliteli olduğu söylenebilir (Taraev, 1975).



Şekil 3.7 Kayıplı bir dielektrikteki kazanç ve kayıp akımların şematik gösterimi (Taraev, 1975)

Faz açısını 90^0'ye tamamlayan açıya kayıp açısı veya kayıp tanjant adı verilir ve δ ile gösterilir (Hippel, 1954; Taraev, 1975).

$$\delta = 90^0 - \varphi, \tag{3.23}$$

$$\tan\delta = \frac{\mathrm{i}_l}{\mathrm{i}_c} \tag{3.24}$$

Kutuplu bir malzeme elektrik alan içerisine konulduğu zaman, bu malzeme için elektrik yer değiştirme (**D**) ve elektrik alan (**E**) zamanın bir fonksiyonu olarak ifade edilebilir. Elektrik yer değiştirme vektörünün zamana bağlılığı, sürekli dipollere sahip malzemelerde görülür. Bu durum, hiç dipolü olmayan malzemelerden farklıdır. Bir kristale $t = 0$ anında statik bir **E** elektrik alanı belli bir süre uygulanmış olsun. Kristaldeki dipollerin hareketi iki şekilde gerçekleşir. Bu hareket, dipollerin ya uygulanan elektrik alan yönünde hemen düzenlenmesi ya da son düzenlenimlerine

yavaşça ulaşmalarıdır. İlk durum statik durum olarak bilinir. Diğeri ise elektrik alan ile kutuplanma vektörünün aynı fazda olmamalarından kaynaklanır.

Elektrostatikte yer değiştirmenin ifadesi $\mathbf{D} = \varepsilon\mathbf{E}$ şeklinde gösterilir. Buradaki ε, zamandan bağımsız gerçek bir değerdir. Bu ifadeye zamanla ilgili bir terim eklendiğinde, ifade fiziksel manada zamanın bir fonksiyonu haline gelir. **D** ve **E**'nin birinci dereceden zamana göre türev terimleri eklenerek,

$$\mathbf{D} + \mathrm{a}\frac{d\mathbf{D}}{dt} = \mathrm{b}\mathbf{E} + \mathrm{c}\frac{d\mathbf{E}}{dt} \tag{3.25}$$

elde edilir. Denklemdeki a, b, c terimlerinin düzeltme sabitleri olduğunu kabul edelim. Zamana göre ikinci, üçüncü vs. terimleri eklenebilir. Ancak orta şiddetli elektrik alanlar için yüksek dereceli türevleri ihmal edebiliriz. Aşağıda verilen koşullar ele alınarak dielektrik davranış incelenecek olursa, a, b, ve c sabitlerinin malzemeye özgü oldukları ortaya çıkar.

i: Malzemenin sabit bir elektrik alan etkisi altında olduğunu varsayalım. Bu, statik bir durumdur ve bu koşulda elektrik alan ve dolayısıyla elektrik yer değiştirme niceliğinin zamanla değişimi görülmez. Bu durumda 3.25 denklemi,

$$\mathbf{D} = \mathrm{b}\mathbf{E} \tag{3.26}$$

olur. Buradaki b, statik dielektrik geçirgenliktir (ε_s). Yani Denklem (3.25) eşitliği yeniden yazılırsa,

$$\mathbf{D} + \mathrm{a}\frac{d\mathbf{D}}{dt} = \varepsilon_s\mathbf{E} + \mathrm{c}\frac{d\mathbf{E}}{dt} \tag{3.27}$$

şeklinde ifade edilebilir.

ii: Malzemenin ani olarak bir elektrik alan etkisinde bırakıldığı durumu ele alalım. Elektrik alan uygulandığı süre boyunca sabit değerde kalsın. Bu durumda malzemenin D elektrik yer değiştirmesi ani olarak karakteristik bir değere ulaştıktan sonra dipoller belli bir düzene gelene kadar zamana bağlı bir şekilde artma eğilimi gösterir. $d\mathbf{E}/dt = 0$ durumu için, Denklem (3.27) bağıntısı

$$\mathbf{D} + a\frac{d\mathbf{D}}{dt} = \varepsilon_s \mathbf{E} \tag{3.28}$$

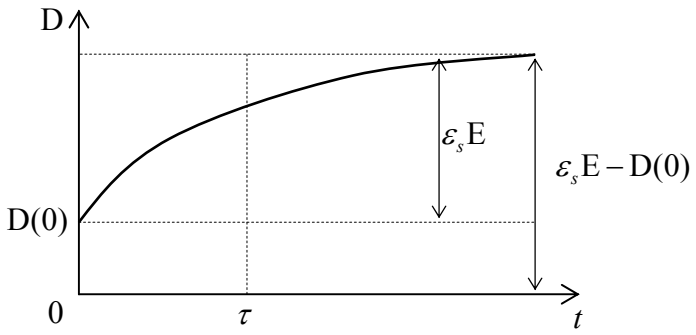
olarak ifade edilir. bu denklemin çözümü,

$$\ln(\mathbf{D} - \varepsilon_s \mathbf{E}) = -\frac{t}{\mathrm{a}} + \text{sabit} \tag{3.29}$$

ile verilir. $t = 0$ 'da $\mathbf{D} = \mathrm{D}(0)$ olsun. Buna göre,

$$\mathbf{D} = \varepsilon_s \mathbf{E} - \left[-\mathbf{E}(0) + \varepsilon_s \mathbf{E}\right] \mathrm{e}^{-t/\mathrm{a}} \tag{3.30}$$

olur. Bu denklem göz önüne alınarak **D**'nin zamanla değişimi Şekil 3.8'de verilmiştir. Elektrik yer değiştirmenin ilk değerinin D(0), son değerinin de üstel bir artışla geldiği $(\varepsilon_s \mathbf{E})$ maksimum değer olduğu görülmektedir.



Şekil 3.8 Sabit elektrik alanında **D**'nin zamanla değişimi (Yücedağ, 2007)

Bu incelemenin, Denklem (3.25)'te yer alan a sabiti, bu üstel davranışta görülen τ zaman sabitidir. Durulma zamanı olarak bilinen bu değer, kutuplanma zamanının 1/e'sine düşmesi için geçen zamandır ve dielektrikte bulunan moleküllerin hareketinin bir ölçüsüdür. Bu duruma göre Denklem (3.27)'nin son hali,

$$\mathbf{D} + \tau\frac{d\mathbf{D}}{dt} = \varepsilon_s \mathbf{E} + \mathrm{c}\frac{d\mathbf{E}}{dt} \tag{3.31}$$

olur.

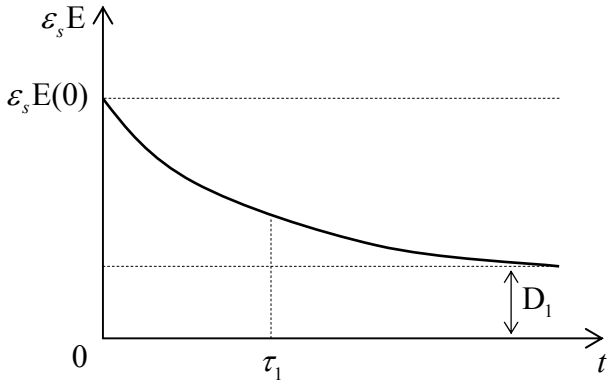
iii: Malzeme bu defa $t = 0$ anında $\mathrm{E}(0)$ değerine sahip bir elektrik alan etkisinde kalmış olsun. Bu etki altında malzeme içinde meydana gelen elektrik yer değiştirme değerinin $\mathbf{D}_1$ olduğunu düşünelim. $\mathbf{D}$'nin $\mathbf{D}_1$ değerinde sabit kalması için elektrik alan zamana göre değişir ve Denklem (3.31),

$$\mathbf{D}_1 = \varepsilon_s \mathbf{E} + \mathrm{c}\frac{d\mathbf{E}}{dt} \tag{3.32}$$

haline gelir. Bu denklemin integrali alındığında,

$$\varepsilon_s \mathbf{E} = \mathbf{D} + \left[\varepsilon_s \mathbf{E}(0) - \mathbf{D}_1\right] \mathrm{e}^{-\varepsilon_s t/\mathrm{c}} \tag{3.33}$$

elde edilir. Bu ifadeye karşılık gelen şematik bir grafik Şekil 3.9'da verilmiştir.



Şekil 3.9 Elektrik yer değiştirmenin sabit olduğu durumda, E elektrik alanının zamanla değişimi (Yücedağ, 2007)

Şekil 3.9, üstel azalmanın farklı bir zaman sabitiyle olduğunu gösterir $(\tau_1 = \mathrm{c}/\varepsilon_s)$. Bu nedenle Denklem (3.31)'in son hali,

$$\mathbf{D} + \tau \frac{d\mathbf{D}}{dt} = \varepsilon_s \mathbf{E} + \varepsilon_s \tau_1 \frac{d\mathbf{E}}{dt} \tag{3.34}$$

olur. Sonuç olarak, bu diferansiyel denklemde malzemeye özgü sabitlerin de yer aldığı zamana bağlı türevleri ve **E** ile **D** arasındaki ilişkiyi ifade eden bir diferansiyel denklem elde edilmiş olur.

Dielektrik malzemeye Δt süresince ΔE artırımları ile elektrik alan uygulandığında, elektrik yer değiştirmede ΔD kadar bir artış olur. Denklem (3.34)'te bu değişimin etkisi diferansiyel biçimde, Δt üzerinden terim integral alınarak anlaşılabilir:

$$\int_0^{\Delta t} D\Delta t + \tau \int_0^{\Delta D} dD = \varepsilon_s \int_0^{\Delta t} E\Delta t + \varepsilon_s \tau_1 \int_0^{\Delta E} dE \,. \tag{3.35}$$

Δt zaman aralığı küçüldüğünde, denklemin her iki tarafındaki ilk terimler sıfıra yaklaşır. ΔE (dolayısıyla ΔD), zamandaki bu daralmayı herhangi bir değişim ile karşılamaz. Örneğin, bu zaman aralıklarında, elektrik alan ΔE artırımları ile uygulandığında sözü edilen terimler sabit bir değerde kalır. Buna göre,

$$\tau \Delta D = \varepsilon_s \tau_1 \Delta E \quad \text{veya} \quad \frac{\Delta D}{\Delta E} = \frac{\varepsilon_s}{\tau} \tau_1 \tag{3.36}$$

olur. Bu ifadelerden yola çıkarak ε_∞ gibi bir terim şu şekilde kullanılabilir;

$$\Delta D = \varepsilon_\infty \Delta E \,. \tag{3.37}$$

Buradaki ε_∞, malzemedeki sürekli dipoller hareket etmeden önce, ΔD ve ΔE ' deki ani bir değişime karşılık gelen geçirgenlik (permitivite) değerini ifade eder. Buna göre, Denklem (3.36),

$$\tau \varepsilon_\infty = \tau_1 \varepsilon_s \tag{3.38}$$

haline gelir. Denklem (3.34) ise,

$$D + \tau \frac{dD}{dt} = \varepsilon_s E + \varepsilon_\infty \tau \frac{dE}{dt} \tag{3.39}$$

şeklinde elde edilir.

D elektrik yer değiştirme ifadesindeki elektrik alan ile farklı fazda olan terim, dielektrik malzemedeki enerji kaybını gösterir. Birim hacimdeki güç kaybı (P_l),

$$P_l = \mathbf{JE} \tag{3.40}$$

ifadesi ile tanımlanmaktadır. Burada **J**, **E** ile aynı fazda olan akım yoğunluğu bileşenidir. $\mathbf{E} = E_0 e^{i\omega t}$, $\mathbf{D} = \varepsilon \mathbf{E}$ ve $\varepsilon^* = \varepsilon' - i\varepsilon''$ olduğu kabul edilirse, birim zamandaki elektrik yer değiştirme şeklinde tanımlanan toplam akım yoğunluğu,

$$\mathbf{J} = \frac{d\mathbf{D}}{dt} = \frac{d}{dt}\left(\varepsilon'\mathbf{E} - \varepsilon''\mathbf{E}\right) = i\omega\varepsilon'\mathbf{E} + \omega\varepsilon''\mathbf{E} \tag{3.41}$$

şeklinde gösterilir. Buna göre malzemedeki güç kaybı, toplam akım yoğunluğunun **E** ile farklı fazda olan bileşeni ($\omega\varepsilon''\mathbf{E}$) ve Denklem (3.40) kullanılarak,

$$P_l = \omega\left|\varepsilon''\right|E^2 \tag{3.42}$$

biçiminde elde edilir. Güç kaybı, elektrik yer değiştirmenin faz farkı bileşeni ile orantılıdır ve frekansın bir fonksiyonu olarak ε'' bileşenine yakın bir davranış gösterir. Düşük ve yüksek frekanslarda değeri düşerken, kritik bir frekans değerinde ($\omega = 1/\tau$) pik verir. Bununla birlikte enerji kayıp değeri, kayıp açısı δ ile tanımlanır. P_l güç kaybı ε' ve $\tan\delta$ cinsinden,

$$P_l = \omega E^2 \varepsilon' \tan\delta \tag{3.43}$$

şeklinde gösterilir.

3.1.6. Kompleks dielektrik geçirgenlik ve elektriksel iletkenlik

Bağıl geçirgenlik teriminin yanı sıra bir de kompleks bağıl geçirgenlik (yada sadece kompleks geçirgenlik) tanımlanmıştır. Kompleks bağıl geçirgenlik, ε_r^* ile gösterilir. Kompleks geçirgenlik reel ve sanal kısımlardan oluşur;

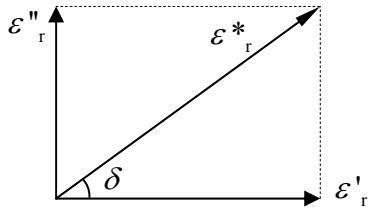
$$\varepsilon_r^* = \varepsilon_r' - i\varepsilon_r'' . \tag{3.44}$$

Burada ε_r', kompleks geçirgenliğin reel kısmı olup bir malzeme içerisinde dış elektrik alandan ne kadar enerji depolandığının bir ölçüsüdür ve bütün katı ve sıvılar için 1'den büyüktür. ε_r'' ise kompleks geçirgenliğin sanal kısmıdır. Bu nicelik malzemedeki ısıya dönüşerek harcanan enerji kayıplarını sembolize eder. ε_r'' daima sıfırdan büyük ve genellikle ε_r' den çok daha küçüktür (Hippel, 1954).

Bir malzemenin bağıl kayıplılığı, kaybedilen enerjinin depolanan enerjiye oranıdır ve

$$\tan\delta = \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'} \tag{3.45}$$

şeklinde gösterilir. Kompleks dielektrik geçirgenliğin bağıl kayıplılığı (kayıp tanjant) ile ilgili vektör diyagramı Şekil 3.10'da verilmiştir.



Şekil 3.10 Kompleks dielektrik geçirgenliğin kayıp tanjant vektör diyagramı (Hippel, 1954)

Kayıp tanjant ifadesi bu diyagram yardımıyla da elde edilebilir. Vektör toplamı reel eksenle δ gibi bir açı yapar. Bu açının tanjantı, dielektrikte ısı olarak açığa çıkan enerji miktarının büyüklüğünü değerlendirmekte kullanılır. Üzerinde çalışılan tüm malzemelerden elde edilen, frekansa karşı çizilen $\tan\delta$ grafiklerinde maksimumlar gözlenir. Bu maksimumlar malzemede yer alan durulma olaylarından kaynaklanır (Keymeulen ve Dekeyser, 1957).

Kompleks dielektrik geçirgenliğin reel ve sanal kısımlara ayrılmasından hareketle, kapasitör içindeki akım için tanımlanan (3.20) denklemi ($i = i\omega\varepsilon_r C_0 V$),

$$\mathrm{i} = i\omega(\varepsilon' - i\varepsilon'')\mathrm{C}_0\mathrm{V} \tag{3.46}$$

$$\mathrm{i} = \omega\varepsilon''\mathrm{C}_0\mathrm{V} + i\omega\varepsilon'\mathrm{C}_0\mathrm{V} \tag{3.47}$$

haline gelir. Görüleceği gibi akım reel ve sanal elemanlara sahip olur. İçinde dielektrik madde bulunmayan paralel plakalı kondansatörün sığası Denklem (3.8)'de tanımlanmıştı. Bu tanım, Denklem (3.47)'de kullanıldığında akım,

$$\mathrm{i} = \omega\varepsilon''\frac{\mathrm{A}}{\mathrm{d}}\varepsilon_0\mathrm{V} + i\omega\varepsilon'\frac{\mathrm{A}}{\mathrm{d}}\varepsilon_0\mathrm{V} \tag{3.48}$$

olacaktır. Plakalar arasındaki elektrik alan şiddeti $\mathrm{E}_0 = \mathrm{V}_0 / \mathrm{d}$ (Volt/metre) ve akım yoğunluğu $\mathrm{J} = \mathrm{i} / \mathrm{A}$ $(\mathrm{Amper} / \mathrm{metre}^2)$ olduğundan, akım yoğunluğu için,

$$\mathrm{J} = \omega\varepsilon_0\varepsilon''\mathrm{E} + i\omega\varepsilon_0\varepsilon'\mathrm{E} \tag{3.49}$$

ifadesi kullanılabilir. Akım yoğunluğunun elektrik alana oranının iletkenliği verdiği gerçeğinden hareketle, iletkenlik için;

$$\sigma^* = \frac{\mathrm{J}}{\mathrm{E}} = \omega\varepsilon_0\varepsilon'' + i\omega\varepsilon_0\varepsilon' \tag{3.50}$$

yazılabilir. Görüldüğü gibi, denklemdeki iletkenlik terimi kompleks bir ifadedir ve $\sigma^* = \sigma' + i\sigma''$ şeklinde gösterilebilir. Bu durumda iletkenliğin reel ve sanal kısımları;

$$\sigma' = \omega\varepsilon_0\varepsilon'', \tag{3.51}$$

$$\sigma'' = \omega\varepsilon_0\varepsilon' \tag{3.52}$$

olarak verilebilir. Denklem (3.50)'deki sanal terim sığadan kaynaklanır. Sığada da bağıl geçirgenliğin reel kısmı vardır. Bundan dolayı, dielektrik iletkenlik için Denklem (3.51) kullanılır. Dielektrik iletkenlik, madde içindeki bütün kayıp mekanizmaların toplamını ve dielektriğin performansının ölçümünü ifade eder.

3.1.7. Dielektrik geçirgenliği hesaplama yöntemi

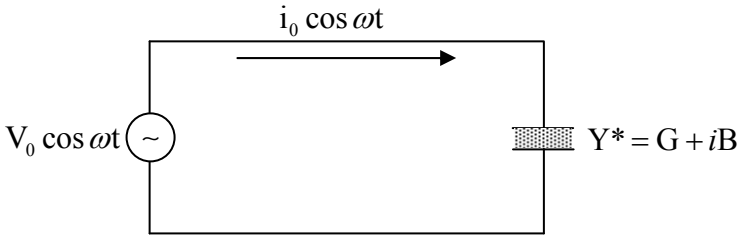
Bir dielektrik malzemenin dielektrik geçirgenliği ölçülmek istendiğinde, malzeme bir elektrik devresiyle temsil edilir, yani bir eşdeğer devre karşılık getirilir. Dielektrik madde ile doldurulmuş paralel plakalı kondansatörün yapısı, admitans ile karakterize edilebilir. Ushida ve ark. (2003)'na göre, admitans terimi 1887 yılında Oliver Heaviside tarafından ortaya atılmıştır. Admitans, bir malzeme yada devrenin, akımın geçişine ne kadar kolaylık göstereceğinin bir ölçüsüdür. Admitans, empedansın tersidir ve,

$$Y^* = \frac{1}{Z^*} \tag{3.53}$$

şeklinde verilir. Empedansın birimi Ω (ohm) olduğundan, admitansın birimi de empedansın tersi olarak, ℧ (mho, Siemens) şeklinde tanımlanır. Admitans, sadece kararlı bir akımın (kondüktans) hangi kolaylıkla akacağını değil aynı zamanda suseptansın dinamik etkilerinin de ölçüsüdür. Kondüktans ve suseptans değerlerine bağlı olarak admitans,

$$Y^* = G + iB \tag{3.54}$$

şeklinde gösterilir. Buradaki G, malzemenin kondüktansı olup yük akışı mekanizmasıyla ilgilidir ve matematiksel olarak rezistansın tersidir. B ise malzemenin suseptansı olup, kapasitif durumda kapasitörün, indüktif durumda indüktörün akım geçirme yeteneğidir ve matematiksel olarak reaktansın tersidir. Hem G hem de B'nin birimi Siemens'tir. Denklem (3.54), net suseptansın kapasitif olduğu durumda geçerlidir. Net suseptansın indüktif olması durumunda ise ifade, $Y^* = G - iB$ şeklinde tanımlanır. Bu çalışmada ele alınan numuneler paralel plakalı kondansatör olarak inceleneceğinden, kapasitif durum için olan ifade kullanılacaktır. Bu durumu özetleyen şematik bir gösterim Şekil 3.11'de sunulmuştur.



Şekil 3.11 Dielektrik madde ile doldurulmuş bir kondansatördeki akım, gerilim ve admitansın şematik gösterimi

Şekildekine benzer seri RC devrelerinde kompleks empedans, açısal frekansın fonksiyonu olarak;

$$Z^*(\omega) = \frac{1}{i\omega C(\omega)} \tag{3.55}$$

şeklinde tanımlanır (Daniel, 1967) . Eşitliğin sağ kısmındaki sığa teriminin $C = \varepsilon^* C_0$ olduğu hatırlanırsa ve Denklem (3.55) deki kompleks empedans yerine, Denklem (3.53) 'te tanımlanan admitans ifadesi konulursa, (3.53) eşitliği;

$$Y^* = i\omega\varepsilon^* C_o = i\omega(\varepsilon' - i\varepsilon'')C_0 = \varepsilon''\omega C_0 + i\varepsilon'\omega C_0 \tag{3.56}$$

haline gelir. Bu ifade, Denklem (3.54) ile karşılaştırıldığında, kompleks geçirgenliğin reel ve sanal kısımları için;

$$\varepsilon' = \frac{B}{\omega C_0}, \text{ ve} \tag{3.57}$$

$$\varepsilon'' = \frac{G}{\omega C_0} \tag{3.58}$$

gösterimleri elde edilir (Daniel, 1967). Sonuç olarak, G ve B değerleri ölçülebilirse, malzemenin geometrik özellikleri de kullanılarak reel ve sanal geçirgenlikler belirlenebilir.

3.1.8. Dielektrik maddelerin sınıflandırılması

Dielektrik maddeler, kutuplu (polar) ve kutupsuz (apolar) olmak üzere iki ana grupta sınıflandırılabilir. Bu sınıflandırma, maddelerin fiziksel ve kimyasal özellikleri bakımından oldukça önemlidir (Taraev, 1975).

Malzemeye dışarıdan bir elektrik alan uygulanmadığında, maddenin oluşturduğu net bir elektriksel moment yoksa bu türdeki dielektrik maddelere apolar dielektrik maddeler denir. Dış alan olmadığında bu maddelerin moleküllerinin her birinde pozitif ve negatif yük merkezleri çakışıktır. Dolayısıyla bu tür moleküller apolardır (H_2, N_2, O_2 gibi). Herhangi bir elektrik alan uygulanmadığı zaman, bu tür malzemelerde aşağıda ifadeleri sunulan toplam dipol momenti ve elektrik kutuplanma vektörü sıfıra eşit olur. Birim hacim başına düşen elektrik dipollerinin sayısının N_0 olduğu bir ΔV hacmi için toplam dipol moment,

$$M = \sum_{k=1}^{N_0 \Delta V} d\mu_k \tag{3.59}$$

şeklinde ifade edilmektedir. Elektrik kutuplanma vektörü $\vec{P}$ ise,

$$\vec{P} = \lim_{\Delta V \to 0}\left[\frac{1}{\Delta V} M\right] = \lim_{\Delta V \to 0}\left[\frac{1}{\Delta V} \sum_{k=1}^{N_0 \Delta V} d\mu_k\right] \tag{3.60}$$

olarak tanımlanır.

Bazı dielektrik maddelerin molekülleri, yapısında daima dipol bulundurur. Bu maddelerin moleküllerinin her birinde negatif yüklerin merkezi ile pozitif yüklerin merkezleri çakışık olmayabilir. Bu durumda, dış elektrik alan olmadığı halde toplam dipol moment sıfırdan farklı olur. Bu şekildeki dipole ve dipol momente sahip olan dielektrik maddeye (N_2O ve H_20 gibi) kutuplu dielektrik madde denir.

Kutupsuz bir malzemede ise, artı ve eksi yük merkezleri çakışıktır. Böyle bir maddeye elektrik alanı uygulandığında, bu yük merkezleri birbirinden ayrılarak, yapı içerisinde dipoller oluşur. Bu tür maddelerin kutuplanmış maddeler olduğu söylenir. Elektrik alan kaldırıldığında yük merkezleri tekrar eski hallerine dönerler ve indüklenmiş dipoller ortadan kalkar.

Maddenin μ dipol momenti belirlenebilirse, o maddenin moleküler yapısı hakkında bir fikir elde edilebilir. Örneğin simetri eksenine sahip olan moleküllerin polar olmadığı söylenebilir. Çünkü, bu durumda molekülün pozitif ve negatif yüklerinin yük merkezleri ile molekülün simetri ekseni çakışmaktadır.

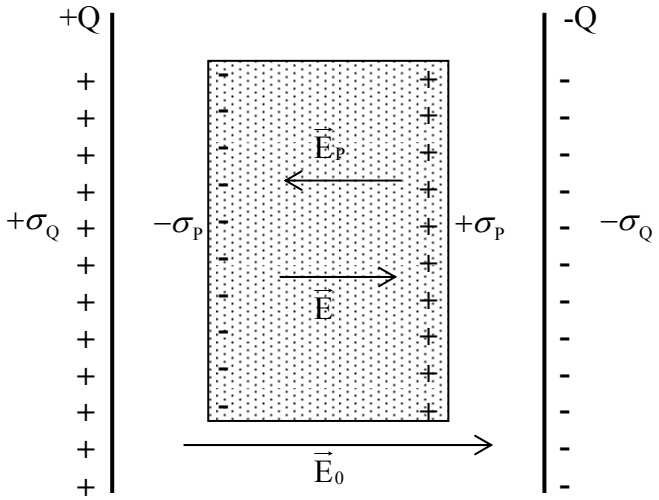
3.1.9. Dielektriklerde kutuplanma

1837 yılında Faraday tarafından ileri sürüldüğünden bu yana, dielektriklerin en önemli özelliklerinin, bir dış elektrik alanın etkisinde kalarak kutuplanabilme yeteneğine sahip oldukları kabul edilmektedir. Yani dielektrik malzemeye bir elektrik alan uygulandığında, atomik yapılarında bulunan yüklü parçacıklarının hareketi, alanın etkisiyle değişikliğe uğrar. Bu değişiklik dielektriğin kutuplanmasına yol açar.

Dielektrik malzeme bir dış elektrik alan içine konulduğu zaman, malzeme nötr atomlar veya kutupsuz moleküllerden oluşmuşsa, elektrik alanın etkisiyle pozitif ve negatif yük merkezleri birbirlerinden bir miktar uzaklaşarak küçük bir dipol momenti kazanır. Herhangi bir hacim elemanında bir yük fazlalığı yoktur. Dielektrik malzeme bütün olarak elektriksel bakımdan nötr olduğuna göre, kondansatör plakalarına değen yüzeylerde meydana gelen pozitif ve negatif kutuplanma yükleri eşit olmalıdır. Bu yüzeylerde meydana gelen yükler son derece ince bir tabaka içindedir. Bu yükler yakın atomların etkisi altındadır ve bulundukları moleküle bağlıdır. Çünkü dielektriğin yüzeylerine dokundurulan iletken bir levha ile bu yüzeylerden hiçbir yük kaldırılamaz. Madde, kutuplu moleküllerden oluşmuşsa, her bir kalıcı dipol momenti, alan yönünde yönelim almaya zorlanır. Malzeme ister kutuplu ister kutupsuz moleküllerden oluşsun, dış elektrik alan uygulandığında alan yönünde çok sayıda küçük dipoller oluşur. Bu dipoller pozitif ve negatif uçlar arasında uzun zincirler oluşturur. Pozitif yük negatif plaka üzerinde, negatif yük de pozitif plaka üzerinde bir miktar yükü nötrleştirir.

Dielektriğin plakalara değen yüzeylerinde meydana gelen kutuplanma yükleri (yüzey yükleri) nedeniyle plakalar üzerindeki serbest yüklerden ileri gelen alana ters yönde bir elektrik alan meydana gelir (Şekil 3.12). Düzgün bir $\vec{E}_0$ elektrik alan içindeki bir dielektrik malzemede, moleküllerin pozitif kısmı elektrik alan yönünde, negatif kısmı da alana zıt yönde yönelir. Elektrik alanın etkisiyle, negatif yükler malzemenin sol yüzeyinde, pozitif yükler ise sağ yüzeyinde birikmişlerdir. Malzeme bütün olarak

değerlendirildiğinde nötr olacağından, sol yüzeydeki yükler ile sağ yüzeydeki yüklerin miktarı eşit olacaktır.



Şekil 3.12 Dielektrik malzeme üzerindeki kutuplanma yük yoğunluğu ve elektrik alanların şematik gösterimi (Yücedağ, 2007)

Paralel plakalı kondansatörde dielektrik madde bulunmadığı durumdaki elektrik alan şiddeti $\vec{E}_0$ ile, kutuplanmış dielektriğin oluşturduğu elektrik alan şiddeti de $\vec{E}_P$ ile gösterilirse, kondansatörde meydana gelen bileşke alan, bunların vektörel toplamına eşit olur;

$$\vec{E} = \vec{E}_0 + \vec{E}_P \tag{3.61}$$

Malzemeyi kutuplaştıran $\vec{E}_0$ alanı ile kutuplu yüklerden kaynaklanan $\vec{E}_P$ alanı zıt yönlü olduğundan, bu ifade skaler formda;

$$E = E_0 - E_P \tag{3.62}$$

şeklindedir. $\vec{E}_P$ alanı kutuplanmaya karşı koyan alandır. Bileşke alan ise daima $\vec{E}_0$ ile aynı yöndedir. Kondansatörün plakaları üzerindeki serbest yük yoğunluğu σ_Q, dielektrik malzemenin plakalara değen yüzeylerinde meydana gelen kutuplanma yük yoğunluğu σ_P ise, etkin yük yoğunluğu $(\sigma_Q - \sigma_P)$ olur. σ_Q serbest yük yoğunluğu, E_0 elektrik alanına ve σ_P kutuplanma yük yoğunluğu ise E_P elektrik alanına,

$$E_0 = \frac{\sigma_Q}{\varepsilon_0}, \tag{3.63}$$

$$E_P = \frac{\sigma_P}{\varepsilon_0} \tag{3.64}$$

şeklinde bağlıdır. Bu nedenle dielektrik malzeme içindeki bileşke alanın değeri,

$$E = \frac{\sigma_Q}{\varepsilon_0} - \frac{\sigma_P}{\varepsilon_0} = \frac{1}{\varepsilon_0}(\sigma_Q - \sigma_P) \tag{3.65}$$

olur. Kondansatörün plakaları arasında dielektrik malzeme varken, kondansatörün kapasitesi birimsiz ε_r çarpanı kadar artar. Potansiyel fark ve elektrik alan şiddeti ise aynı çarpan kadar azalır. Bu durumda E elektrik alanı,

$$E = \frac{E_0}{\varepsilon_r} = \frac{\sigma_Q}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} \tag{3.66}$$

şeklinde yazılabilir. Bu ifade, Denklem (3.65)'te kullanıldığında,

$$\frac{\sigma_Q}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} = \frac{1}{\varepsilon_0}(\sigma_Q - \sigma_P) \tag{3.67}$$

olur. Denklem düzenlendiğinde kutuplanma yük yoğunluğu için;

$$\sigma_P = \sigma_Q\left(1 - \frac{1}{\varepsilon_r}\right) \tag{3.68}$$

ifadesi elde edilir. $E_0 > E_p$ olduğundan, dielektrik malzeme üzerindeki σ_P kutuplanma yük yoğunluğu, kondansatör plakaları üzerindeki σ_Q serbest yük yoğunluğundan küçüktür. Bu durumda, toplam yük yoğunluğu için,

$$\sigma_T = \sigma_P + \sigma_Q = \sigma_Q + \sigma_Q\left(1 - \frac{1}{\varepsilon_r}\right) = \sigma_Q(1+\chi) \tag{3.69}$$

elde edilir. Buradaki χ katsayısına, elektriksel alınganlık (suseptabilite) denir ve,

$$\chi = \frac{\Delta C}{C_0} = \frac{(C - C_0)}{C_0} \tag{3.70}$$

ile ifade edilir. σ_T ifadesi dielektrik yer değiştirme (elektrik akı yoğunluğu olarak da bilinir) şeklinde tanımlanır ve $\vec{D}$ ile gösterilir. Bu eşitlik;

$$\sigma_T = \sigma_Q(1+\chi) = \vec{D}\cdot\vec{n} \tag{3.71}$$

şeklinde de ifade edilebilir. Burada $\vec{n}$, kondansatör yüzeyine dik birim vektördür ve dielektrik malzemeden dışa doğru yönelmiştir. Dielektrik yer değiştirme ifadesi için;

$$\vec{D} = \varepsilon\vec{E} \tag{3.72}$$

olduğundan, yüzey yük yoğunluğu,

$$\sigma_Q = \varepsilon_0\vec{E}\cdot\vec{n} \tag{3.73}$$

şeklinde verilebilir.

Kutuplanma genel olarak, birim hacim başına oluşan elektrik momenti şeklinde tanımlanır. Bu genel tanımdan yola çıkarak, inceleme yöntemine göre, değişik kutuplanma ifadeleri bulunmaktadır. İlk olarak, yukarıdaki durum için, $\vec{P}$ kutuplanma vektörü, kutuplanmış dielektrik malzemenin yüzeyindeki $\chi\sigma_Q$ yük yoğunluna eşit alınmış ve:

$$\chi\sigma_Q = \vec{P}\cdot\vec{n} \tag{3.74}$$

şeklinde gösterilmiştir. (3.71), (3.73) ve (3.74) denklemleri, (3.69) eşitliğinde yerine konursa,

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \tag{3.75}$$

ifadesi elde edilir. Bununla birlikte, (3.73) denklemi, (3.74) denkleminde yerine konursa,

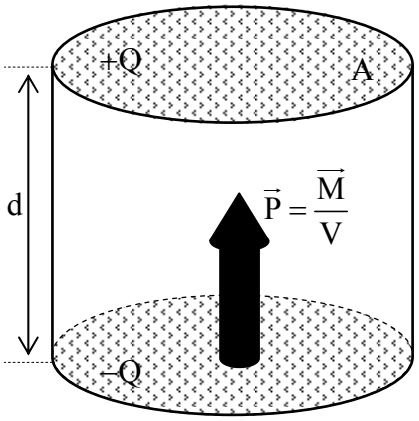
$$\vec{P} = \chi \varepsilon_0 \vec{E} \tag{3.76}$$

kutuplanma vektörü elde edilmiş olur (Hippel, 1954; Fröhlich, 1958).

İkinci olarak, kutuplanma vektörü, dielektriğin birim hacimdeki toplam elektrik dipol momenti olarak da tanımlanabileceğinden, bu vektör için,

$$\vec{P} = \frac{\vec{M}}{V} \tag{3.77}$$

yazılabilir (Chelkowski, 1980). Burada $\vec{M}$ toplam dipol momenti, V ise hacmi temsil eder. Bu vektörlerin temsili ile ilgili şematik bir çizim şekil 3.13'te gösterilmiştir.



Şekil 3.13 Paralel plakalı bir kondansatördeki dielektrikte oluşan şematik kutuplanma vektörü

Kutuplanma ile ilgili üçüncü bir tanım da;

$$\vec{P} = N_0 \langle m \rangle_E \hat{e} \tag{3.78}$$

şeklindedir. Eşitlikteki N_0, birim hücredeki dipol sayısını; $\hat{e}$, **E** alanı yönündeki birim vektörü ve $\langle m \rangle_E$ ise μ dipol momentinin dış elektrik alan yönündeki izdüşümünün ortalama değerini göstermektedir. $\langle m \rangle_E$ değeri $\vec{E}_p$ yerel alanı ile orantılıdır. Bu orantı,

$$\langle m \rangle_E \hat{e} = \alpha_p \vec{E}_p \tag{3.79}$$

şeklinde gösterilebilir. Bu tanım kullanılarak, (3.76) denklemindeki kutuplanma ifadesi,

$$\vec{P} = \chi \varepsilon_0 \vec{E} = N_0 \alpha_p \vec{E}_p \tag{3.80}$$

biçiminde olacaktır. Eşitlikteki α_p orantı katsayısı, kutuplanabilirlik olarak tanımlanır (Chelkowski, 1980) ve tüm kutuplanma mekanizmalarındaki kutuplanabilirliklerin toplamını gösterir.

Son olarak, dipol yönelimlerinden dolayı birim hacimdeki elektrik momenti veya $P(t)$ kutuplanması,

$$P(t) = P_0 e^{-k_0 t} \tag{3.81}$$

şeklinde verilir. Burada P_0, $t = 0$ anındaki yönelimli kutuplanmayı, k_0 ise dipollerin hareketleri için orantı sabitini göstermektedir. $k_0 t = 1$ olduğu durumda $P(t)$, P_0 / e değerine gelmelidir. t 'nin bu değeri, durulma değeridir ve durulma zamanı adını alır.

Bir dış elektrik alan uygulandığında, sıvı ve katı dielektrik malzemeler, küçük bir alanda sınırlı hareket edebilen moleküllere sahiptirler. Moleküllerin bu hareketi iç sürtünmeye yol açar. Bu durumda moleküller yavaş yavaş döner ve üstel olarak τ durulma zaman sabiti sonunda son yönelim durumuna yaklaşır. Elektrik alan kaldırıldığında ise sıra ters döner ve aynı zaman sabitiyle rastgele dağılım eski durumuna gelir.

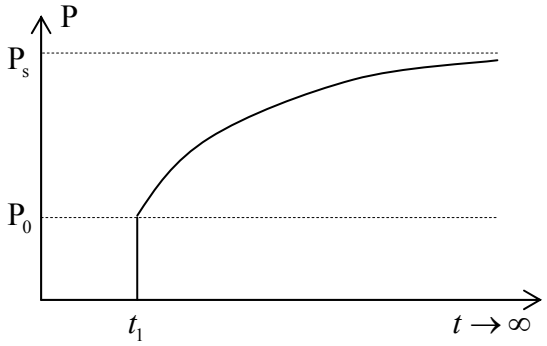
Dielektrik kaybın maksimum olduğu frekansa durulma frekansı denir. Durulma frekansı, durulma zamanının tersi ile orantılıdır $(f \propto 1/\tau)$. Durulma zamanı, elektrik alanın bir periyodunda, dipolün yönelim alması için geçen süre olarak da tanımlanabilir.

Durulma frekansı, malzemenin rezonans frekansına karşılık gelir. Elektrik alanın frekansı, durulma frekansından küçük olduğu zaman kutuplanma kolaylıkla oluşur ve elektrik alanı izler. Bu durumda dielektrik kayıplar, ihmal edilecek kadar azdır. Frekans artarak durulma bölgesine ulaşınca, kutuplanma alana uymakta zorlanır ve faz farkı artar. Bu durumda kayıplar da maksimum olur. Frekans artmaya devam ederse, kutuplanma oluşmaz ve dielektrik geçirgenlik hızla azalır. Kutuplanma olmadığı durumda, dielektrik kayıplar da olmaz.

Dielektrik kayıplar (sanal geçirgenlik) artan sıcaklıkla artar. Dielektrik malzemeye alternatif bir elektrik alan uygulandığında, malzemede önemli bir ısınma meydana gelir. Frekansın artmasıyla, açığa çıkan ısı miktarı da artar. Bunun nedeni, uygulanan elektrik alanın değişen yönüne göre yönelen dipollerin ve moleküllerin birbirlerine sürtünmeleridir. Komşu moleküllerde olan sürtünmeler nedeniyle molekül yada dipolün, elektrik alanın değişimini izlemesi gecikmeli olur. Düşük sıcaklıklarda, atomik ve elektronik kutuplanmanın görüldüğü malzemelerde sıcaklığın dielektrik geçirgenliğe etkisi küçüktür. Yüksek sıcaklıklarda ise iyon hareketinin fazla olmasından dolayı yüksektir. Dielektrik geçirgenlik, belirli bir sıcaklıkta keskin olarak artar ve düşük frekanslarda artan sıcaklıkla daha hızlı artar.

3.1.10. Dielektriklerde kutuplanma mekanizmaları

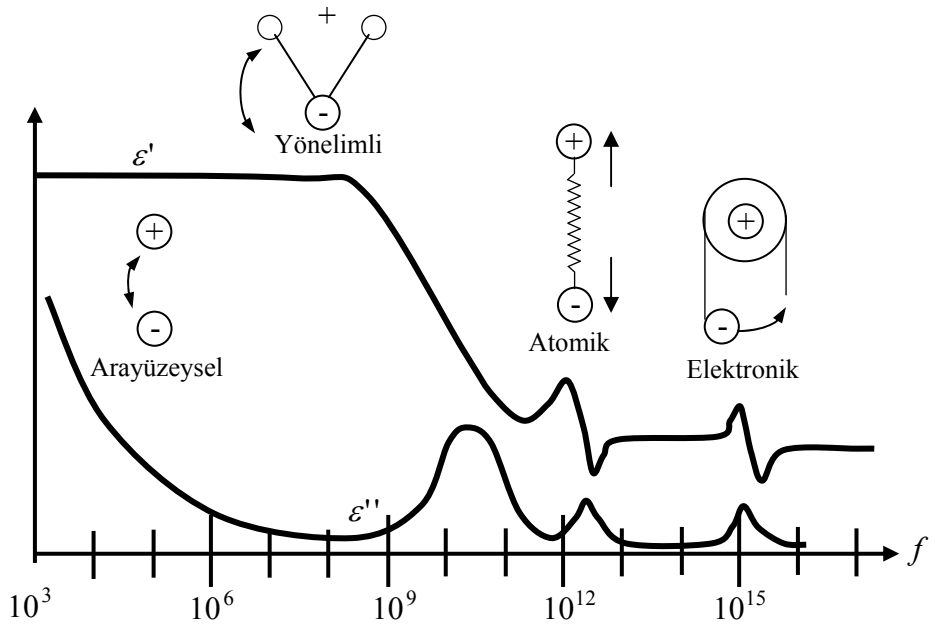
Dielektrik malzemelerdeki kutuplanmalar; elektronik, atomik, dipolar (yönelimli) ve arayüzeysel kutuplanmalardır. Kutuplanma mekanizmalarından ilk ikisi (elektronik ve atomik) diğerlerine göre daha hızlı gerçekleşir. Bu nedenle, zaman skalasına bağlı olarak, hızlı kutuplanmalar ani bir kutuplanma (P_0) olarak kabul edilebilir. Sonsuz miktardaki elektrik enerjisi bir dielektrikte (kapasitörde) depolanamayacağı için, görece uzun zamanlarda kutuplanma, $P(t \to \infty) = P_s$ şeklinde sonlu olmak zorundadır (Jonscher, 1983). $t = t_1$ anında uygulanmaya başlayan dış elektrik alanın etkisi altında bir dielektrik malzemede oluşan kutuplanma, Şekil 3.14'te verilmiştir.



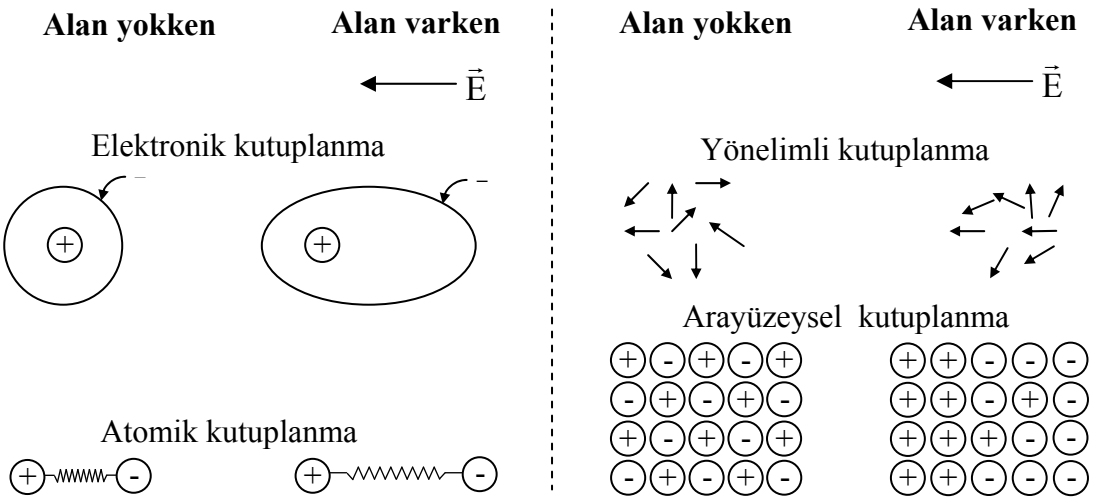
Şekil 3.14 Uygulanan elektrik alanda oluşan kutuplanmanın zamana bağlılığı (Tuncer, 2001)

Elektronik ve atomik kutuplanmalar, uygulanan elektrik alan tarafından indüklenir ve atom yada moleküllerdeki elektronların yer değişimlerinden kaynaklanır. Bu kutuplanmalar sıcaklıktan bağımsızdır. Yönelimli kutuplanma, ilk kez Debye tarafından çalışılan klasik kutuplanma tipidir ve kalıcı dipol momentlere sahip olan polar malzemelerde meydana gelir. Dipolleri yok edecek geri çağırıcı kuvvetler yoktur ama ısısal çalkantının rastgele etkisi vardır. Arayüzeysel kutuplanma ise heterojen malzemelerde meydana gelir ve bu kutuplanmanın durulma zamanı yönelimli kutuplanmanınkinden daha uzundur. Bununla birlikte, yanıltıcı ve yanlış yorumlamaya neden olabilecek şekilde, yerel bölgeler arasındaki yük taşıyıcıların hareketleri de kutuplanma oluşturur. Çok iletken çözeltilerde, bir iyon tabakası elektrotlara bitişik olur. Bu durum, sistemdeki yük dağılımlarını değiştirir ve küçük frekanslarda kapasitansta önemli bir artışla sonuçlanır. Normalde istenmeyen ve düzeltilmesi yada kaldırılması gereken bu etki, elektrot kutuplanması olarak bilinir.

Her kutuplanma mekanizması, doğasının gereği olarak, uygulanan dış elektrik alanın belirli frekans bölgelerinde kendini göstermektedir. Şekil 3.15'te bu frekans bölgeleri için bir gösterim bulunmaktadır. Şekil 3.16'da ise bu mekanizmaların, dış elektrik alanın uygulandığı ve uygulanmadığındaki durumları gösterilmektedir.



Şekil 3.15 Kutuplanma mekanizmalarının gerçekleştiği frekans bölgeleri



Şekil 3.16 Dış alan uygulandığı zamanki ve uygulanmadığı zamanki kutuplanma mekanizmaları (Hippel, 1954)

3.1.10.1. Elektronik (optik) kutuplanma

Elektronik kutuplanma, nötr bir atoma dış elektrik alan uygulandığında ortaya çıkar. Nötr bir atom, merkezde pozitif çekirdek ve çekirdeği çevreleyen elektron bulutlarından oluşur. Hem pozitif yüklerin, hem de negatif yüklerin yük merkezleri çakışıktır. Atoma dış elektrik alan uygulandığında, atomun elektronları uygulanan alana

zıt yönde yönelirler. Bu durumda atomdaki yük merkezleri artık çakışık olmaz ve indüklenmiş dipol momentler oluşur. Bu şekilde meydana gelen kutuplanma türüne, elektronik kutuplanma denir. Elektronik kutuplanma, mor ötesi ve görünür bölge frekanslarında oluşur (Hippel, 1954).

3.1.10.2. Atomik kutuplanma

Uygulanan bir elektrik alanının altında birbirine yakın olan pozitif ve negatif iyonların yayılması ile meydana gelir. Farklı tipteki molekülleri oluşturan atomlar olduğu zaman, elektron bulutları güçlü bağları olan atomlara doğru dış merkezli olarak yer değiştireceği için, bunların elektronları normal olarak küresel olmayacaktır. Böylece atomlar zıt kutuplu yükler edinirler ve bu net yüklerde etkili olan bir dış alan, atomların denge konumlarını değiştirmek için onları yönlendirir. Bu yüklü atom yada atom gruplarının birbirlerine göre yer değiştirmesi ile indüklenmiş dipol momentin ikinci bir tipi oluşur. Bu tür dipoller, atomik kutuplanma ile ilgilidir. Rezonans tipik olarak kırmızı ötesi veya ona yakın frekans bölgesinde meydana gelir (Kao, 2004).

3.1.10.3. Yönelimli (Dipolar) kutuplanma

Kutuplu bir molekülü oluşturan atomların elektronları dengesiz paylaşımı, sürekli bir dipol momente neden olur. Malzemeye dış elektrik alan uygulanmadığında bu momentler rastgele yönelirler. Hatta net kutuplanma mevcut olmayabilir. Dış elektrik alan uygulandığında, elektrik alanı doğrultusunda yönelmek için dönen dipoller, yönelimli kutuplanmayı oluşturur. Bir molekülün atomları arasındaki asimetrik yük dağılımı (su ve organik polimerlerde oluğu gibi), bir dış alan uygulanmadığında da var olan sürekli dipol momentleri oluşturur. Böyle momentler, uygulanan bir alanda onları alan doğrultusunda yönelmeye zorlayan bir tork oluştururlar. Kutuplanmanın bu tipi, radyo frekans bölgesinde önemli hale gelir.

Yönelimli kutuplanma sonuç olarak, $10^2 - 10^{10}$ Hz frekans aralığında değişen elektrik alandan kaynaklanan dipollerin yönelim almasıdır. Bu mekanizma 10^{12} Hz'den büyük frekanslara sahip moleküler titreşimler veya elektronik geçişler ile karşılaştırıldığında nispeten yavaş bir süreçtir. Yönelim için uygulanan elektrik alandan sonra yeterince zaman verilirse, sadece maksimum kutuplanma veya bir maddede gerçekleşen ve en yüksek görülebilecek dielektrik geçirgenliği elde edilecektir. Eğer

zaman verilirse gözlenen dielektrik geçirgenlik, statik dielektrik geçirgenliğidir (ε_s). Eğer elektrik alan uygulanır uygulanmaz kutuplanma ölçülür ise, anlık dielektrik geçirgenlik (ε_∞) gözlenir. Durulma zamanı bu iki uç arasında herhangi bir yerde meydana gelir.

3.1.10.4. Arayüzeysel kutuplanma (uzay yükü kutuplanması)

Yukarıdaki kutuplanma modellerinin hepsi tüm yüklerin bağlı olduğu yani iletkenliğin sıfır olduğu durumlar için tanımlanır. Özellikle kil ve polimer gibi dielektrik malzemelerde yüklerin bir kısmı maddenin içinde hareket etmekte serbesttir. Bu serbestliğin derecesi maddeye bağlıdır. Elektrolitlerde hem pozitif hem de negatif iyonlar hareket etmekte serbesttir. İyi bir yalıtıcıda bile sınırlı mesafeleri alabilen, malzeme içerisinde doğal olarak bulunan veya laboratuar ortamında katkılanan serbest yükler vardır. Bu maddeler dış elektrik alan altında kaldıkları zaman, yük taşıyıcılar hareket kazanabilir. Arayüzeysel kutuplanmayı, malzemedeki safsızlıklardan dolayı hareket yeteneği olan bu yükler oluşturur. Yeterince yüksek sıcaklıklarda bu yükler uygulanan elektrik alanda hareket edebilirler. Bu yükler, heterojen sistemlerin farklı iletkenlik ve geçirgenlik değerlerine sahip olan iki ortamı arasındaki makroskopik arayüzeylerinde birikebilir. Bu yüklerin artışının neden olduğu birikmeden dolayı elektrik alanın bozulması, maddenin tüm sığasının artmasına neden olur. Uygulanan elektrik alanın frekansına bağlı olarak bir arayüzeysel yada Maxwell-Wagner-Sillars (MWS) durulması meydana gelir. Bu durulma, iki yada daha çok fazdan oluşan heterojen sistemlerde gözlenir. Yüklerin birikmesi, dipol oluşumu veya var olan dipollerin yönelim almasıyla meydana gelen diğer kutuplanma türlerinin (atomik, elektronik, yönelimli) aksine, elektrik alanını değiştirir (Kao, 2004). Arayüzeysel kutuplanma, genelde diğer kutuplanma tiplerinden daha uzun zaman alır. Bu süreç, radyo frekans ve mikrodalga frekans bölgesinde gözlenir

Bu dört farklı kutuplanma mekanizmasının bir sonucu olarak, dielektrik geçirgenliğin düşük frekanslardaki değeri, genelde yüksek frekanslardaki değerinden daha büyük olur. Elektronik ve atomik kutuplanma durumunda, rezonanslar çoğunlukla keskindir, yani eğrilerde pikler ve çukurlar olabilmektedir. Yönelimli ve arayüzeysel kutuplanmalarda daha yayvan pikler elde edilir.

3.1.11. Dielektrik durulmayı tanımlayan ifadeler

3.1.11.1. Debye denklemi

Tek durulma zamanlı (homojen) sistemlerin dielektrik özelliklerinin frekansa bağlılığı ilk olarak Debye (1929) tarafından incelenmiştir. Bu bağlılık, moleküler veya makroskopik yöntemlerle yapılabilir. En basit türetme, kutuplanma ile elektrik alan arasındaki ilişkiyi veren makroskopik yaklaşımdır. Denklem (3.76)'da kutuplanma vektörü ile elektrik alan vektörü arasındaki ilişki, $\vec{\mathrm{P}} = \chi\varepsilon_0\vec{\mathrm{E}}$ şeklinde tanımlanmıştı. Bu ifadedeki χ değerinin de $\varepsilon - 1$ olduğu vurgulanmıştı. Bu bilgiye göre, bu denklem,

$$\mathrm{P} = \varepsilon_0(\varepsilon - 1)\mathrm{E} \tag{3.82}$$

şeklinde yazılabilir. Normalde P ve E terimleri vektör notasyonunda gösterilir, ancak yapılacak türetme için böyle bir gösterime gerek yoktur.

Statik bir E elektrik alanı göz önüne alındığında ve bu alana yeterince zaman verildiğinde, t anındaki $\mathrm{P}(t)$ kutuplanması, P_1 kendiliğinden dağılımı ile $\mathrm{P}_2(t)$ zamana bağlı dağılımının toplamıdır;

$$\mathrm{P}(t) = \mathrm{P}_1 + \mathrm{P}_2(t)\,. \tag{3.83}$$

$\mathrm{P}_2(t)$ dağılımı, sıfırdan, uygulanan alana bağlı olan bir $\mathrm{P}_2(\infty)$ maksimum değerine doğru artar. $t \to \infty$ ve $t \to 0$ sınır değeri konularak;

i) $t = 0$ $(\omega \to \infty)$ için, sonsuz frekanstaki geçirgenlik, $\varepsilon \to \varepsilon_\infty$ şeklinde olur. Böylece kutuplanma ifadesi için;

$$\mathrm{P}(0) = \mathrm{P}_1 = \varepsilon_0(\varepsilon_\infty - 1)\mathrm{E} \tag{3.84}$$

elde edilir.

ii) $t \to \infty$ $(\omega \to 0)$ için, sıfıra yakın frekanstaki geçirgenlik, $\varepsilon \to \varepsilon_s$ biçiminde olur. Bu durumdaki kutuplanma ifadesi,

$$\mathrm{P}(\infty) = \mathrm{P}_1 + \mathrm{P}_2(\infty) = \varepsilon_0(\varepsilon_s - 1)\mathrm{E} \tag{3.85}$$

şeklinde yazılabilir. (3.84) denklemindeki P_1 ifadesi, (3.85) denkleminde yerine konularak,

$$\mathrm{P}_2(\infty) = \varepsilon_0(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)\mathrm{E} \tag{3.86}$$

ifadesi yazılabilir. Bu noktada, $\mathrm{P}_2(t)$ için, zamana bağlı olan,

$$\mathrm{P}_2(t) = \mathrm{P}_2(\infty)\left[1 - \mathrm{e}^{-t/\tau}\right] \tag{3.87}$$

temel kabullenmesi yapılabilir. Buradaki τ, zaman sabitidir ve durulma zamanı adını alır. Bu ifadenin zamana göre türevi alınırsa,

$$\frac{d\,\mathrm{P}_2(t)}{dt} = \frac{\left[\mathrm{P}_2(\infty) - \mathrm{P}_2(t)\right]}{\tau} \tag{3.88}$$

elde edilir. kompleks notasyonda zamanın fonksiyonu olan elektrik alanı,

$$\mathrm{E}(t) = \mathrm{E}_0\mathrm{e}^{i\omega t} \tag{3.89}$$

şeklinde gösterilir. Denklem (3.87)'deki kabullenme yine kullanılabilir ama artık, $\mathrm{E}(t)$ zamanın fonksiyonu olduğu için, (3.86) eşitliğinden dolayı, $\mathrm{P}_2(\infty)$ değeri de zamanın fonksiyonu olacaktır. Yani $\mathrm{P}_2(\infty)$, $\mathrm{P}_2(t)$'nin zamana bağlı kısmının maksimum değeridir. Denklem (3.86), (3.87) ve (3.89) kullanılarak,

$$\frac{d\,\mathrm{P}_2(t)}{dt} = \frac{1}{\tau}\left[\varepsilon_0\mathrm{E}_0 e^{i\omega t}(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) - \mathrm{P}_2(t)\right] \tag{3.90}$$

elde edilebilir. Bu denklem çözüldüğünde,

$$\mathrm{P}_2(t) = \mathrm{C}e^{-t/\tau} + \frac{\varepsilon_0(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)\mathrm{E}(t)}{1 + i\omega\tau} \tag{3.91}$$

olur. $\mathrm{C}e^{-t/\tau}$, zamanla çabucak azalan geçici bir ifadedir ve ilgisizdir. Bu yüzden göz ardı edilebilir. Denklem (3.82) eşitliği zamana bağlı olarak,

$$\mathrm{P}(t) = \varepsilon_0(\varepsilon^* - 1)\mathrm{E}(t) \tag{3.92}$$

şeklinde yazılır. Bu ifade, Denklem (3.91) eşitliği ile karşılaştırıldığında,

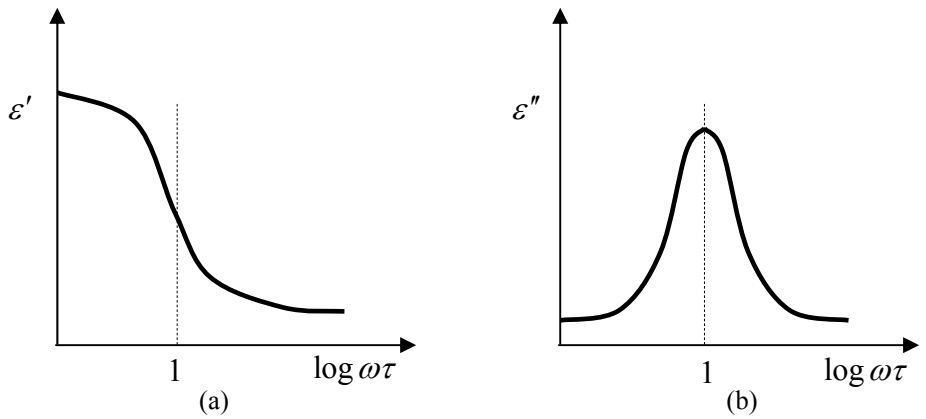
$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + i\omega\tau} \tag{3.93}$$

sonucuna ulaşılır. Bu eşitlik, $\varepsilon^* = \varepsilon' - i\varepsilon''$ kompleks notasyonu kullanılarak, reel ve sanal kısımlarına ayrılırsa;

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + \omega^2\tau^2} \tag{3.94}$$

$$\varepsilon''(\omega) = \left(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty\right) + \frac{\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \tag{3.95}$$

elde edilir. Burada $\omega \to 0$ iken ε_s ve $\omega \to \infty$ iken ε_∞ değerleri reel geçirgenliğin limit değerleridir. Denklemlerdeki τ, numuneye özgü bir niceliktir ve sıcaklığın bir fonksiyonudur. ω ise sıcaklıktan bağımsızdır. Bu bileşenlerin zamanla değişimini gösteren şematik bir çizim, Şekil 3.17'de verilmiştir. Malzemeye uygulanan frekans sonsuza gittiğinde, Denklem (3.94)'ün sağ tarafı sıfıra yaklaşır. Bu durum, Şekil 3.17 (a)'da görülmektedir. Reel geçirgenlik, çok küçük frekanslarda ($\omega\tau << 1$) statik dielektrik geçirgenlik değerine (ε_s), yüksek frekanslarda ($\omega\tau >> 1$) ise, ε_∞ değerine yaklaşır. Bu ikisi arasında kalan frekans bölgesinde düzgün geçişler olur. Şekil 3.17 (b)'de sanal geçirgenlik ile ilgili olan eğri gösterilmektedir. $\omega = 1/\tau$ değerinde, sanal terimin belirli bir maksimum verdiği görülmektedir.

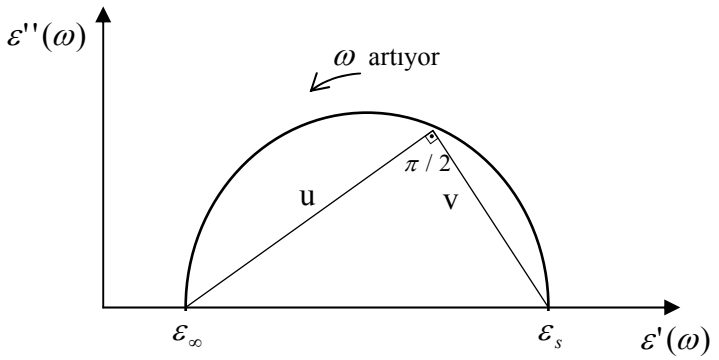


Şekil 3.17 Dielektrik geçirgenliğin (a) reel (ε') ve (b) sanal (ε'') kısımlarının frekansa bağlı değişimi

Denklem (3.94) ve (3.95)'te, ε' ve ε'' terimlerinin aynı eşitlik içinde ifade edilebilmesi için, $\omega\tau$ çarpımını yok etmek gerekir. Bunun için her iki eşitlikte yer alan $\omega\tau$ çarpımı çekilip birbirine eşitlenirse,

$$\left(\varepsilon'(\omega)-\frac{\varepsilon_s+\varepsilon_\infty}{2}\right)^2+\left(\varepsilon''(\omega)\right)^2=\left(\frac{\varepsilon_s-\varepsilon_\infty}{2}\right)^2 \tag{3.96}$$

şeklindeki bir yarım daire denklemi elde edilir. $r=(\varepsilon_s-\varepsilon_\infty)/2$ yarıçaplı olan bu yarım dairenin merkezi, $\left[(\varepsilon_s+\varepsilon_\infty)/2\,,\,0\right]$ konumundadır. Bu denklemden elde edilen kompleks çizime, Cole-Cole yarım dairesi denir (Şekil 3.18). Ark çizimi adı da verilen bu çizim, tek durulma zamanlı homojen sistemlere karşılık gelir. Ancak bu çizim, bozulmalar aracılığıyla birden fazla durulma zamanlı (heterojen) sistemlerin temsilinde de kullanışlıdır.



Şekil 3.18 Tek durulma zamanlı bir dielektrik için, Debye denkleminden elde edilen Cole-Cole yarım dairesinin şematik gösterimi (Daniel, 1967)

Bu yarım dairenin herhangi bir noktasını ε_s ve ε_∞ değerlerine birleştiren u ve v uzunlukları, şekilden de görüleceği üzere,

$$\mathrm{u} = \varepsilon' - \varepsilon_s + i\varepsilon'' = \varepsilon^* - \varepsilon_s \tag{3.97}$$

$$\mathrm{v} = \varepsilon' - \varepsilon_\infty + i\varepsilon'' = \varepsilon^* - \varepsilon_\infty \tag{3.98}$$

olacaktır. Aralarındaki açı $\pi/2$ olan bu iki uzunluk farkı,

$$|\mathrm{u} - \mathrm{v}| = \varepsilon_s - \varepsilon_\infty \tag{3.99}$$

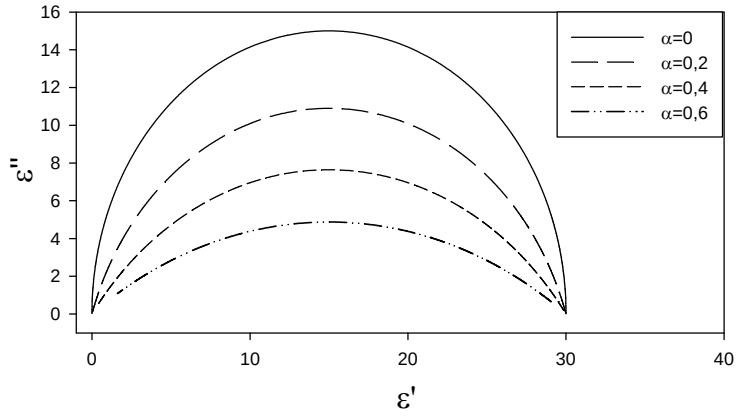
şeklinde olup, bu da yarım dairenin çapına karşılık gelir (Daniel, 1967).

3.1.11.2. Cole-Cole denklemi

Bir çok dielektrik malzeme genellikle, tek durulma zamanı yerine birden fazla durulmayı içeren dağılım eğrilerine sahiptir ve bu durum, Cole-Cole yarım dairesinde düşey eksen boyunca aşağı doğru kaymalara neden olur. Dolayısıyla reel eksenin üst kısmında yay parçaları oluşur. Cole-Cole (1941), kompleks düzlemde Debye ifadesine yay şekli veren bir α parametresi ekleyerek, denklemi,

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + (i\omega\tau)^{1-\alpha}} \tag{3.100}$$

haline getirmiştir. Bu denklem, Cole-Cole denklemi olarak bilinir. Denklemi, Debye ifadesinden farklı kılan α terimine Cole-Cole parametresi adı verilir ve değeri $0 \le \alpha < 1$ biçimindedir. Bu parametrenin yarım daireye etkisi, Şekil 3.19'da verilmiştir. α parametresinin artması, yarım daireyi, tepe noktasının reel bileşeni değişmeyecek şekilde aşağı doğru çekmektedir. (Şeklin çizimi için $\varepsilon_s = 30$, $\varepsilon_\infty = 0$ ve $\tau = 1.10^{-5}$ s şeklinde seçilmiştir. ω ise, 5 Hz ile 13 MHz arasında taranmıştır.)



Şekil 3.19 α parametresinin Cole-Cole çizimine etkisi

Durulma zamanı dağılım fonksiyonunun simetrik genişlemelerini veren Cole-Cole denklemi reel ve sanal kısımlara ayrıldığında;

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_\infty + (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)\cos\phi / A = \varepsilon_\infty + (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)\cos\phi A^{-1} \tag{3.101}$$

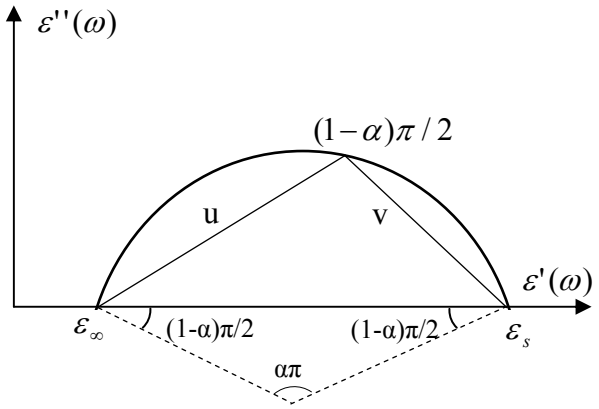
$$\varepsilon''(\omega) = (\varepsilon_\infty - \varepsilon_s)\sin\phi / A = (\varepsilon_\infty - \varepsilon_s) A^{-1}\sin\phi \tag{3.102}$$

elde edilir. İfadelerin daha kolay görülebilmesi için, bu denklemlerdeki A ve ϕ kısaltma ifadeleri ise şu şekilde belirlenmiştir (Tsangaris ve ark, 1998):

$$A = \left[1 + 2(\omega\tau)^{1-\alpha}\sin\frac{\alpha\pi}{2} + (\omega\tau)^{2(1-\alpha)}\right]^{1/2} \tag{3.103}$$

$$\phi = \arctan\left[(\omega\tau)^{1-\alpha}\cos\frac{\alpha\pi}{2} \Big/ 1 + (\omega\tau)^{1-\alpha}\sin\frac{\alpha\pi}{2}\right]. \tag{3.104}$$

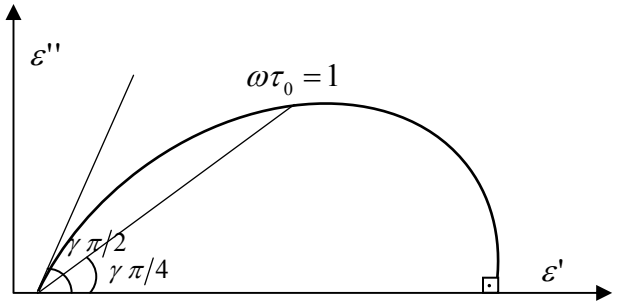
Bu durumda yarım dairenin merkezi, yatay ε' ekseninden aşağı doğru uzanır. Oluşan şekil, $\left[\tau(1 + 2Sin\pi\alpha)\right]^{-1}$ açısal frekansında ε'' maksimum iken, $\varepsilon' = (\varepsilon_s + \varepsilon_\infty)/2$ olduğundan düşey eksen etrafında simetriktir. Dairesel yay, her iki taraftan da $(1-\alpha)\pi/2$ 'lik bir dar açı ile ε' eksenini keser. Bu durumu özetleyen şematik bir gösterim, Şekil 3.20'de sunulmuştur. Cole-Cole denklemi, $\alpha = 0$ için Debye denklemine indirgenir (Daniel, 1967).



Şekil 3.20 Cole-Cole gösteriminde simetrik kayma durumunun şematik gösterimi (Daniel, 1967)

3.1.11.3. Cole-Davidson denklemi

Bir önceki başlıkta tartışılan Cole-Cole eğrileri, $(\varepsilon_s + \varepsilon_\infty)/2$ noktasından geçen eksene göre simetriktir. Ancak, genelde bir çok dielektrik malzeme için çizilen yarım dairenin, bu eksene göre simetrik olmadığı görülür. Asimetri daha çok yüksek frekanslar kısmında görülmektedir. Düşük frekanslarda dairesel olan yay, yüksek frekanslara gidildikçe düz bir çizgi boyunca yatay eksene (ε') yaklaşır. Böyle bir durumun şematik gösterimi Şekil 3.21'de verilmiştir.

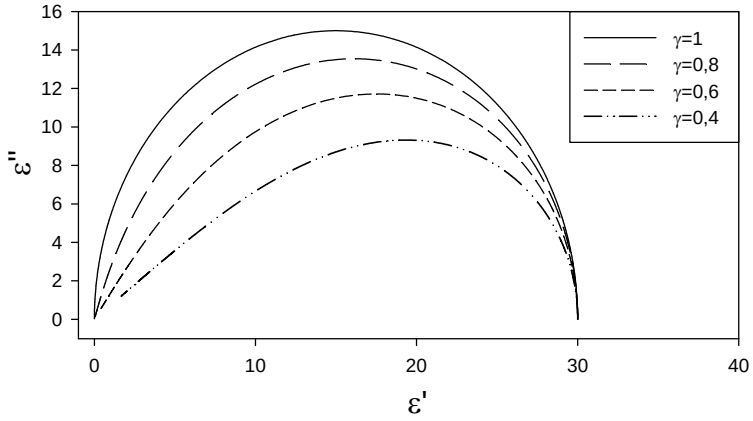


Şekil 3.21 Asimetrik kayma durumlarını açıklayan Cole-Davidson gösterimi (Daniel, 1967)

Davidson ve Cole (1950), bu tipteki bir tepkiyi veren malzemeler için, Debye ifadesine, Cole-Cole'den farklı olarak bir γ parametresi eklemişlerdir. Cole-Davidson Denklemi olarak bilinen bu ifade,

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{\left(1 + (i\omega\tau)\right)^\gamma} \tag{3.105}$$

şeklinde verilir. Buradaki γ parametresi, $0 < \gamma \leq 1$ arasında tanımlıdır. $\gamma = 1$ olması durumunda denklem, Debye denklemine indirgenir. Bu parametrenin eğri üzerindeki etkisi Şekil 3.22'de sunulmuştur. (Şeklin çizimi için $\varepsilon_s = 30$, $\varepsilon_\infty = 0$ ve $\tau = 1.10^{-5}$ s şeklinde seçilmiştir. ω ise, 5 Hz ile 13 MHz arasında taranmıştır.)



Şekil 3.22 γ parametresinin Cole-Cole çizimine etkisi

Denklem (3.105)'te verilen Cole-Davidson ifadesinin çözümünden elde edilen reel ve sanal kısımlar;

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_\infty + (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)(Cos\phi)^\gamma \, Cos(\gamma\phi) \tag{3.106}$$

$$\varepsilon''(\omega) = (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)(Cos\phi)^\gamma \, Sin(\gamma\phi) \tag{3.107}$$

şeklinde olur (Daniel, 1967). Bu denklemlerdeki ϕ, Denklem (3.104)'te tanımlanan kısaltma ifadesidir (Tsangaris ve ark, 1998). Buradan hareketle,

$$\tan\phi = \omega\tau \tag{3.108}$$

olacaktır. Bu ifade, Debye denkleminden farklı olarak, maksimum kayıpta (ε''), $\omega\tau \neq 1$ şeklinde olup,

$$\omega_{max}\tau = \tan\left(\frac{1}{\gamma+1}\frac{\pi}{2}\right) \tag{3.109}$$

ile tanımlanır. Burada ω_{max}, maksimum kaybın açısal frekansıdır (Davidson ve Cole 1950; Daniel, 1967).

3.1.11.4. Havriliak-Negami denklemi

Pratikte bir çok dielektrik malzemenin dielektrik spektrumlarında hem simetrik hem de asimetrik bozulmalar gözlenir. Cole-Cole denklemi asimetrik kayma durumlarına, Cole-Davidson denklemi de simetrik kayma durumlarına uyum sağlayamaz. Bu yüzden Havriliak ve Negami (1966), her iki denklemdeki α ve γ parametrelerini kullanarak uyum bölgesini oldukça genişletmiştir. Cole-Cole ve Cole-Davidson denklemlerinin bir kombinasyonunu ortaya koyan bu denklem;

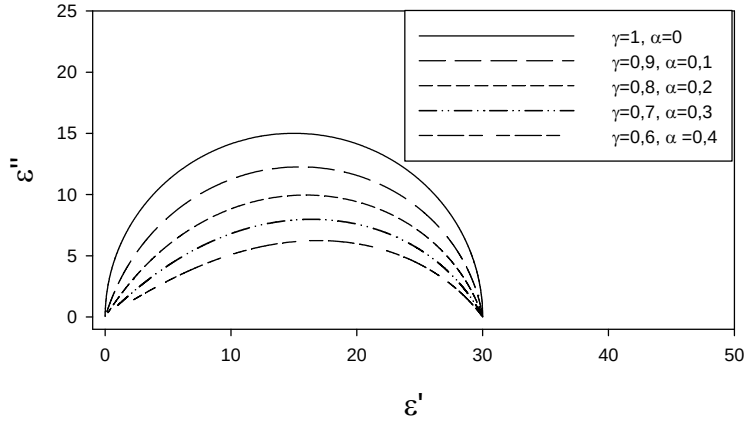
$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{\left(1 + (i\omega\tau)^{1-\alpha}\right)^\gamma} \tag{3.110}$$

şeklinde tanımlanır. Havriliak-Negami (HN) denklemi olarak bilinen bu ifade, dielektrik durulma süreçlerinde Cole-Cole veya Cole-Davidson parametrelerinin yada her ikisinin de birden etkili olup olmadığını belirler. Bir başka deyişle, $\alpha \neq 0,\ \gamma = 1$ için Cole-Cole tipi sürecin, $\alpha = 0,\ \gamma \neq 1$ için Cole-Davidson tipi sürecin, $\alpha \neq 0,\ \gamma \neq 1$ ise her iki tip sürecin de etkili olduğunu gösterir. $\alpha = 0$ ve $\gamma = 1$ için bu eşitlikler, tam bir Debye sürecine indirgenir. Şekil 3.23'te, bu parametrelerin yarım daireyi nasıl etkilediği gösterilmiştir. (Şeklin çizimi için $\varepsilon_s = 30$, $\varepsilon_\infty = 0$ ve $\tau = 1.10^{-5}$ s şeklinde seçilmiştir. ω ise, 5 Hz ile 13 MHz arasında taranmıştır). Denklem (3.110)'da tanımlanan HN denklemi, reel ve sanal kısımlarına ayrılırsa;

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_\infty + \left(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty\right)\left(Cos\gamma\phi\right) A^{-\gamma} \tag{3.111}$$

$$\varepsilon''(\omega) = \left(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty\right) Sin\left(\gamma\phi\right) A^{-\gamma} \tag{3.112}$$

ifadeleri elde edilir (Havriliak ve Negami, 1966). Yine buradaki A ve ϕ terimleri, Denklem (3.103) ve (3.104)'te tanımlandığı gibidir.



Şekil 3.23 α ve γ parametrelerinin birlikte kullanımlarının Cole-Cole çizimine etkisi

Yönelimli kutuplanma süreçlerini açıklamaya çalışan bu modeller arasındaki farkın daha iyi görülebilmesi için, Çizelge 3.1'de ayırt edici parametreler karşılaştırılmıştır.

Çizelge 3.1. Yönelimli kutuplanma sürecini açıklayan modellerin temel parametrelerinin karşılaştırması

Model	α	γ	$\omega\tau << 1$	$\omega\tau >> 1$
Debye	1	1	ω^0	ω^{-1}
Cole-Cole	$0 < \alpha \leq 1$	1	ω^0	$\omega^{-(1-\alpha)}$
Cole-Davidson	1	$0 < \gamma \leq 1$	ω^0	$\omega^{-\gamma}$
Havriliak-Negami	$0 < \alpha \leq 1$	$0 < \gamma \leq 1$	ω^{α}	$\omega^{-(1-\alpha)\gamma}$

3.1.11.5. Maxwell-Wagner-Sillars denklemi

Buraya kadar işlenen tüm modeller (Debye, CC, CD ve HN), yönelimli kutuplanma mekanizmasını açıklamaya çalışmıştır. Bu yüzden, bu modellerin hiç birisinde iletkenlik ile ilgili bir terim bulunmaz. Ancak, özellikle kil ve polimer gibi heterojen dielektrik malzemelerin yapısında bulunan, farklı iletkenlikli ve geçirgenlikli iki ortam arasındaki arayüzeylerde toplanan hareketsiz yük taşıyıcıları, uygulanan dış elektrik alanın frekansına bağlı olarak arayüzeysel kutuplanmayı oluşturur. Düşük frekans bölgesinde yönelimli kutuplanmadan daha etkili olan arayüzeysel kutuplanma

süreci için Maxwell (1892) tarafından ortaya atılıp Wagner (1914) ve Sillars (1936) tarafından geliştirilen Maxwell-Wagner-Sillars (MWS) modeli kullanışlı olmaktadır. Modelin oluşturulmasında bu sürece bir durulma zamanı (τ_{MWS}) karşılık getirebilmek için, yönelimli kutuplanmayı temsil eden modellerden herhangi biri kullanılarak, ifadeye iletkenlik ile ilgili bir terim eklenmektedir. Örneğin, yönelimli kutuplanma için en genel model olan HN denklemine, iletkenlikle ilgili ifade eklendiğinde, kompleks geçirgenlik;

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{\left(1 + \left(i\omega\tau_{\mathrm{MWS}}\right)^{1-\alpha}\right)^\gamma} - i\frac{\sigma_0}{\omega\varepsilon_0} \tag{3.113}$$

şeklinde olmaktadır. Buradaki σ_0, doğru akım (dc) iletkenliğini gösterir. Bu şekilde oluşturulan denklemdeki tüm parametreler, artık arayüzeysel kutuplanma ile ilgili olmakta ve yönelimli kutuplanma ile ilgisi kalmamaktadır. Bu denklem reel ve sanal kısımlarına ayrılırsa;

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_\infty + \left(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty\right)\cos(\gamma\phi)A^{-\gamma} \tag{3.114}$$

$$\varepsilon''(\omega) = \left(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty\right)\sin(\gamma\phi)A^{-\gamma} - \frac{\sigma_0}{\omega\varepsilon_0} \tag{3.115}$$

biçiminde olur. Buradaki A ve ϕ terimleri, Denklem (3.103) ve (3.104)'te tanımlandığı gibidir. Geçirgenliğin reel ve sanal kısımları olan bu denklemlerde σ_0 iletkenlik teriminin sadece sanal kısmı etkilediği, reel kısma herhangi bir katkısının olmadığı görülmektedir. McCrum ve ark. (1967), iletkenlik ile ilgili olan ifadeyi, Debye modeline ekleyerek denklemi çözmüş ve geçirgenliğin sanal kısmı için,

$$\varepsilon''(\omega) = \left(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty\right) + \frac{\omega\tau}{1+\omega^2\tau^2} - \frac{\sigma}{\omega\varepsilon_0} \tag{3.116}$$

ifadesini elde etmiştir. Buradan hareketle, eşitliğin sağ tarafındaki son terimin, iyonik iletkenlikle ilgili olduğundan bahsederek sanal geçirgenliğin, dipol yönelimi ile iyonik iletimden kaynaklanan sanal geçirgenliklerin toplamı olması gerektiğini,

$$\varepsilon'' = \varepsilon''_{\text{dipol kayıp}} + \varepsilon''_{\text{iyonik iletim}} \tag{3.117}$$

şeklinde göstermiştir. Bu durumda, iyonik iletimi temsil eden sanal geçirgenlik ifadesi;

$$\varepsilon''_{\text{iyon}} = \frac{\sigma_{\text{ac}}}{\omega\varepsilon_0} \tag{3.118}$$

şeklinde gösterilmektedir (Hilker ve ark., 2010).

Hareketliliği küçük olan çok sayıda yük taşıyıcısı içeren bazı dielektrik malzemeler, kompleks dielektrik geçirgenliğin reel ve sanal kısımları için anormal bir düşük frekans dağılımı gösterirler. Jonscher (1978), sanal geçirgenliğin frekansa bağlılığını

$$\varepsilon''(\omega) \propto \omega^{n-1} \tag{3.119}$$

şeklinde alarak, bu anormal dağılımı bir güç yasası ile temsil etmiştir. Burada $n < 1$'dir ve $\varepsilon''(\omega)$ sanal geçirgenliği iyonik iletimden kaynaklanır. Reel geçirgenlik de hesaba katılırsa,

$$\varepsilon'(\omega) - \varepsilon_\infty \propto \varepsilon''(\omega) \propto \omega^{n-1} \tag{3.120}$$

elde edilir. Hem reel hem sanal geçirgenliğin bu dağılımı, reel kısmın sabit kaldığı σ_0 dc iletkenlik etkisinde oluşan duruma tamamen aykırıdır. Artık etkili olan mekanizma alternatif akım iletkenliğinin varlığıdır. Jonscher'ın (1980), güç yasası (power law) dediği bu alternatif akım iletkenliği

$$\sigma(\omega) = \sigma_0 + \mathrm{A}_\sigma \omega^n \tag{3.121}$$

şeklinde ifade edilmektedir. Burada σ_0, iyonların uzun mesafeli hareketinden kaynaklanan dc iletkenlik, A_σ ise belirli bir sıcaklık için bir sabittir. Bu tip bir durumda Cole-Cole eğrisinin yüksek frekanslar kısmında yatay ekseni kestiği nokta ε_∞ ile değil,

$A_\sigma(i\omega)^{n-1} - \varepsilon_\infty$ ile tanımlanır (Jonscher, 1980). Denklem (3.119)'daki n değeri, ideal Debye dipolar süreci için 1, ideal iyonik tipteki kristal için 0 değerini alır.

Bona ve arkadaşları (2002), düşük frekanslar bölgesinde kompleks geçirgenliği, $A_\sigma(i\omega)^{n-1}/\varepsilon_0$ şeklindeki bir güç yasasıyla tanımlamışlardır. Bu tanım MWS denklemine uyarlandığında, kompleks geçirgenlik ifadesi,

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{\left(1 + \left(i\omega\tau_{\mathrm{MWS}}\right)^{1-\alpha}\right)^\gamma} - \frac{A_\sigma(i\omega)^{n-1}}{\varepsilon_0} \tag{3.122}$$

haline gelmektedir. Bu durumda bu ifadeye güç yasalı MWS denklemi demek yanlış olmayacaktır. Bu denklem, reel ve sanal kısımlarına ayrıldığında,

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_\infty A^{-\gamma} + \left(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty\right)\cos(\gamma\phi)A^{-\gamma} - \frac{A_\sigma\omega^{n-1}}{\varepsilon_0}\sin\left(\frac{n\pi}{2}\right) \tag{3.123}$$

$$\varepsilon''(\omega) = \left(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty\right)\sin(\gamma\phi)A^{-\gamma} - \frac{A_\sigma\omega^{n-1}}{\varepsilon_0}\cos\left(\frac{n\pi}{2}\right) \tag{3.124}$$

elde edilir. Buradaki A ve ϕ terimleri, Denklem (3.103) ve (3.104)'te tanımlandığı gibidir. Görüldüğü gibi, MWS ifadesinden farklı olarak iletkenlik ile ilgili olan ifade sanal geçirgenlik denkleminin yanı sıra reel geçirgenlik denklemine de girmiştir.

3.1.11.6. Daha genel bir yaklaşım

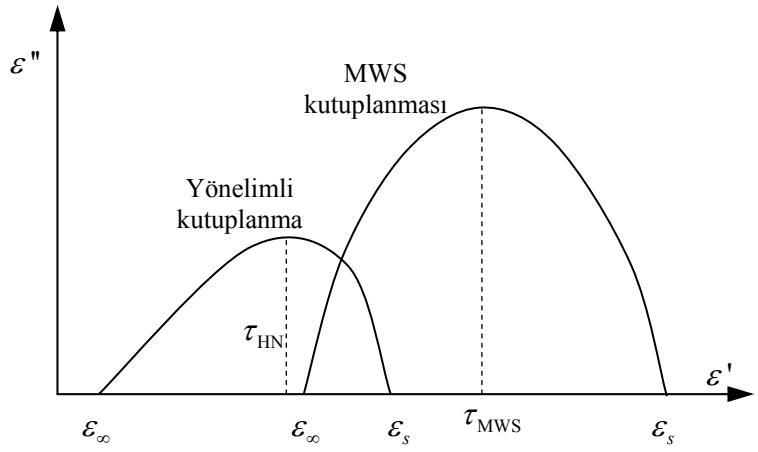
Şimdiye kadar verilen modellerden ilk dördü (Debye, CC, CD ve HN), sadece dipol yöneliminden kaynaklanan süreci ele almakta, arayüzeysel kutuplanma ile ilgili olan süreci ise açıklayamamaktadır. Diğerleri (MWS ve güç yasalı MWS) ise sadece arayüzeysel kutuplanma için kullanışlı olmaktadır. Birçok dielektrik malzemede, incelediğimiz frekans aralığında (100 Hz – 5 MHz), yönelimli ve arayüzeysel süreçlerin her ikisi de birlikte bulunur. İncelediğimiz kil türü montmorillonit minerali de bu kategoridedir. Bu tip malzemeler için, bu frekans bölgesindeki dielektrik özelliklerin araştırılmasında yönelimli ve arayüzeysel kutuplanma süreçlerini kapsayan bir ifadenin ortaya konulması uygun olmaktadır (Hedvig, 1977). Bu yüzden, toplam süreci temsil

etmek üzere, bu çalışmada, yönelimli kutuplanma için HN, arayüzeysel kutuplanma için HN denklemine uyarlanmış güç yasalı MWS modeli kullanılmıştır (Şekil 3.24). Sonuçta kompleks geçirgenlik ifadesi,

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon^*(\omega)_{\mathrm{HN}} + \varepsilon^*(\omega)_{\mathrm{MWS}} \tag{3.125}$$

$$\varepsilon^*(\omega) = \left[\varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{\left(1+(i\omega\tau)^{1-\alpha}\right)^\gamma} \right]_{\mathrm{HN}} + \left[\varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{\left(1+(i\omega\tau)^{1-\alpha}\right)^\gamma} - \frac{\mathrm{A}_\sigma (i\omega)^{n-1}}{\varepsilon_0} \right]_{\mathrm{MWS}} \tag{3.126}$$

şeklinde ifade edilmiştir. Görünürlüğü bozmamak için, denklem üzerinde gösterilmemesine rağmen, HN ve MWS için yazılan tüm parametreler birbirinden farklıdır ve sadece söz konusu denklemlere aittir (örneğin τ_{HN} ve τ_{MWS} gibi). Denklemin reel ve sanal kısımları Ek-1'de verilmiştir.



Şekil 3.24 Yönelimli ve arayüzeysel kutuplanmayı kapsayan şematik gösterim (Hedvig, 1977)

3.1.12. Elektrik modülü formalizmi

Elektrik modülü, özellikle polimer, polimer komposit ve kil mineralleri gibi dielektrik malzemelere uygulandığında çok kullanışlı olmaktadır. Bu tür malzemeler, MWS etkisi olarak bilinen arayüzeysel kutuplanma sürecini içerirler. İletkenlik katkıları ve hatta safsızlıkları içeren malzemelerde iletkenlikten dolayı ve dielektrik geçirgenliğin düşük frekanslarda bile oldukça büyük değerler alması nedeniyle, geçirgenlik modunda çizilen Cole-Cole eğrileri, süreçleri yorumlamada yetersiz kalmaktadır. Elektrik modülünün kullanımı, iletkenliğin bu bozucu etkisini kaldırarak iyonik iletim tarafından

gizlenen moleküler durulmaları göz önüne serer (Hilker ve ark., 2010; Tsangaris ve ark., 1998). Fiziksel olarak elektrik modülü, elektrik yer değiştirmenin sabit kaldığı durumda, malzeme içerisindeki elektrik alanın durulmasına karşılık gelir (Molak ve ark., 2005; Costa ve ark., 2010).

Geçirgenlik değerlerinin gözlenen frekans dağılımları iletkenliğin yanı sıra, numune boyutu ve/veya elektrot yüzeyinin yapısı gibi faktörlerce belirlenen elektrot kutuplanmasından kaynaklanır. Elektrik modülünün kullanılması, bu etkiyi de en aza indirmektedir (McCrum ve ark., 1967).

Elektrik modülü formalizmi ilk kez McCrum ve ark. (1967) tarafından, kompleks geçirgenliğin tersi alınarak ortaya atılmıştır, ancak deneysel verilere uygulanmamıştır. Modül deneysel olarak ilk defa, Macedo ve ark. (1972) ile Moynihan ve ark. (1973) tarafından camsı iyonik iletkenlerin araştırılmasında kullanılmıştır. Tanıma göre, elektrik modülü;

$$\mathrm{M}^*(\omega) = \frac{1}{\varepsilon^*(\omega)} = \frac{1}{\varepsilon'(\omega) - i\varepsilon''(\omega)} \tag{3.127}$$

şeklinde verilir. Bu ifadenin reel ve sanal kısımları ise,

$$\mathrm{M}' = \frac{\varepsilon'}{\varepsilon'^2 + \varepsilon''^2}, \quad \mathrm{M}'' = \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'^2 + \varepsilon''^2} \tag{3.128}$$

ile gösterilir (McCrum ve ark., 1967). Bu formalizmin faydalarından biri, paydasında ε' teriminin karesi olduğu için, sanal geçirgenliği bastırma eğilimini en aza indirgemesidir (Starkweather ve Avakian, 1992).

Diğer taraftan, Hairetdinov ve arkadaşları (1996), Debye tipi davranış gösteren ve düşük oranda alkali içeren kuartz camı numunelerinde elektrik modülünü kullandıklarında, deneysel verilere uyumun sağlanamadığını ve Debye modelindeki gibi tek durulma zamanlı malzemeler için elektrik modülünün kullanılmaması gerektiğini belirtmişlerdir. Ancak, bu çalışmada incelenecek olan numuneler heterojen olduğundan (yani arayüzeysel kutuplanma, ve buna bağlı olarak iletkenlik ifadesi ortaya çıkacağından), çalışmadaki teorik hesaplamalarda elektrik modülü formalizmi kullanılmıştır. Bu amaçla, geçirgenlik modundaki genel ifade olan Denklem (3.125), elektrik modülünde,

$$M^*(\omega) = \frac{1}{\varepsilon^*(\omega)} = \frac{1}{\left[\varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{\left(1+(i\omega\tau)^{1-\alpha}\right)^\gamma}\right]_{HN} + \left[\varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{\left(1+(i\omega\tau)^{1-\alpha}\right)^\gamma} - \frac{A_\sigma (i\omega)^{n-1}}{\varepsilon_0}\right]_{MWS}} \quad (3.129)$$

şeklinde gösterilebilir. Bu denklemin reel ve sanal kısımları, ilk defa bu çalışmada elde edilmiş olup, Ek-1'de verilmiştir.

3.1.13. Arrhenius denklemi ve aktivasyon enerjisi

Genel anlamda aktivasyon enerjisi, her hangi bir olayın (fiziksel yada kimyasal) gerçekleşebilmesi için verilmesi gereken enerji şeklinde tanımlanır. Başka bir ifadeyle, aktivasyon enerjisi (E_A), bir reaksiyonun hız süreci üzerine sıcaklık etkisinin bir ölçüdür. Bu hız süreci üzerine sıcaklığın etkisi genellikle,

$$s = Ae^{(-E_A/kT)} \quad (3.130)$$

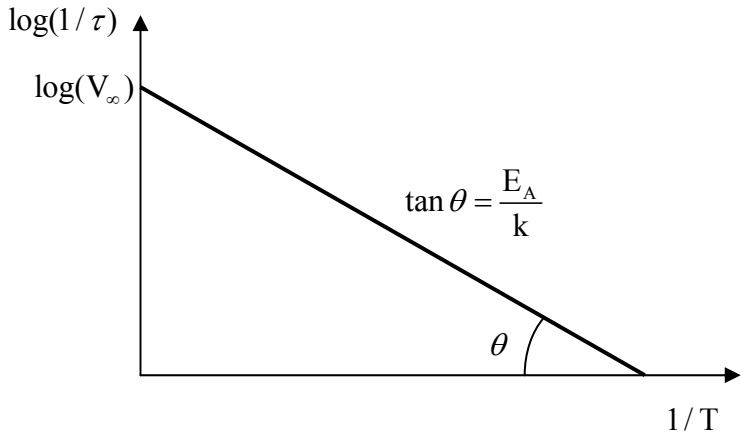
Arrhenius ifadesi ile tanımlanır. Burada k Boltzmann sabiti ($1{,}38x10^{-23}$ J/K), T mutlak sıcaklık, *s* reaksiyon hızının sıcaklıkla değişimi, A yüksek sıcaklıktaki reaksiyon hızı şeklinde tanımlanmaktadır. Bu ifade genel bir tanım olup, sıcaklıkla değişen birçok olayda, o olayın gerçekleşebilmesi için gereken aktivasyon enerjisini bulmak amacıyla kullanılabilir. Aktivasyon enerjisi malzemelerin özellikleri ile ilgilidir ve katmanları arasında su tutan maddelerin yanı sıra, cam, yarı iletken, biyo-molekül gibi diğer malzemelerin de özelliklerinin tanımlanması için sıklıkla kullanılır. Bu çalışmada, hem yönelimli hem arayüzeysel kutuplanma süreçlerinde sıcaklığa bağlı olarak değişen τ durulma zamanları kullanılarak, her iki süreç için de ayrı ayrı aktivasyon enerjileri bulunmuştur. Bu nedenle, durulma zamanları için Arrhenius denklemi;

$$\frac{1}{\tau} = V_\infty e^{(-E_A/kT)} \quad (3.131)$$

şeklinde kullanılmıştır. Burada V_∞, yüksek sıcaklıktaki durulma hızıdır. Bu denklemin her iki tarafının logaritması alındığında;

$$\log\frac{1}{\tau} = \log V_{\infty} - \frac{E_A}{kT} \tag{3.132}$$

elde edilir. Bu ifadedeki $\log(1/\tau)$'nun $1/T$'ye göre grafiği Şekil 3.25'teki gibi çizildiğinde, grafiğin eğimi E_A/k'yı verir. Dolayısıyla bu grafikten E_A aktivasyon enerjisi ve V_{∞} bulunabilir.



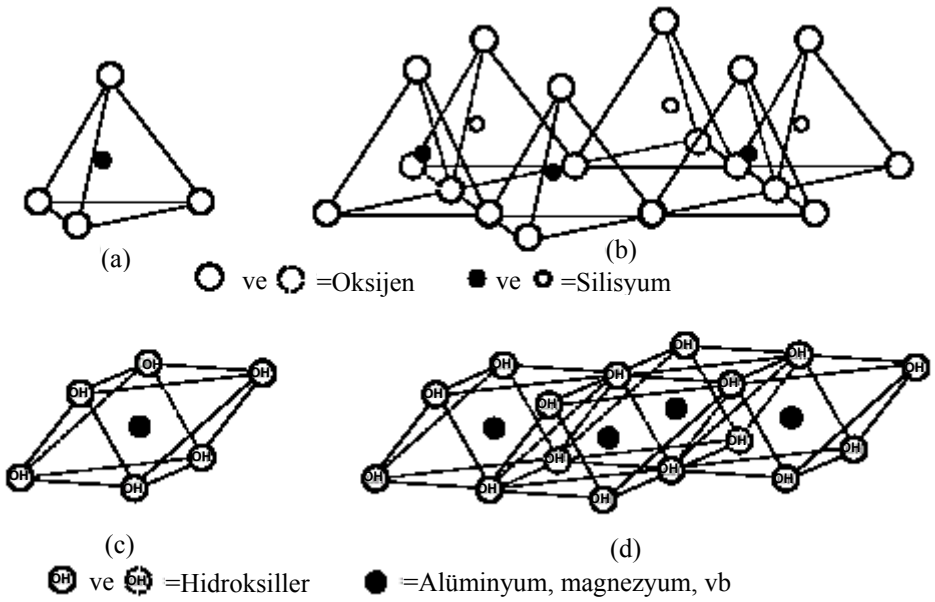
Şekil 3.25 Aktivasyon enerjisinin elde edilmesi için kullanılan Arrhenius grafiği

3. 2. Kil Mineralleri ve Montmorillonit Mineralinin Yapısı

3.2.1. Killer ve kil mineralleri

Kil mineralleri, kayaç ve toprakların çok ince fonksiyonunu oluşturur (Karakaya, 2006). Killer ince taneli ($0,2-2\mu$m) minerallerden doğal olarak oluşan malzemelerdir. Killer, büyüklük ve mineralojileri bakımından ince taneli topraktan farklıdır. İnce taneli bir toprak çeşidi olan alüvyonlar, kil minerali içermezler. Killer, fırınlandığında yada kurutulduğunda sertleşen fillosilikat minerallerinin bir alt tipi olan kil minerallerinden oluşur ve mineral yapılarında tutulan ve farklı miktarlarda olabilen su içerir. Kil mineralleri, genellikle silikat içeren kayaçların, düşük konsantrasyonlu karbonik asitler ve diğer derişik çözücüler tarafından kademeli bir şekilde kimyasal olarak ayrışmasıyla, veya bu ayrışmaya ilave olarak, hidrotermal aktiviteyle çok uzun zamanlarda oluşur.

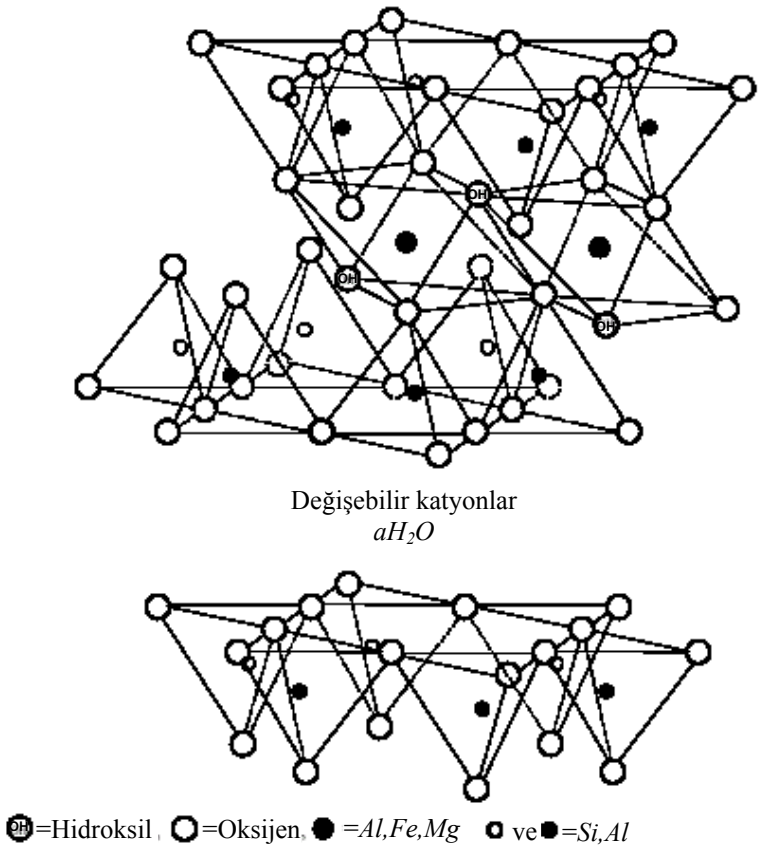
Kil mineralleri sulu filosilikat ailesine ait olup T_2O_5 (T=Si, Al, Fe^{+3}, …) bileşiminde iki boyutlu sürekli tetrahedral tabakaları içerirler. Tetrahedronlar (Şekil 3.26.a) paylaşılmayan köşeleri tabaka dışına yönelmek üzere üç köşesini kendi aralarında paylaşarak tetrahedral tabakaları (Şekil 3.26.b) oluştururlar. Tetrahedral tabakalar birim yapı içerisinde oktahedronların (Şekil 3.26.c) oluşturduğu oktahedral tabakalara (Şekil 3.26.d) ve katyonlara bağlıdırlar (Şekil 3.27) (Bailey, 1980a).



Şekil 3.26. a) Tetrahedron, b) Tetrahedral Tabaka, c) Oktahedron, d) Oktahedral Tabaka

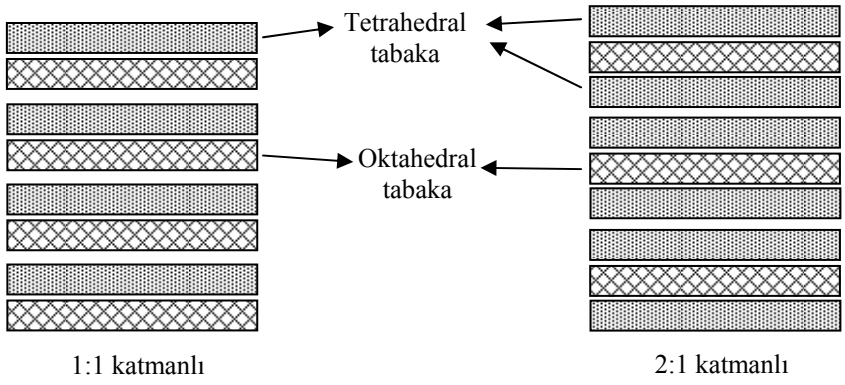
Toprağın çok önemli bir kısmını oluşturan kil mineralleri gözenekli yapıları nedeniyle su ve suda çözünen bir takım tuzları bünyelerinde depolayarak bitkilerin beslenmesini sağlarlar. Bitkilerin topraktan aldıkları Ca, Na, Mg, K vb. besin elementleri genellikle kil minerallerinin katmanları arasında bulunurlar. Killerin adsorpladığı su, katmanlar arasına genellikle tabakalı yapıda yerleştiğinden suyun kilden ayrılması güçleşir ve toprağın nemliliği uzun süre korunabilir.

Killerin adsorplama özelliklerinden dolayı çok değişik kullanım alanları bulunmaktadır. Kağıt ve kozmetik sanayisinde kullanılmasının yanı sıra, gıda maddelerinde renk ve koku giderme, kimyasal reaksiyonlarda katalizör etkisi, seramik endüstrisinde kullanılan süspansiyonların akıcılık özelliğinin ayarlanması, ilaç sanayisinde taşıyıcı madde olarak kullanılmaları bunlardan bazılarıdır (Anonymous-1, 2010).



Şekil 3.27 Tetrahedral ve oktahedral tabakalardan oluşan 2:1 katmanı (simektit)

Filosilikat yapıların temel özelliği, tetrahedronların taban oksijenlerinin hegzagonal bir örgü oluşturmasıdır. Tetrahedronun dördüncü köşesindeki tepe oksijeni, tetrahedral tabakaya dik doğrultuda yönelmiş olup oktahedronların kenarlarının paylaşılmasıyla oluşan oktahedral tabakanın bir elemanını meydana getirir (Anonymous-2, 2010). Filosilikatlar, katman tipine (2:1 veya 1:1; Şekil 3.28'deki gibi), katman yüküne ve katmanlar arasında neyin bulunduğuna göre sınıflandırılabilirler. Böyle bir sınıflandırma Çizelge 3.2'de verilmiştir.



Şekil 3.28 1:1 ve 2:1 katman yapısının şematik gösterimi

Çizelge 3.2 Kil mineralleri ve ilgili filosilikatların sınıflandırılması

Yapı Tipi	Grup	Yük
1:1 katmanı	Serpantin-Kaolinit	~0
2:1 katmanı	Talk-pirofillit	~0
	Simektit	0,2 – 0,6
	Vermikülit	0,6 – 0,9
	Mika	1,0
	Kırılgan mika	2,0
	Klorit	Değişken
2:1 Papyon Yapısı	Sepiyolit-paligorskit	Değişken

3.2.2. Montmorillonit mineralinin yapısı

Montmorillonit türü kil mineralleri, 2:1 katman yapısına sahip simektit grubunun bir üyesidir. Genel olarak simektitler, $O_{10}(OH)_2$ formül birim başına 0,2 – 0,6 katman yüklü olup, katmanlar arasına su veya diğer maddeleri alarak şişebilirler. Katmanlar arası katyonlar, çözeltiler yardımıyla bu maddelerle kolayca yer değiştirebilirler.

Simektitlerin suda şişmeleri, katmanlar arası katyona su bağlanmasından (hidratasyon) ileri gelir ve bir, iki veya üç su tabakasının yapıya girmesi şeklinde düşünülür. Şişme veya genişleme çoğunlukla [001] veya z doğrultusu boyuncadır ve kristallerin a veya b boyutunda bir değişiklik yoktur. Şişme miktarı esas olarak, şu üç faktörle kontrol edilir: 1- su molekülünün polar doğası, 2- bitişik silikat tabakaları üzerindeki yükün yeri ve değeri, 3- Katmanlararası boşluklardaki katyonların boyutu ve yükü (Karakaya, 2006). Katmanlararası katyon Na ise bir, iki veya üç katmanlı su molekülleri ile su bağlanması oluşur ve bağıl nemin aşırı derecede artması halinde, 2:1 katmanları birbirlerinden ayrılarak dağılırlar. Katmanlararası katyon Ca ise, katmanlararası uzaklığın 9Å olduğu üç-su katmanlıya kadar şişme sınırlı olmaktadır. İki su katmanlı hidratasyon oldukça geniş bağıl nem bölgesinde kararlıdır. Tek su katmanlı hidratasyona düşük bağıl nemde rastlanır.

Çoğu montmorillonit, volkanik malzemelerin değişimiyle oldukça uzun zamanda oluşur. Montmorillonitin tetrahedral tabakalarında bazı silisyum atomlarının yerinde alüminyum atomları bulunur (Weaver ve Pollard, 1973). Yüksek HCO_3 konsantrasyonu ve geçen zamanın uzunluğu, montmorillonitin oluşumuna yardımcı olur.

Montmorillonit, 1847'de Fransa'da bulunan Limoges'in kuzeybatısındaki Montmorillon kasabasında keşfedilmesinin ardından bu ismi almıştır. Montmorillonit türü kil minerallerinin en belirgin fiziksel özelikleri şöyledir:

- Rengi genelde beyaz, sarı, pembe yada mavidir ve opağa yakındır.
- Kristal sistemi monokliniktir.
- Sertliği 1-2 arasıdır.
- Özgül ağırlığı 1,7-2 gr/cm^3 tür.

Montmorillonit, petrol sondaj endüstrisinde sondaj çamurunun bir parçası olarak matkap ucunun soğuk kalması için, tarımda eğimli çorak arazilerin suyu tutması için, döküm endüstrisinde döküm kumunun bir parçası olarak hava ve gazlardan nemin uzaklaştırılması için yaygın bir şekilde kullanılır. Diğer bazı killere benzer olarak, montmorillonitler de suyla şişerler. Katmanlararası boşluktaki katyonun türüne göre şişme miktarında da farklılıklar olur. Örneğin Na-montmorillonit minerali, suyla şişerek orijinal hacminin on katına kadar genişleyebilir. Na-montmorillonitin bu özelliği, patlayıcı kullanılamayan madenlerde, kayaları parçalamak için çok kullanışlı olmaktadır. Na-montmorillonit su içeriği ne olursa olsun iki değerlikli katyonlarla doygunlaştırılmış killerden daha yüksek iletkenliğe sahiptir. Muhtemelen yapısındaki molekül düzenlenimi çok sayıda dolgu molekülü ve/veya protonu transfer etmek için uygun olabilir. Bu tür su molekülleri önemli rol oynarlar. Bu moleküller protonların hareketleri için etkili geçiş durumu sağlayabilir veya yüzeyde devamlı bir su filmi oluşturabilirler.

Yüksek oranda su tutma yeteneğinden dolayı, su kuyusu ve barajlarda dolgu malzemesi olarak da kullanılır. Kağıt, tekstil ve gıda endüstrilerinde, genellikle kirliliği rafine etmek için kullanılır. Montmorillonitlerin kullanıldığı bir diğer sektör ise ilaç endüstrisidir. Bu tipteki kil mineralleri asidik sıvıları absorpladığı için mide ve bağırsaklarda düzenleyici olarak kullanılır. Ayrıca, sivilce ve akne tedavisinde, cilt ve saç yağının dengelenmesinde, arı, örümcek ve yılan gibi zehirli hayvan sokmalarında, bebek bezlerinde yüzyıllardır kullanılmaktadır. Bu kadar yaygın olarak kullanılmasın en önemli nedeni, montmorillonit kili parçacıklarının negatif elektrik yükü taşıyor olmasıdır. Halbuki, safsızlıklar veya toksinler pozitif yük taşırlar. Bu yüzden montmorillonit, safsızlıkları kolayca adsorplar. Örneğin, montmorillonit kili cilde sürüldüğünde, ciltteki pozitif yüklü toksinler, negatif yüklü kil mineraline doğru çekilir (Anonymous-3, 2010; Young, 2010).

3. 3. Deneysel Hazırlık Süreci

3.3.1. Numunelerin temini ve parçacık büyüklüğüne göre sınıflandırılması

Çalışmada dielektrik özellikleri incelenecek numuneler, Çelik ve ark. (1999) tarafından Ordu ili Ulubey ve Ünye bölgelerinden temin edilen ve mineralojik özellikleri tespit edilen iki farklı montmorillonit türü kil mineralidir. Numunelerin öğütüldükten sonraki renkleri sırasıyla, sarı ve pembedir. Bu yüzden numuneler, Ordu Ulubey Sarı (OUS) ve Ordu Ünye Pembe (OÜP) şeklinde isimlendirilmiştir.

Kayaç şeklinde temin edilen numunelerden, yaklaşık 50 gram alınarak 4 saat süreyle seramik el havanında öğütülmüştür. Ardından, Analysensieb Retsch 5667 marka eleme aleti ve gözenek büyüklükleri 50, 63, 125 ve 250 mikron olan Cr-Ni elekler kullanılarak her bir numune, 15 dakika süre ile elekten geçirilmiştir. Böylece, iki numune için de, parçacık büyüklüğü 50 mikron altı, 50-63 mikron arası, 63-125 mikron arası ve 125-250 mikron arası olan (250 mikron üstü olan numuneler kullanılmamıştır) dörder numune takımı elde edilmiştir.

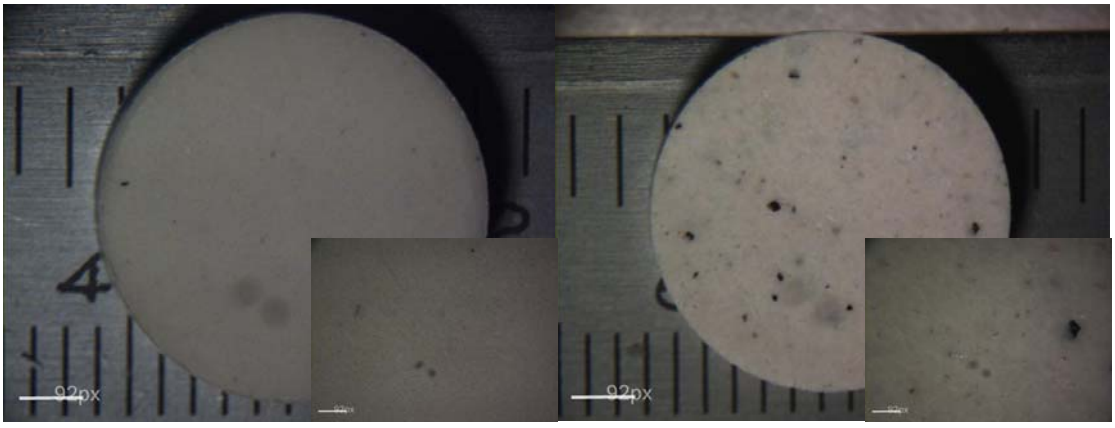
3.3.2. Pelet kalıbının hazırlanışı ve numunelerin preslenmesi

Numuneleri preslemek için Böhler Special 2080 marka darbe çeliğinden yapılan kalıp kullanılmıştır. Tornada hazırlanan kalıp, sertleştirme işleminden sonra taşlanarak parlatılmıştır. Pelet kalıbı, delik çapı 11,80 mm olacak şekilde hazırlanmıştır (Resim 3.1).



Resim 3.1 Numunelerin preslenmesi için kullanılan çelik kalıp

İki farklı miktarda montmorillonit içeren ve dört farklı parçacık büyüklüğüne sahip olan toplam sekiz numune, 500 mg'lık kütleler halinde (Radwag XA60/220/X marka hassas terazi ile tartılmıştır), Resim 3.1'deki kalıp içerisine konularak ve hidrolik pres kullanılarak, 2,5 ton, 5 ton ve 7,5 ton basınçlarında anlık olarak preslenmiştir. Bu sayede çapı 11,80 mm, kalınlıkları ise 1,67 mm ile 2,44 mm arasında olan 24 numune elde edilmiştir. Resim 3.2'de, OUS ve OÜP gruplarını temsil etmek üzere, peletlerin Ceti marka trinoküler mikroskop altındaki birer CCD kamera ile alınmış örnek görüntüleri verilmiştir.



(a) (b)

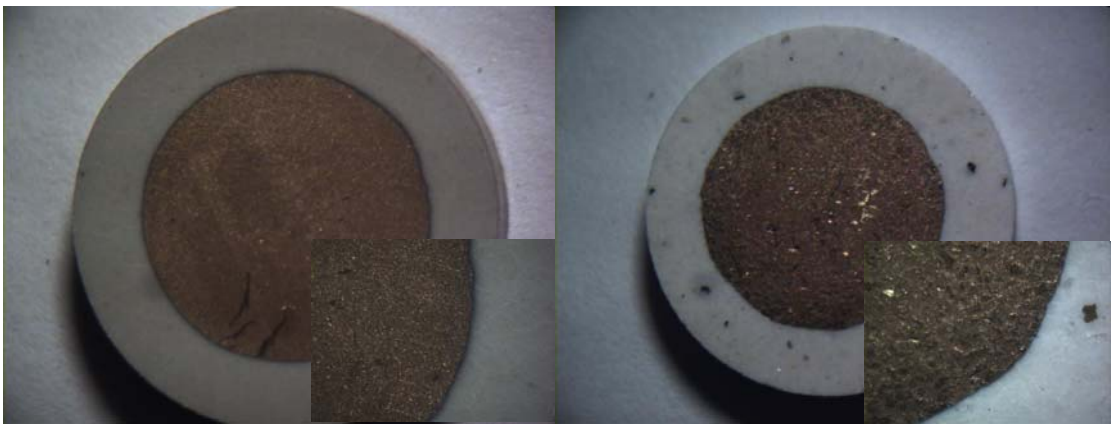
Resim 3.2 2,5 ton basınçla preslenmiş a) OUS 50-63 mikron numunesi, b) OÜP 125-250 mikron numunesi. Küçük resimler, ilgili numune yüzeyinin 120 kez büyütülmüş görüntüleridir

3.3.3. Pelet yüzeylerinin kaplanması

Numunelerin altınla kaplanması işlemi için, Resim 3.3'te görülen, 11,82 mm ve 7,60 mm çaplı deliklere sahip olan, lazerle kesilmiş paslanmaz sac maske kullanılmıştır. Bu maske kullanılarak, içerik, parçacık büyüklüğü ve basınca göre sınıflandırılmış pelet halindeki 24 numunenin her iki yüzeyi, Nanovak marka NVTS21-01 model ince film kaplama ünitesinde ısısal buharlaştırma yöntemiyle, yaklaşık 1200 Å kalınlığında saf altınla kaplanmıştır. Bu sayede, arasında dielektrik malzeme bulunan paralel plakalı kondansatörler elde edilmiştir. Resim 3.4'te, OUS ve OÜP numunelerinden altınla kaplanmış örnek birer pelet görüntüsü verilmiştir.



Resim 3.3 Numune yüzeyinin altınla kaplanmasında kullanılan maske



Resim 3.4 2,5 ton basınçla preslenmiş ve altınla kaplanmış a) OUS 50-63 mikron numunesi, b) OÜP 125-250 mikron numunesi. Küçük resimler, ilgili numune yüzeyinin 120 kez büyütülmüş görüntüleridir

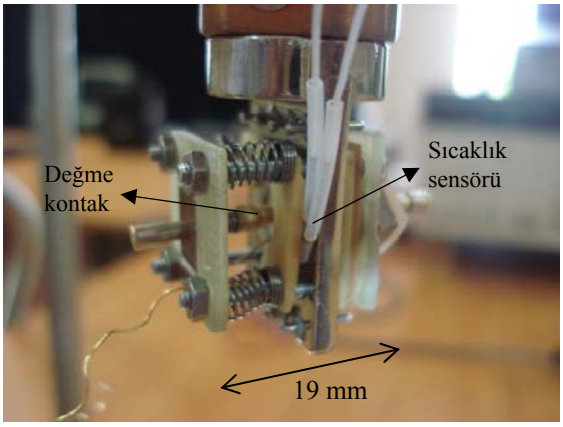
3.3.4. Kriyostat sisteminin ve numune tutucunun modifikasyonu

Numunelerin sıcaklık değişimini sağlamak amacıyla, Advanced Research Systems (ARS) marka DE-204 model kapalı çevrim helyum kriyostatı ve bu sıcaklığın kontrolü için LakeShore 331s sıcaklık kontrolcüsü kullanılmıştır. Dielektrik verilerin alınmasında kullanılacak analizörün fikstür kablo uzunluğunun 1 m ile sınırlı olması nedeniyle, kriyostat pencerelerinden biri, tasarımı SolidWorks programında yapılan yeni bir pencere ile değiştirilmiştir. Pencere üzerine, yüksek vakumlar için üretilmiş, ithal elektrik feedthrough, lazer kaynakla montajlanmıştır (Resim 3.5).



Resim 3.5 Elektrik feedthrough montajlanmış yeni pencere

Yapılan diğer bir modifikasyon da numune tutucu üzerinde olmuştur. Numune yüzeylerindeki altın tabakadan kontak almak için, numune tutucu, altın uçlu değme kontak içerecek şekilde yeniden tasarlanmıştır (Resim 3.6). Kriyostat içinde, numune tutucu ile elektrik feedthrough arasında sinyal iletimi için 300 mikron kalınlığında haddelenmiş kobalt alaşımlı altın tel kullanılmıştır.

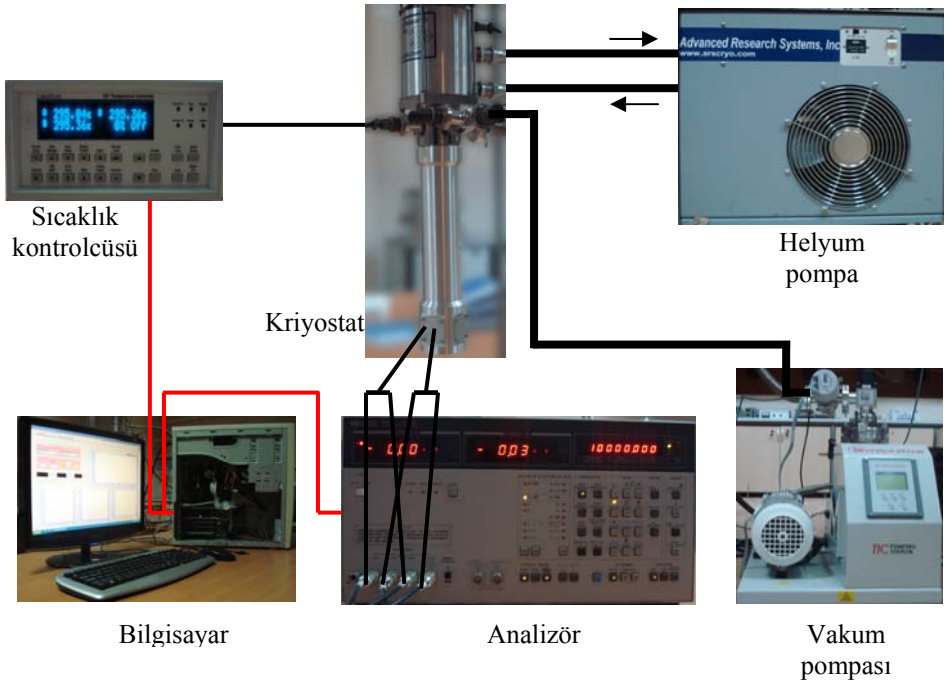


Resim 3.6 Sıcaklık sensörü takılmış numune tutucu

3.3.5. Ölçüm sistemlerinin otomasyonu

Numunelerin dielektrik özelliklerinin ölçülmesinde, Selçuk Üniversitesi Fen Fakültesi Fizik Bölümü Araştırma Laboratuarlarında bulunan, HP 4192A LF Empedans Analizörü, Advanced Research Systems marka DE-204 model kapalı çevrim helyum kriyostatı ve LakeShore 331s sıcaklık kontrolcüsünden oluşan ekipman kullanılmıştır. Analizör ve sıcaklık kontrolcüsünün bilgisayarla olan veri iletişimini sağlamak için,

IEEE 488 GPIB arayüzüne sahip Ketihley veri iletişim kartı kullanılmıştır. Tüm ekipmanın birbirleri ile olan bağlantıları Şekil 3.29'daki gibidir. Bilgisayarın analizörle ve sıcaklık kontrolcüsüyle olan otomasyonu, ön panel ve blok diyagram görüntüleri Ek-2'de verilen LabView ve National Instrument VISA uygulamalarıyla programlanmıştır.



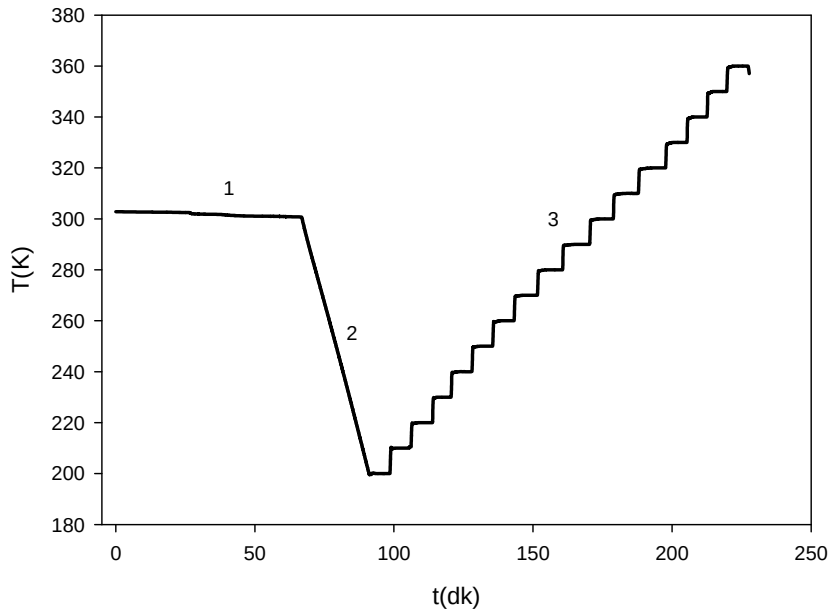
Şekil 3.29 Ölçüm ekipmanının şeması

3.3.6. Ölçüm şartları ve aşamaları

Her numunenin sıcaklığı düşürülmeden önce, ilk olarak vakumlanmadığı, ikinci olarak rotary pompayla vakumlandığı ($\sim 2{,}8.10^{0}$ torr) ve son olarak turbo moleküler pompayla vakumlandığı ($\sim 1{,}9.10^{-3}$ torr) durumlardaki ön ölçümleri alınmıştır.

Analizörde okunan kondüktans ve suseptans değerlerinin düşük sıcaklık ve frekanslarda çok küçülmesi nedeniyle, 230 K altındaki sıcaklıklarda güvenilir, düzgün veriler alınamamıştır. Diğer taraftan, numunelerin katmanlar arasındaki bağlı suyun yapıdan uzaklaşmasını önlemek için 360 K üstündeki sıcaklıklara da çıkılmamıştır. Bu iki nedene bağlı olarak ölçümler, 230 K – 360 K sıcaklık aralığında, 10 K'lik adımlarla ve $\beta = dT / dt = \dot{T} = 3$ K/dk ısıtma hızıyla, on dört sıcaklıkta alınmıştır.

Dielektrik ölçümler, 5 Hz – 13 MHz frekans aralığına sahip HP 4192A LF Empedans Analizörü kullanılarak alınmıştır. Bu frekans aralığını örneklemek üzere, 200 adet frekanstan oluşan bir frekans veri seti tanımlanmıştır. Ancak düşük frekanslarda (f < 100 Hz) dielektrik tepkinin büyük çalkantı göstermesi ve yüksek frekanslarda (f > 5 MHz) kablo empedansının baskın hale gelmesi nedeniyle değerlendirmeler, 100 Hz – 5 MHz frekans aralığında yapılmıştır. Ölçümler, her sıcaklık noktası için yaklaşık 200 saniye kadar zaman almıştır. Sonuçta, her numune için toplam ölçüm zamanı yaklaşık olarak 4 saat sürmüştür. OUS 2,5 ton 125-250 μ numunesi için bu süredeki ısınma-soğuma grafiği Şekil 3.30'da verilmiştir. Grafikteki 1 ile gösterilen bölge; vakumsuz, rotary pompa ve turbo moleküler pompanın çalışmaya başladığındaki ölçümlerin alındığı bölgeyi, 2 ile gösterilen bölge; numunenin soğutulduğu bölgeyi ve 3 ile gösterilen bölge ise; dielektrik ölçümlerin alındığı bölgeyi göstermektedir.



Şekil 3.30 OUS 2,5 ton 125-250 μ numunesi için ısınma-soğuma grafiği

Oda sıcaklığında ortalama $1{,}9.10^{-3}$ torr olan kriyostat basıncı, sıcaklığın azalmasıyla azalmış ve ölçümlere başlanan 230 K sıcaklıklarında ortalama 5.10^{-6} torr seviyelerinde okunmuştur. Sıcaklığın artmasıyla basınç azalmaya devam etmiş ve 360 K'de ortalama $2{,}5.10^{-6}$ torr seviyelerine ulaşmıştır.

3.3.7. Veri toplama ve değerlendirme yöntemi

Ölçümler süresince LabView 8.5 programıyla analizörden okunan kondüktans ve suseptans değerleri bilgisayara aktarılıp, Denklem (3.57) ve (3.58) kullanılarak ε' ve ε'' değerleri ve bunlara bağlı olarak $\tan\delta$ değerleri elde edilmiştir. Ayrıca bu değerler, Denklem (3.128)'de kullanılarak, M' ve M'' değerleri hesaplanmıştır. Elde edilen değerlerin grafikleştirilmesinde SigmaPlot 10.0 programı kullanılmıştır. Denklem (3.129)'daki temel ifade, Maple 11 programıyla reel ve sanal kısımlarına ayrılmıştır. Reel ve sanal teorik ifadeler, deneysel verilere, en küçük kareler yöntemi kullanılarak Levenberg-Marquardt algoritması işleten SigmaPlot programı aracılığıyla fit edilmiştir.

4. ARAŞTIRMA SONUÇLARI VE TARTIŞMA

4.1. XRD ve Kimyasal Analiz Sonuçları

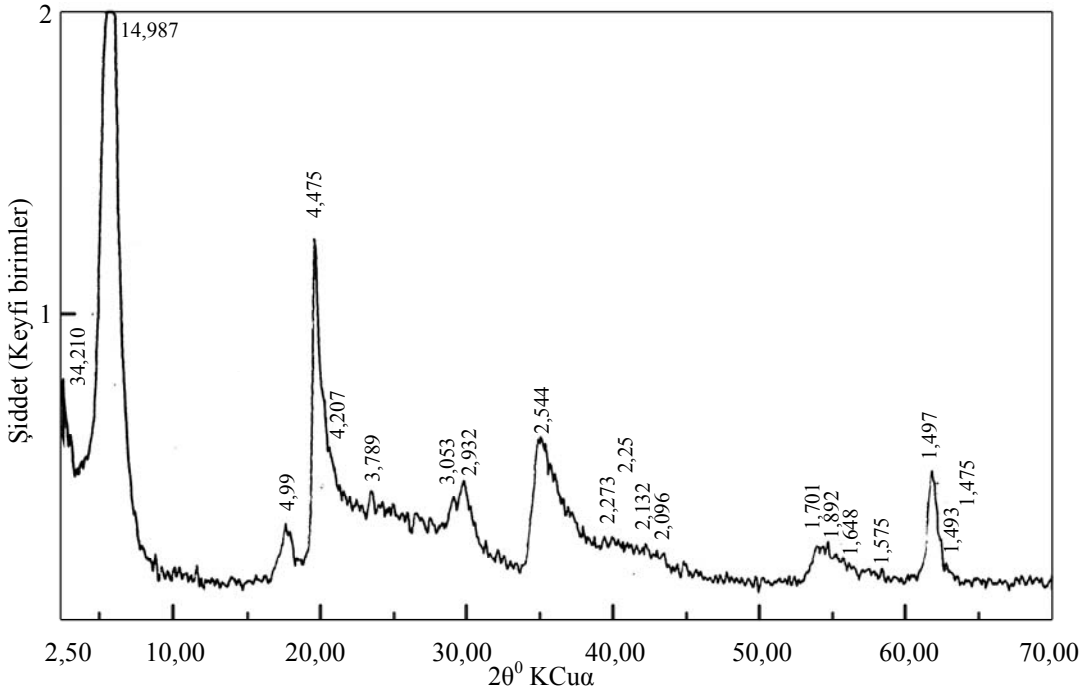
OUS ve OÜP numunelerinin kimyasal analiz sonuçları Çizelge 4.1'de verilmiştir (Çelik ve ark., 1999). OUS numunesinin Na2O+K2O / CaO+MgO oranı 1-1/3 arasında olduğundan bu numuneye aratip bentonit adı verilir. Diğer taraftan OÜP numunesinde bu oran 1/3 değerinden küçük olduğu için bu numune ise Ca-bentonittir.

Çizelge 4.1 OUS ve OÜP numunelerinin kimyasal analiz sonuçları (% ağırlık olarak)

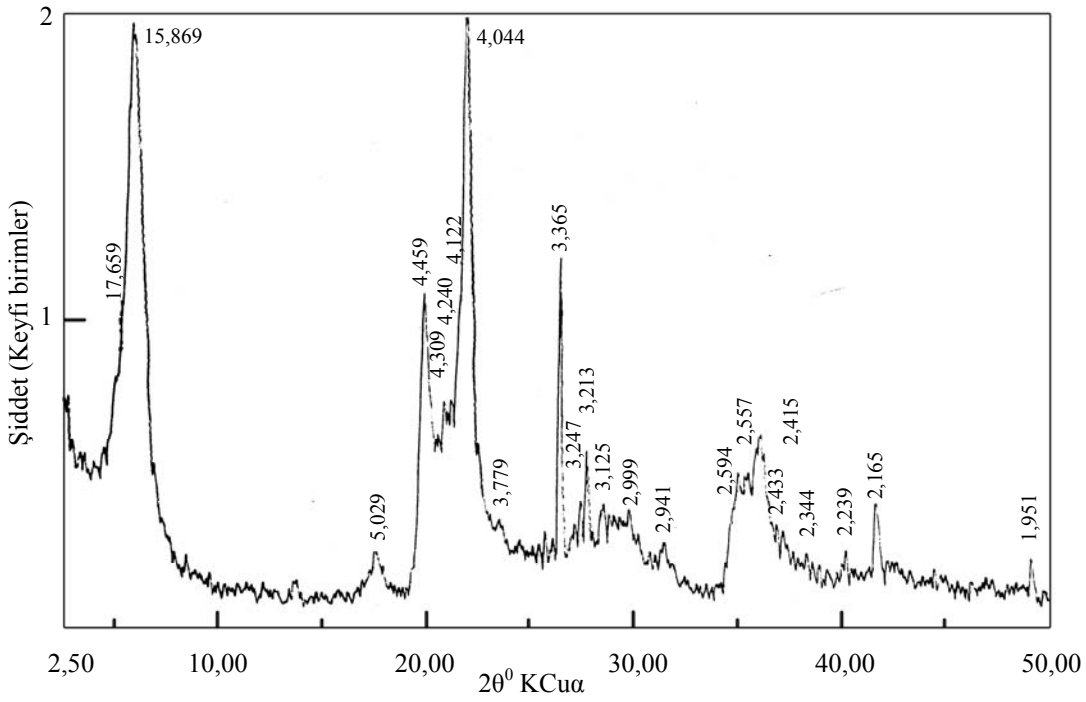
Numune	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	MgO	CaO	Na_2O	K_2O	TiO_2	P_2O_5	MnO	KK	Toplam
OUS	51,34	16,29	2,84	4,51	2,59	0,15	0,17	0,25	0,03	< 0,01	21,30	99,55
OÜP	63,25	14,38	0,96	2,12	1,28	0,88	0,52	0,14	0,01	0,01	16,40	99,98

KK: Kızdırma kaybı

Her iki numunenin CuKα ışınımı kaynağı kullanan Philips PW 1140 ve Siemens D-5000 cihazlarıyla alınan X-Işınları Difraktogram (XRD) desenleri, Şekil 4.1 ve Şekil 4.2'de verilmiştir.



Şekil 4.1 OUS numunesinin X-Işınları Difraktogram (XRD) deseni (Çelik ve ark., 1997)
(Piklerin üzerinde gösterilen değerler Å cinsindendir)



Şekil 4.2 OÜP numunesinin X-Işınları Difraktogram (XRD) deseni (Çelik ve ark., 1999)
(Piklerin üzerinde gösterilen değerler Å cinsindendir)

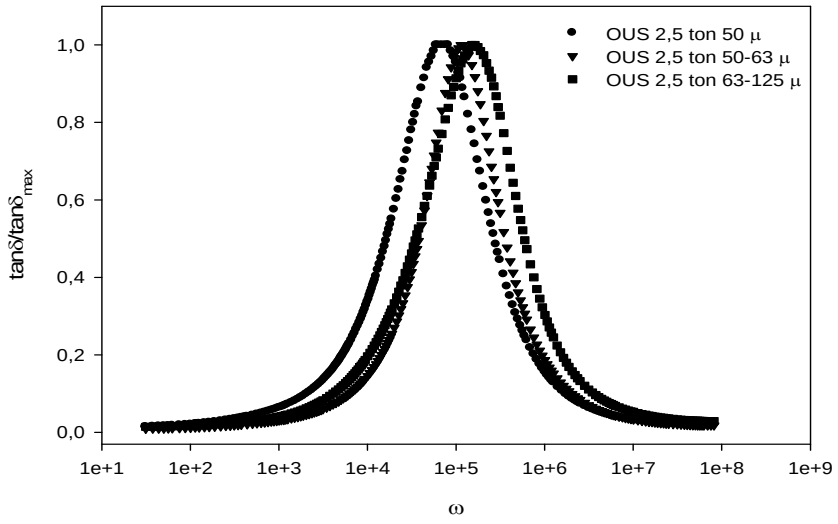
OUS numunesi yaklaşık %100 montmorillonitten oluşurken, OÜP numunesi ise %85 montmorillonit ve %15 silis polimorflarından (opal-CT) oluşmaktadır. Yani OÜP numunesi OUS numunesinden daha az montmorillonit içermektedir. Sonuç olarak her iki numune de %70'ten fazla montmorillonit içerdiğinden, ikisi de bentonit olarak sınıflandırılabilir.

4.2. Dielektrik Sonuçlar

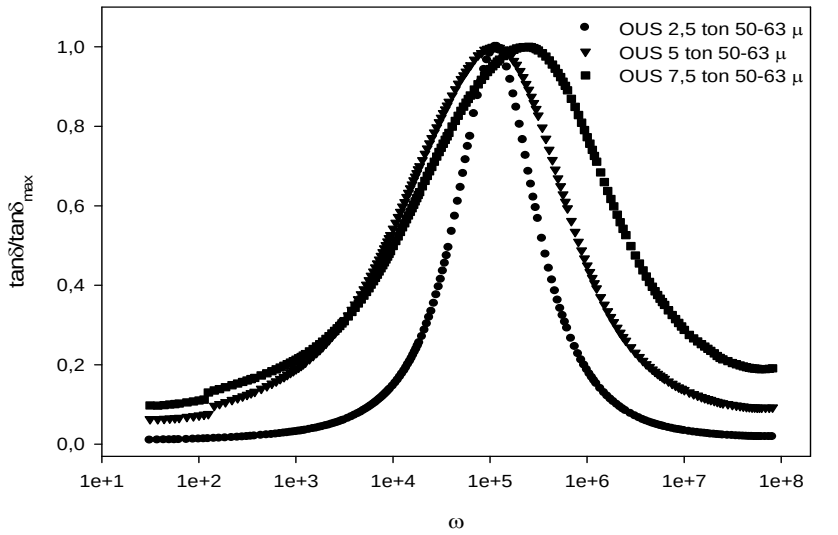
4.2.1. Vakumsuz oda sıcaklığı ölçümleri

Tüm numunelerin dielektrik ölçümleri, oda sıcaklığında ve henüz kriyostat basıncının atmosfer basıncında olduğu (vakumlamanın yapılmadığı) durumda başlatılmıştır. Bu şartlar altında alınan ölçümlerden, Şekil 4.3'te 2,5 ton basınçla pelet haline getirilmiş OUS numunelerinin, Şekil 4.4'te 50-63 μ parçacık büyüklüğüne sahip olan OUS numunelerinin kayıp tanjant ($\tan\delta$) değerlerinin açısal frekansın logaritmasına göre çizilen grafikleri verilmiştir. Her numune için, $\tan\delta$ pik yükseklikleri oldukça farklı olduğundan, grafikler normalize değerleriyle verilmiştir.

Grafiklerden görüleceği gibi oda sıcaklığında ve vakumsuz olarak alınan ölçümlerden kayıp tanjant eğrilerinin, yaklaşık, 10^5 rad/s civarında pik verdiği, artan basınç ve artan tanecik büyüklüğü ile bu piklerin yüksek frekanslara doğru kaydığı görülmektedir. Bu durum durulma zamanlarının küçülmesine karşılık gelir. Dudley ve ark. (2003), farklı montmorillonit mineralleri için, artan parçacık büyüklüğü ile durulma zamanlarının azaldığını belirtmişlerdir. Ayrıca, yine aynı şekillerden, parçacık büyüklüğü değişiminin pik genişliklerini etkilemediği, basıncın ise pik genişliklerini artırdığı görülebilir.



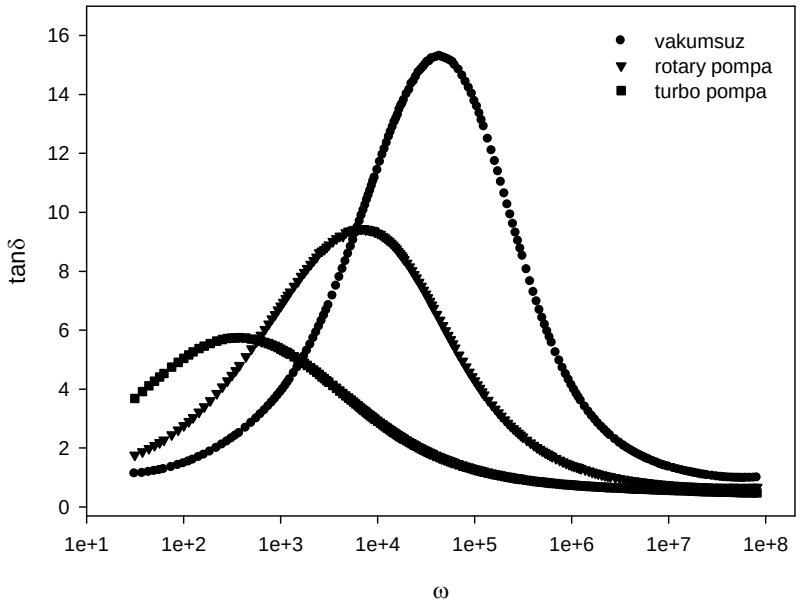
Şekil 4.3 Vakumsuz oda sıcaklığında OUS 2,5 ton numunesi için $\tan\delta - \log\omega$ grafiği



Şekil 4.4 Vakumsuz oda sıcaklığında OUS 50-63 μ için $\tan\delta - \log\omega$ grafiği

4.2.2. Vakumun oda sıcaklığındaki etkisi

Vakumlu ölçümlerin alınabilmesi için, kriyostat içi basıncın düşürülmesi gerekir. Vakum pompasının özelliğinden dolayı, vakumlama iki aşamada yapılmıştır. İlki, basıncı 10^0 torr seviyelerine düşüren rotary pompa aşaması, diğeri ise basıncı 10^{-3} torr seviyelerine düşüren turbo moleküler pompa aşamasıdır. Basınçla birlikte sıcaklığın da (önemsenmeyecek oranda) düştüğü her iki durumda da, sistem basıncının kararlı kaldığı durumda ölçümler alınmıştır. OUS 5 ton 50-63 μ numunesi için alınan böyle bir ölçüm Şekil 4.5'te verilmiştir.

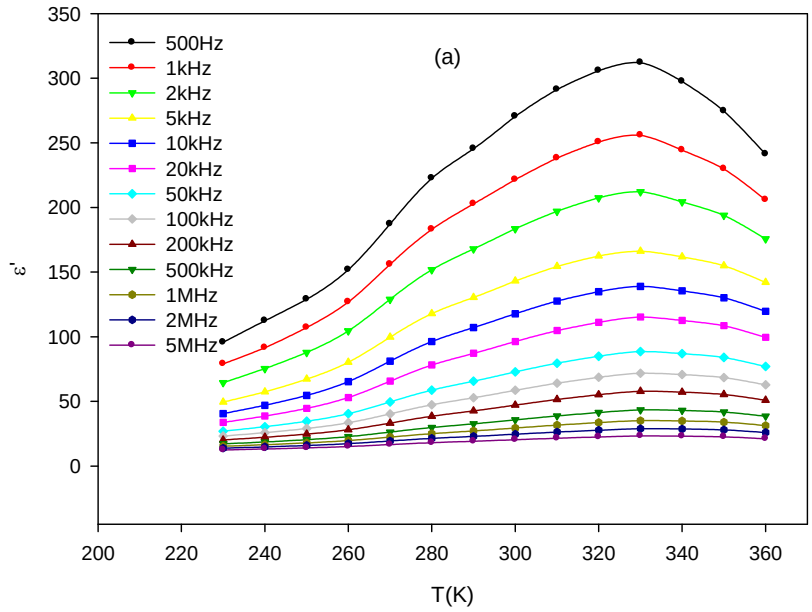


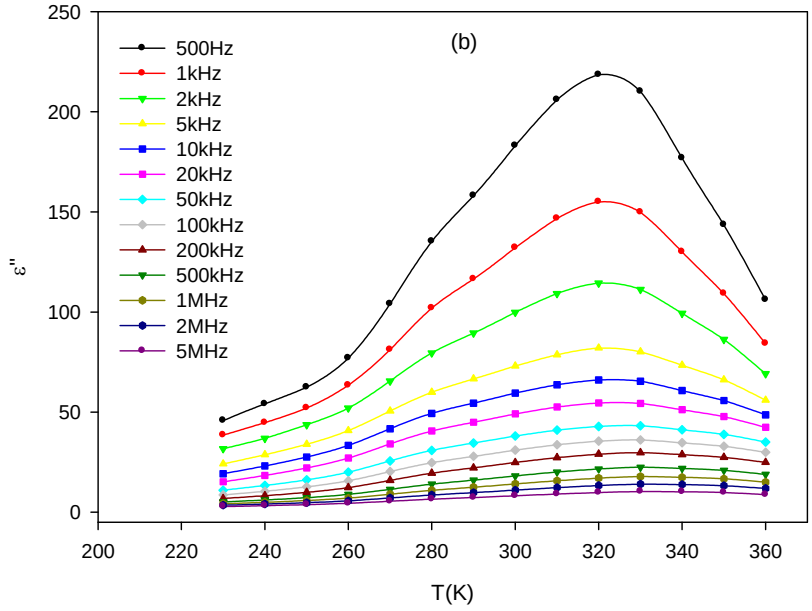
Şekil 4.5 Oda sıcaklığında OUS 5 ton 50-63 μ numunesi için $\tan\delta - \log\omega$ grafiğinin vakumla değişimi

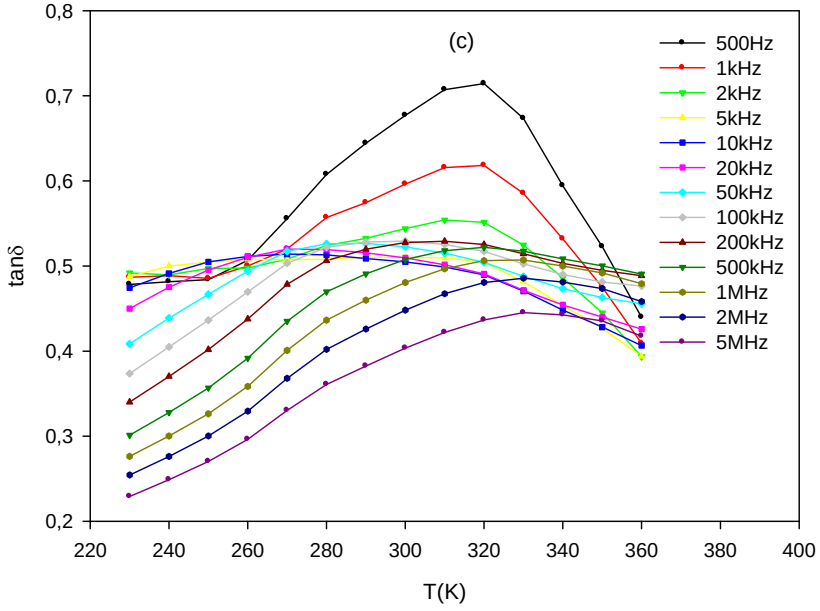
Kriyostat basıncının azalmasıyla (vakumun artmasıyla), kayıp tanjant piklerinin genliğinin azaldığı ve düşük frekans bölgesine doğru belirgin bir şekilde kaydığı görülmektedir. Bununla birlikte, piklerin yarı yükseklikteki genişlikleri de artan vakumla artmakta, yani, eğriler giderek yayvanlaşmaktadır. Bu değişimler, numunedeki yüzey neminin ve hatta kilin katmanlararası bölgesinde bulunan nemin bile vakum etkisiyle numuneden uzaklaşmasından ve numune üzerine etkiyen ortam basıncının azalmasından kaynaklanabilir. Sonuç olarak nem miktarının azalması, durulma frekansını azaltmakta, buna bağlı olarak da durulma zamanını artırmaktadır.

4.2.3. Sabit frekansta sıcaklık ölçümleri

Dielektrik özelliklerin yorumlanmasında kullanılan yöntemlerden biri, frekansın sabit tutulup, reel ve sanal geçirgenliklerin ve/veya kayıp tanjantın sıcaklıkla değişiminin incelenmesidir. OUS 5 ton 50-63 μ numunesi için, bazı frekans değerlerinde sıcaklığa göre değişimler, Şekil 4.6'da verilmiştir.





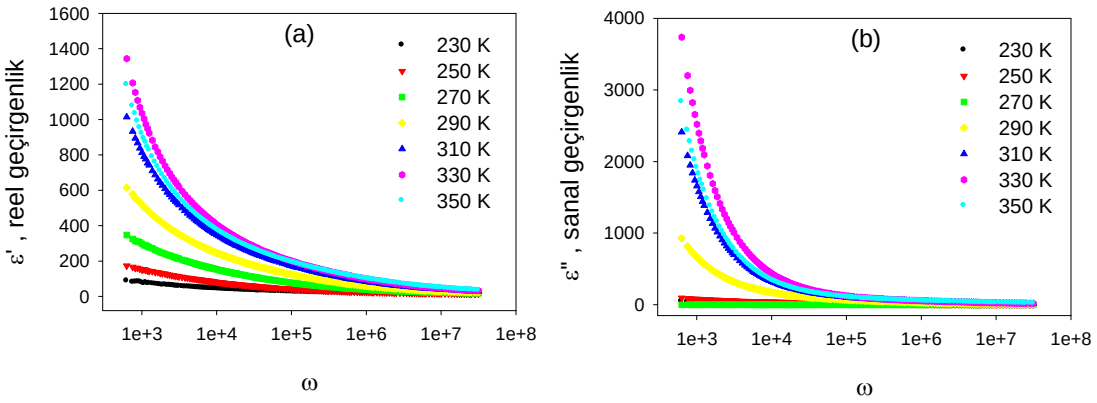


Şekil 4.6 OUS 5 ton 50-63 μ numunesi için a) ε'– T(K) , b) ε''– T(K) ve c) tan δ – T(K) grafikleri

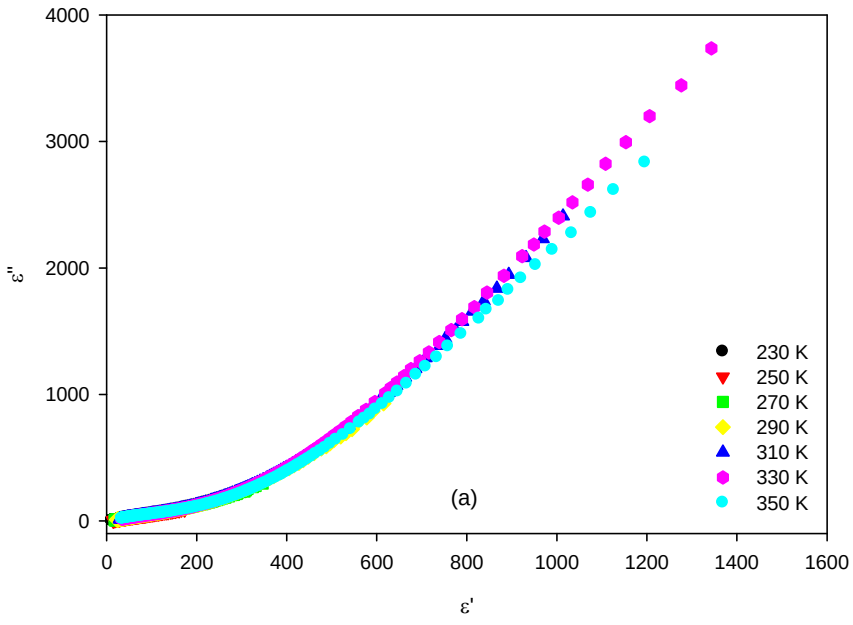
Şekil 4.6.a'da, reel geçirgenlik düşük frekanslarda büyük değerler almakta olup, 500 Hz frekansı için yaklaşık 330 K sıcaklığında pik vermektedir. Daha yüksek frekanslar için çizilen grafiklerde, pikler yüksek sıcaklığa doğru kaymakta ve 5 MHz deki pikin yeri 345 K sıcaklığında olmaktadır. Sanal geçirgenlik için çizilen grafiklerde (Şekil 4.6.b), en küçük frekans değeri olan 500 Hz için yaklaşık 320 K sıcaklığında pik gözlenirken, artan frekansla piklerin yüksek sıcaklıklara doğru kayarak en büyük frekans değeri olan 5 MHz için 340 K civarında olduğu görülmektedir. Ayrıca her frekans için, reel geçirgenlik değerleri, sanal geçirgenlik değerlerinden daha büyüktür. Kayıp tanjant eğrilerinde (Şekil 4.6.c), yaklaşık 5 kHz'e kadar frekans değişiminin pikin gerçekleştiği sıcaklığı etkilemediği (yaklaşık 315 K'de kaldığı), ancak 10 kHz frekansında 270 K civarında oluşan pikin artan frekansla yüksek sıcaklıklara doğru kaydığı ve 5 MHz frekansında yaklaşık 330 K sıcaklığında meydana geldiği görülmektedir. Bu durum, 270 K civarında, kil numunesinin içindeki suyun (yüzey nemi veya katmanlararası su) hal değiştirme bölgesi olduğundan, 10 kHz'in altındaki frekansların bu bölgede etkili olamamasından ileri gelebilir. Görülen bir başka durum da, 20 kHz ve altındaki frekanslarda (500 Hz hariç), suyun hal değiştirme bölgesinde (yaklaşık 270 K) kayıp tanjant değerleri sabit kalmaktadır.

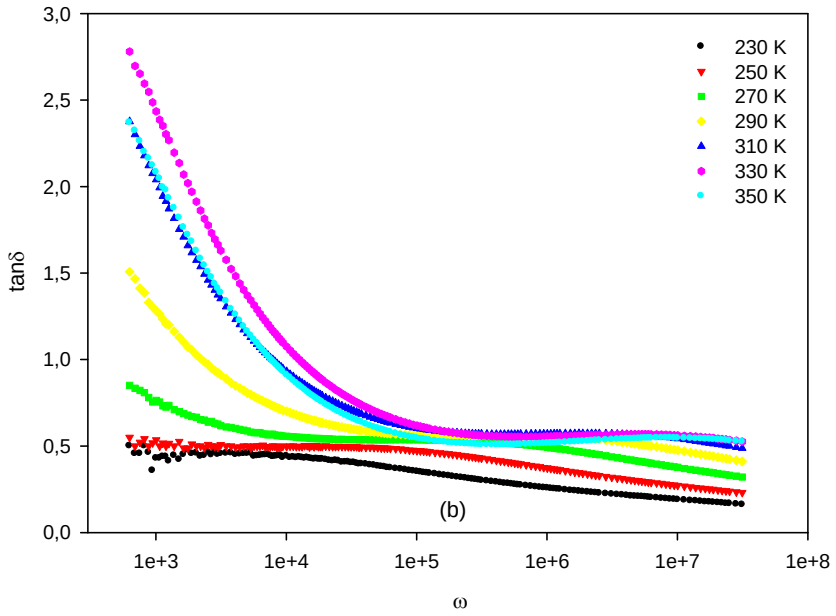
4.2.4. Sabit sıcaklıkta frekans ölçümleri

Numunelerin dielektrik parametrelerinin belirlenmesinde ilk olarak geçirgenlik modu kullanılmıştır. OUS 7,5 ton 63-125 μ numunesinden elde edilen değerler kullanılarak, Şekil 4.7a'da $\varepsilon' - \log\omega$, Şekil 4.7b'de $\varepsilon'' - \log\omega$ grafikleri, Şekil 4.8a'da $\varepsilon' - \varepsilon''$ (Cole-Cole), Şekil 4.8b'de $\tan\delta - \log\omega$ grafikleri verilmiştir. Bu grafiklerde, 10 K'lik artışlarla toplam ondört sıcaklık değeri için ölçüm alınmasına rağmen, grafiklerin görünümünü kolaylaştırmak için yalnızca yedi sıcaklık değeri gösterilmiştir.



Şekil 4.7 OUS 7,5 ton 63-125 μ numunesi için geçirgenlik modunda çizilen a) $\varepsilon' - \log\omega$, b) $\varepsilon'' - \log\omega$ grafikleri

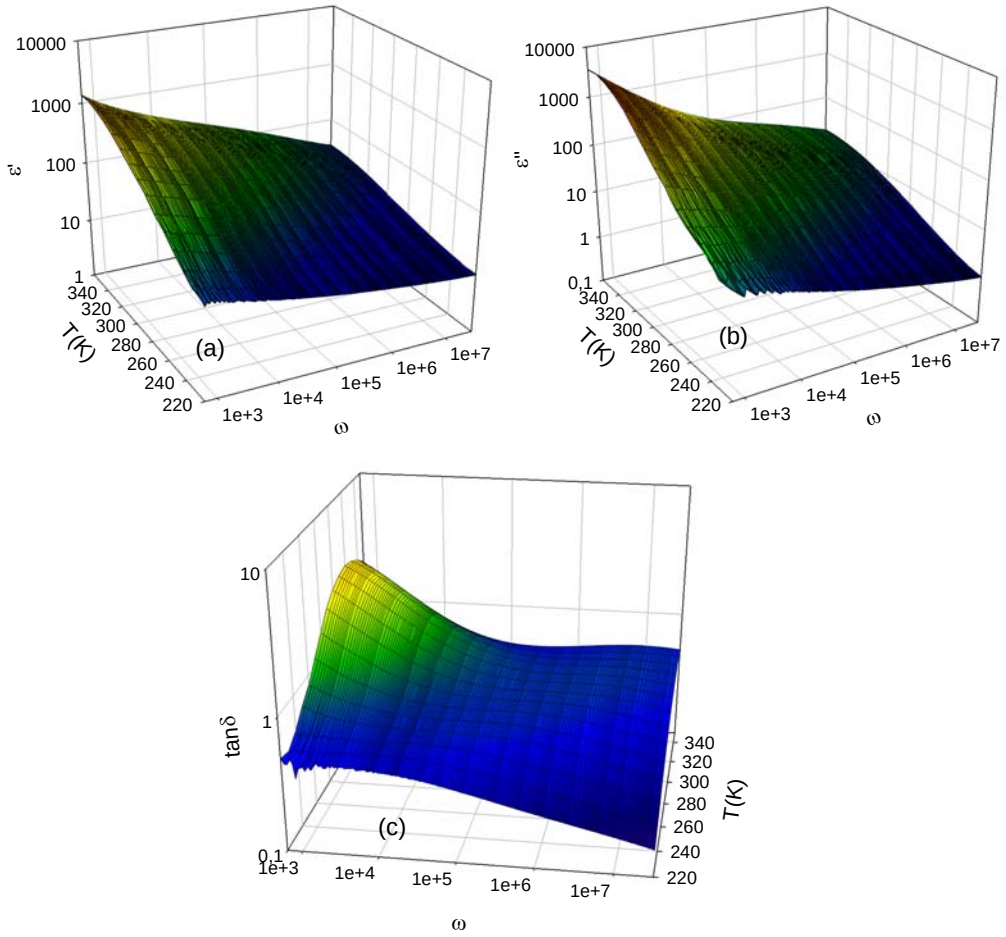




Şekil 4.8 OUS 7,5 ton 63-125 μ numunesi için geçirgenlik modunda çizilen a) $\varepsilon' - \varepsilon''$ ve b) $\tan\delta - \log\omega$ grafikleri

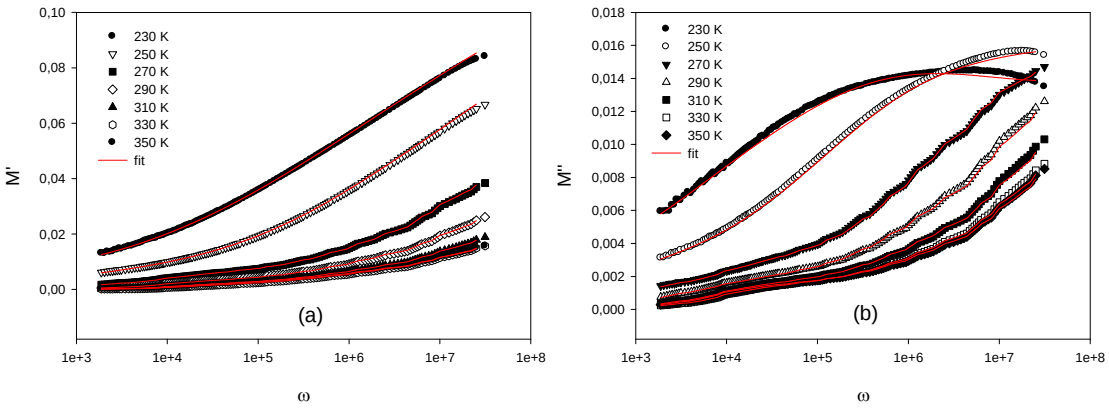
Geçirgenlik modundaki çizimlerde, hem ε''nün hem de ε'''nün düşük frekanslarda çok büyük değerler alması nedeniyle, durulma süreçlerini temsil eden herhangi bir pik görülmemektedir. Ayırt edilebilecek tek durum, kayıp tanjant grafiğinde ortaya çıkmaktadır. Reel ve sanal geçirgenliklerin ve de kayıp tanjantın, frekans ve sıcaklığa bağlı olarak değişimlerini daha iyi gözlemleyebilmek için, aynı numunenin Şekil 4.9.a'da reel, Şekil 4.9.b'de sanal geçirgenliklerinin ve Şekil 4.9.c'de ise kayıp tanjantlarının üç boyutlu grafikleri verilmiştir.

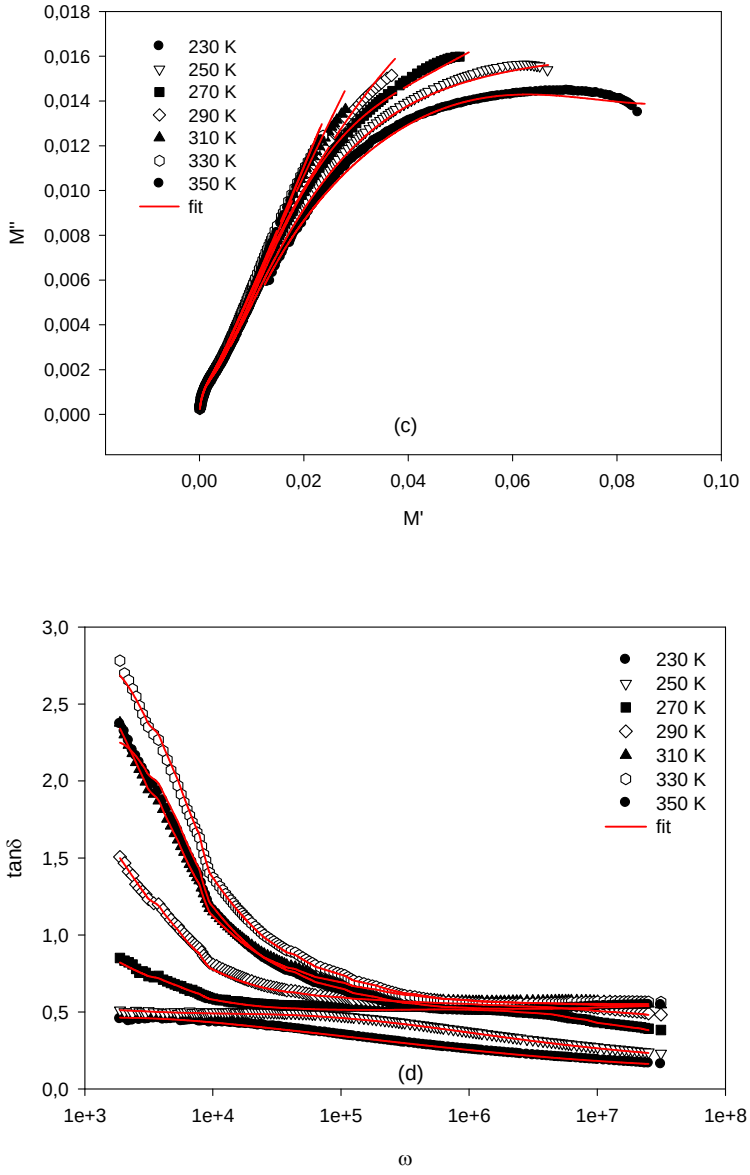
Geçirgenlik modunun temel eksikliği, birçok dielektrik malzemede durulma süreçlerinin yorumlanmasına geometrik anlam katan, yani ε_∞, ε_s, α, γ, τ gibi parametrelerin anlamlarını veren Cole-Cole eğrilerinin elde edilememesidir. Bu yüzden, bu yorumlamayı sağlayan elektrik modülü formalizmi kullanılacaktır.



Şekil 4.9 OUS 7,5 ton 63-125 μ numunesi için a) ε', b) ε'' ve c) tan δ değerlerinin sıcaklık ve frekansla değişimleri

Geçirgenlik modundaki grafikleri Şekil 4.7 ve 4.8'de verilen, OUS 7,5 ton 63-125 μ numunesinin elektrik modundaki çizimleri ve fit desenleri Şekil 4.10'da verilmiştir. Genel görünümün bozulmaması için ara sıcaklıklar grafikte verilmemiştir.





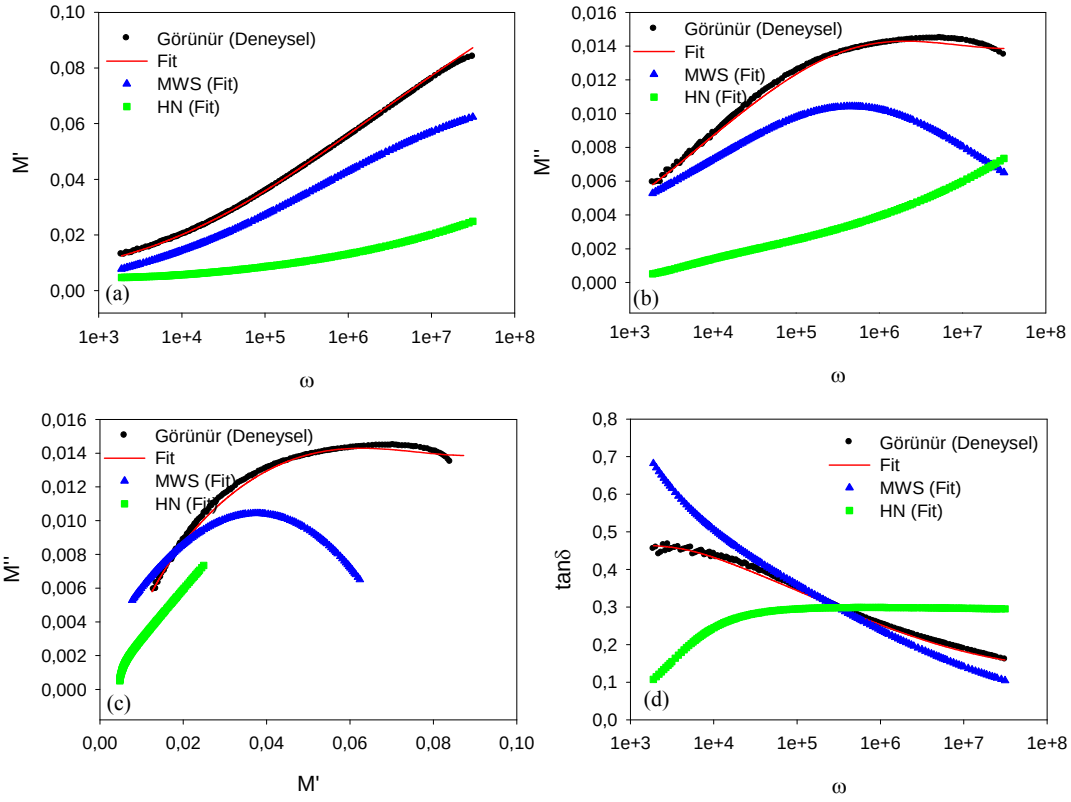
Şekil 4.10 OUS 7,5 ton 63-125 μ numunesinin a) $M' - \log \omega$, b) $M'' - \log \omega$, c) $M' - M''$ ve d) $\tan \delta - \log \omega$ grafikleri

Geçirgenlik modunda görülmeyen durulma pikleri, elektrik modülü formalizminde görünür hale gelmektedir. Bu modül için reel ve sanal kısımları Ek-1'de verilen ifade, Şekil 4.10'da verilen deneysel verilere fit edilip, her sıcaklık için oniki fit parametresi elde edilmiştir (Çizelge 4.2). Diğer tüm numunelerin elektrik modülü formalizminde çizilen ve fit edilen grafikleri ile fit parametreleri Ek-3'te verilmiştir. Bu numune ve diğer tüm numunelerin fit işlemlerinde, en küçük kareler yöntemi kullanılmış ve farkların kareleri toplamı 10^{-5}-10^{-6} mertebelerinde olmuştur.

Çizelge 4.2 OUS 7,5 ton 63-125 μ numunesinin elektrik modülü formalizmi kullanılarak elde edilen fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-4}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-2}(s)	A_σ(x10^{-5}) $\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	0,909	0,005	0,188	0,000	3,421	0,077	0,004	0,501	0,336	1,489	0,022	0,073
240	0,115	0,003	0,681	0,567	1,210	0,068	0,002	0,541	0,319	1,099	0,034	0,001
250	0,016	0,002	0,520	0,000	0,726	0,144	0,004	0,391	0,333	0,669	0,018	0,242
260	0,010	0,001	0,640	0,000	0,432	0,140	0,002	0,328	0,097	0,535	0,091	0,000
270	0,010	0,000	0,691	0,000	0,280	0,160	0,002	0,293	0,001	0,308	0,166	0,000
280	0,010	0,000	0,659	0,000	0,088	0,090	0,001	0,895	0,595	0,254	0,239	0,031
290	0,010	0,000	0,494	0,000	0,049	0,130	0,001	0,813	0,565	0,144	0,375	0,054
300	0,010	0,000	0,600	0,000	0,040	0,145	0,001	0,883	0,597	0,114	0,642	0,060
310	0,010	0,000	0,500	0,000	0,030	0,370	0,001	0,766	0,568	0,098	0,744	0,093
320	0,010	0,000	0,593	0,000	0,034	0,555	0,001	0,780	0,579	0,108	1,166	0,071
330	0,010	0,000	0,622	0,000	0,040	1,000	0,001	1,000	0,668	0,129	1,273	0,080
340	0,010	0,000	0,772	0,001	0,043	1,000	0,001	1,000	0,677	0,169	1,283	0,072
350	0,010	0,000	0,789	0,000	0,070	0,578	0,001	0,902	0,660	0,222	1,084	0,066
360	0,010	0,000	0,855	0,001	0,103	0,180	0,001	0,844	0,653	0,219	0,682	0,077

Bu numune için, 230 K sıcaklığında yapılan fitlerden elde edilen parametreler kullanılarak, HN ve MWS süreçleri ile bu iki sürecin toplamı olan görünür (appearent) çizimleri Şekil 4.11'de verilmiştir.



Şekil 4.11 OUS 7,5 ton 63-125 μ numunesinin 230 K sıcaklığı için a) $M' - \log\omega$, b) $M'' - \log\omega$, c) $M' - M''$ ve d) $\tan\delta - \log\omega$ grafikleri ve fitlerden elde edilen parametrelere göre HN ve MWS çizimleri

Çizelge 4.2 incelendiğinde, τ dışındaki parametrelerin sıcaklığa, basınca ve parçacık büyüklüğüne göre değişimlerinde genel bir düzen bulunmamaktadır. Süreçlerin etki alanının bir göstergesi olan ve dielektrik şiddet adı verilen $\varepsilon_s - \varepsilon_\infty$ nicelikleri hesaplanmış ($\varepsilon_s = 1/\mathrm{M}_s$ ve $\varepsilon_\infty = 1/\mathrm{M}_\infty$ dönüşümleri kullanılarak), HN süreci için yaklaşık 10 ile 100.000 arasında, MWS süreci için ise yaklaşık 5 ile 1300 arasında olduğu belirlenmiştir. Bu durum HN sürecinin etki alanının daha büyük olduğunu göstermektedir.

Heterojenliğin, yani Debye sürecinden sapmanın bir ölçüsü olan α ve γ parametrelerinin birlikte etkisini değerlendirmek için $\beta = \gamma(1-\alpha)$ parametresi tanımlanmış ve bütün numuneler için bu parametre, HN ve MWS süreçleri için sırasıyla Çizelge 4.3 ve 4.4'te verilmiştir. Bu parametrenin 1'e yakın olması, sürecin Debye'ye yaklaştığını, 1'den uzaklaşması ise heterojenliğin arttığını gösterir. Genel olarak her iki süreç için de, düşük sıcaklıklardan oda sıcaklığına kadar β parametresinde düzensiz de olsa bir artış gözlenirken, oda sıcaklığının üzerinde bu durum tersine dönmektedir. β parametresinin MWS sürecindeki değeri, HN sürecindeki değerinden genellikle daha küçük olup, bu da numunelerdeki heterojenlikte MWS sürecinin daha fazla etkili olması anlamına gelir. Cava ve ark. (1984), $K_{0,3}MoO_3$ numunesi için aynı β parametresini kullanmış ve bu parametrenin sıcaklıkla değişmediği yorumunu yapmıştır ($\beta = 0,71$). Ancak, tek bir sıcaklıkta (77 K) yaptıkları ölçümle, sıcaklığa bağlılığın nasıl belirlendiği anlaşılamamıştır.

İletkenlikle ilgili A_σ ve *n* parametrelerinde genel bir düzen olmamakla birlikte, A_σ için 10^{-5} ile 10^{-9} ($\mathrm{Sm}^{-1}s^n$) mertebeleri arasında, *n* için ise 10^{-1} ile 10^{-2} arasında değerler bulunmuştur. Bona ve ark. (2002), kayaç numunelerini inceledikleri çalışmalarında A_σ'yı 10^{-5} ($\mathrm{Sm}^{-1}s^n$) mertebesinde, *n*'i ise 10^{-2} ile 10^{-3} mertebesinde bulmuşlardır.

Numunelerin τ durulma zamanları, HN ve MWS süreçleri için sırasıyla Çizelge 4.5 ve 4.6'da verilmiştir. Çizelgelere göre, durulma zamanlarının değişimleri, dört durum için aşağıda incelenmiştir.

Çizelge 4.3 Tüm numuneler için $\beta = \gamma(1-\alpha)$ parametresinin HN sürecinde aldığı değerler

T (K)	230	240	250	260	270	280	290	300	310	320	330	340	350	360
OUS 2,5 ton 50 μ altı	0,353	0,481	0,398	0,347	0,441	0,486	0,528	0,449	0,458	0,479	0,467	0,487	0,481	0,001
OUS2,5 ton 50-63 μ	0,222	0,408	0,223	0,527	0,582	0,224	0,265	0,438	0,627	0,277	0,300	0,504	0,350	0,502
OUS 2,5 ton 63-125 μ	0,336	0,589	0,463	0,507	0,522	0,575	0,635	0,635	0,649	0,576	0,618	0,454	0,417	0,403
OUS 2,5 ton 125-250 μ	0,208	0,347	0,446	0,360	0,293	0,456	0,507	0,443	0,490	0,477	0,577	0,261	0,392	0,363
OUS 5 ton 50 μ altı	0,418	0,418	0,398	0,442	0,547	0,498	0,665	0,216	0,669	0,667	0,686	0,611	0,641	0,594
OUS 5 ton 50-63 μ	0,467	0,509	0,491	0,485	0,555	0,633	0,629	0,684	0,696	0,648	0,589	0,544	0,576	0,484
OUS 5 ton 63-125 μ	0,645	0,443	0,479	0,498	0,489	0,544	0,565	0,600	0,659	0,578	*	0,573	0,501	0,489
OUS 5 ton 125-250 μ	0,179	0,552	0,470	0,478	0,508	0,522	0,609	0,569	0,718	0,587	0,594	0,516	0,457	0,181
OUS 7,5 ton 50 μ altı	0,914	0,658	0,684	0,604	0,401	0,401	0,342	0,093	0,148	0,317	0,434	0,437	*	*
OUS 7,5 ton 50-63 μ	0,542	0,600	0,798	0,768	0,780	0,814	0,272	0,001	0,001	0,324	0,807	0,832	0,823	0,843
OUS 7,5 ton 63-125 μ	0,188	0,295	0,520	0,640	0,691	0,659	0,494	0,600	0,500	0,593	0,622	0,772	0,789	0,855
OÜP 2,5 ton 50-63 μ	0,709	0,142	0,672	0,616	0,726	0,701	0,245	0,185	0,251	0,272	0,293	0,307	0,321	0,319
OÜP 2,5 ton 125-250 μ	0,988	0,625	0,271	0,266	0,201	0,209	0,208	0,228	0,189	0,407	0,389	0,347	*	*
OÜP 5 ton 50 μ altı	*	*	*	*	0,196	0,087	0,626	0,602	0,466	0,491	0,697	0,436	0,429	0,420
OÜP 5 ton 50-63 μ	0,344	0,355	0,520	0,440	0,426	0,457	0,453	0,685	0,567	0,565	0,439	0,362	0,497	0,617
OÜP 5 ton 63-125 μ	0,281	0,309	0,327	0,483	0,473	0,473	0,498	0,536	0,497	0,476	0,435	0,428	0,413	0,388
OÜP 5 ton 125-250 μ	0,289	0,512	0,484	0,480	0,478	0,479	0,496	0,502	0,540	0,496	0,510	0,466	0,470	0,428
OÜP 7,5 ton 50 μ altı	0,407	0,480	0,507	0,520	0,518	0,400	0,530	0,464	0,405	0,316	0,368	0,302	0,001	0,001
OÜP 7,5 ton 50-63 μ	0,493	0,482	0,486	0,512	0,501	0,522	0,607	0,556	0,563	0,553	0,567	0,529	0,537	0,501
OÜP 7,5 ton 63-125 μ	0,408	0,441	0,523	0,228	0,254	0,556	0,587	0,633	0,630	0,686	0,639	0,525	0,561	0,577
OÜP 7,5 ton 125-250 μ	0,268	0,322	0,300	0,357	0,532	0,550	0,513	0,557	0,588	0,562	0,519	0,504	0,446	0,441

*: Deneysel veri elde edilemedi

Çizelge 4.4 Tüm numuneler için $\beta = \gamma(1-\alpha)$ parametresinin MWS sürecinde aldığı değerler

T (K)	230	240	250	260	270	280	290	300	310	320	330	340	350	360
OUS 2,5 ton 50 μ altı	0,175	0,252	0,287	0,556	0,291	0,214	0,220	0,305	0,311	0,333	0,299	0,287	0,280	0,375
OUS2,5 ton 50-63 μ	0,645	0,248	0,634	0,255	0,252	0,415	0,394	0,267	0,319	0,409	0,396	0,116	0,311	0,220
OUS 2,5 ton 63-125 μ	0,049	0,172	0,276	0,273	0,269	0,312	0,311	0,300	0,300	0,289	0,405	0,241	0,205	0,231
OUS 2,5 ton 125-250 μ	0,323	0,366	0,283	0,364	1,000	0,373	0,403	0,362	0,367	0,393	0,404	0,345	0,283	0,248
OUS 5 ton 50 μ altı	0,356	0,343	0,306	0,311	0,306	0,300	0,339	0,264	0,224	0,229	0,221	0,211	0,190	0,322
OUS 5 ton 50-63 μ	0,295	0,284	0,282	0,246	0,264	0,268	0,269	0,271	0,273	0,265	0,245	0,222	0,231	0,194
OUS 5 ton 63-125 μ	0,746	0,287	0,281	0,244	0,289	0,273	0,289	0,245	0,303	0,288	*	0,294	0,301	0,346
OUS 5 ton 125-250 μ	0,344	0,212	0,288	0,232	0,283	0,294	0,307	0,293	0,293	0,295	0,302	0,390	0,392	0,401
OUS 7,5 ton 50 μ altı	0,192	0,178	0,203	0,174	0,159	0,155	0,156	0,130	0,281	0,394	0,181	0,146	*	*
OUS 7,5 ton 50-63 μ	0,373	0,366	0,316	0,342	0,345	0,324	0,338	0,315	0,323	0,319	0,315	0,311	0,300	0,284
OUS 7,5 ton 63-125 μ	0,333	0,369	0,261	0,296	0,293	0,362	0,354	0,355	0,331	0,329	0,332	0,323	0,307	0,293
OÜP 2,5 ton 50-63 μ	0,243	0,999	0,186	0,205	0,128	0,195	0,290	0,300	0,265	0,267	0,261	0,265	0,281	0,343
OÜP 2,5 ton 125-250 μ	0,302	0,312	0,432	0,372	0,291	0,289	0,293	0,287	0,304	0,220	0,199	0,209	*	*
OÜP 5 ton 50 μ altı	*	*	*	*	0,412	0,406	0,175	0,243	0,959	0,226	0,266	0,202	0,171	0,401
OÜP 5 ton 50-63 μ	0,451	0,439	0,376	0,387	0,403	0,409	0,387	0,618	0,425	0,338	0,354	0,372	0,331	0,130
OÜP 5 ton 63-125 μ	0,423	0,451	0,429	0,429	0,316	0,288	0,284	0,284	0,274	0,293	0,285	0,206	0,081	0,055
OÜP 5 ton 125-250 μ	0,448	0,301	0,334	0,334	0,311	0,278	0,270	0,293	0,267	0,305	0,273	0,274	0,251	0,909
OÜP 7,5 ton 50 μ altı	0,416	0,274	0,306	0,289	0,295	0,400	0,309	0,360	0,337	0,346	0,338	0,342	0,328	0,316
OÜP 7,5 ton 50-63 μ	0,310	0,312	0,316	0,329	0,301	0,302	0,311	0,332	0,309	0,284	0,291	0,273	0,252	0,332
OÜP 7,5 ton 63-125 μ	0,145	0,164	0,118	0,102	0,122	0,245	0,258	0,288	0,274	0,285	0,308	0,340	0,282	0,274
OÜP 7,5 ton 125-250 μ	0,090	0,107	0,104	0,124	0,168	0,223	0,225	0,244	0,238	0,237	0,234	0,224	0,226	0,213

*: Deneysel veri elde edilemedi

i) Montmorillonit miktarına göre;

HN süreci için OUS numunelerinin τ durulma zamanları 10^{-4}-10^{-6} s aralığında iken, OUP için bu aralık 10^{-3}-10^{-6} s'dir. Bu değerler, HN sürecinde montmorillonit

yüzdesi azalırken durulma zamanlarının artmasına karşılık gelir. MWS süreci için ise durum tam tersine olup, OUS için 10^{-2}-10^{-3} s, OÜP için 10^{-3}-10^{-4} s dir. Ayrıca bütün numunelerde, MWS sürecinin durulma zamanları, HN sürecinin durulma zamanlarından daha büyük olup, bu ise MWS süreçlerinin daha küçük frekanslarda durulması anlamına gelir.

ii) Sıcaklığa göre;

Her iki süreç için, τ değerleri 310-320 K'e kadar sıcaklıkla azalırken, bu sıcaklıkların üzerinde artmaktadır. Bu durum tüm numunelerde durulma mekanizmasının iki kısımlı olduğunu gösterir. τ 'ların azaldığı birinci durum Arrhenius tipi davranışı temsil ederken, arttığı ikinci durum ise Arrhenius dışı davranışa karşılık gelir. Bir sonraki kesimde, aktivasyon enerjisi incelemelerinde, yalnızca Arrhenius tipi davranış ele alınacaktır.

iii) Parçacık büyüklüğüne göre;

HN ve MWS süreçlerinin her ikisinde de, hem OUS hem OÜP numunelerinde, düşük sıcaklıklardaki birkaç istisna dışında, artan parçacık büyüklüğü ile durulma zamanları azalmaktadır. Dudley ve ark. (2003) da Ca-montmorillonit türü numuneleri için, artan parçacık büyüklüğü ile τ durulma zamanlarının ($\sim 10^{-8}$ s mertebesinde) azaldığını bulmuşlardır.

iv) Basınca göre;

Her iki süreç için de, birkaç istisna dışında tüm numunelerin, artan basınçla durulma zamanları azalmaktadır. Ancak bu azalma, basınç artışlarının küçük olması nedeniyle, parçacık büyüklüğüne göre azalmadaki büyüklük değerine oranla daha küçüktür. Kil mineralleri (dolayısıyla montmorillonit) için τ durulma zamanlarının basınçla incelenmesiyle ilgili literatürde herhangi bir çalışmaya rastlanmadığından, birebir karşılaştırma yapılamamıştır. Bununla birlikte, kil mineralleri dışındaki malzemelerle ilgili birçok çalışma bulunmaktadır. Bu çalışmalarda genellikle, artan basınçla τ durulma zamanlarının arttığı belirtilmektedir (Paluch, 1996). Lee ve Auh (2001), baryum titanat seramikleri için, dielektrik geçirgenliklerin basınca göre değişimlerini sabit frekans altında inceleyerek, geçirgenliklerin belli basınçlarda pik verdiğini ve bu piklerin artan tanecik büyüklüğü ile yüksek basınçlara doğru kaydığını

tespit etmişlerdir. Ancak, literatürde araştırılan ölçümler, bu çalışmada yapıldığı gibi pelet oluşturma basıncı değil, basınç altında alınan ölçümlerdir.

Çizelge 4.5 Tüm numunelerin HN süreci için bulunan τ_{HN} durulma zamanları (x10^{-3} s)

T (K)	230	240	250	260	270	280	290	300	310	320	330	340	350	360
OUS 2,5 ton 50 μ altı	0,423	0,303	0,218	0,169	0,115	0,070	0,043	0,037	0,030	0,027	0,031	0,044	0,062	0,081
OUS2,5 ton 50-63 μ	0,331	0,233	0,187	0,081	0,051	0,041	0,033	0,024	0,010	0,008	0,009	0,014	0,028	0,041
OUS 2,5 ton 63-125 μ	0,332	0,120	0,084	0,054	0,031	0,015	0,009	0,007	0,004	0,006	0,001	0,014	0,038	0,041
OUS 2,5 ton 125-250 μ	0,311	0,122	0,099	0,053	0,028	0,013	0,006	0,005	0,002	0,006	0,001	0,014	0,038	0,041
OUS 5 ton 50 μ altı	0,411	0,283	0,188	0,147	0,097	0,069	0,040	0,036	0,024	0,019	0,031	0,054	0,052	0,071
OUS 5 ton 50-63 μ	0,468	0,311	0,158	0,113	0,069	0,040	0,033	0,018	0,012	0,014	0,030	0,046	0,055	0,068
OUS 5 ton 63-125 μ	0,610	0,331	0,165	0,093	0,043	0,031	0,013	0,009	0,008	0,005	*	0,005	0,006	0,013
OUS 5 ton 125-250 μ	0,779	0,300	0,150	0,090	0,040	0,027	0,013	0,008	0,004	0,005	0,005	0,004	0,006	0,012
OUS 7,5 ton 50 μ altı	0,393	0,283	0,135	0,146	0,063	0,053	0,040	0,027	0,020	0,021	0,022	0,037	*	*
OUS 7,5 ton 50-63 μ	0,376	0,244	0,072	0,061	0,046	0,020	0,016	0,011	0,005	0,003	0,003	0,004	0,006	0,010
OUS 7,5 ton 63-125 μ	0,342	0,121	0,073	0,043	0,028	0,009	0,005	0,004	0,003	0,003	0,004	0,004	0,007	0,010
OÜP 2,5 ton 50-63 μ	2,680	1,942	0,879	0,438	0,374	0,293	0,121	0,096	0,082	0,044	0,049	0,058	0,058	0,063
OÜP 2,5 ton 125-250 μ	2,890	0,892	0,896	0,371	0,179	0,091	0,057	0,024	0,018	0,016	0,021	0,037	*	*
OÜP 5 ton 50 μ altı	0,000	*	*	*	0,299	0,231	0,111	0,094	0,082	0,053	0,044	0,050	0,056	0,061
OÜP 5 ton 50-63 μ	3,552	2,253	0,861	0,358	0,280	0,231	0,101	0,095	0,066	0,042	0,034	0,049	0,068	0,086
OÜP 5 ton 63-125 μ	5,222	2,128	0,858	0,350	0,278	0,203	0,097	0,053	0,046	0,062	0,078	0,104	0,113	0,119
OÜP 5 ton 125-250 μ	4,121	2,695	0,828	0,659	0,199	0,204	0,084	0,053	0,020	0,011	0,017	0,021	0,056	0,092
OÜP 7,5 ton 50 μ altı	2,395	0,811	0,558	0,274	0,263	0,296	0,103	0,092	0,051	0,048	0,044	0,024	0,020	0,018
OÜP 7,5 ton 50-63 μ	0,937	0,602	0,543	0,226	0,115	0,075	0,042	0,021	0,019	0,014	0,008	0,009	0,010	0,018
OÜP 7,5 ton 63-125 μ	0,853	0,498	0,203	0,151	0,153	0,042	0,020	0,009	0,009	0,005	0,003	0,003	0,006	0,006
OÜP 7,5 ton 125-250 μ	1,189	0,332	0,243	0,077	0,034	0,021	0,019	0,008	0,004	0,003	0,004	0,003	0,006	0,009

*: Deneysel veri elde edilemedi

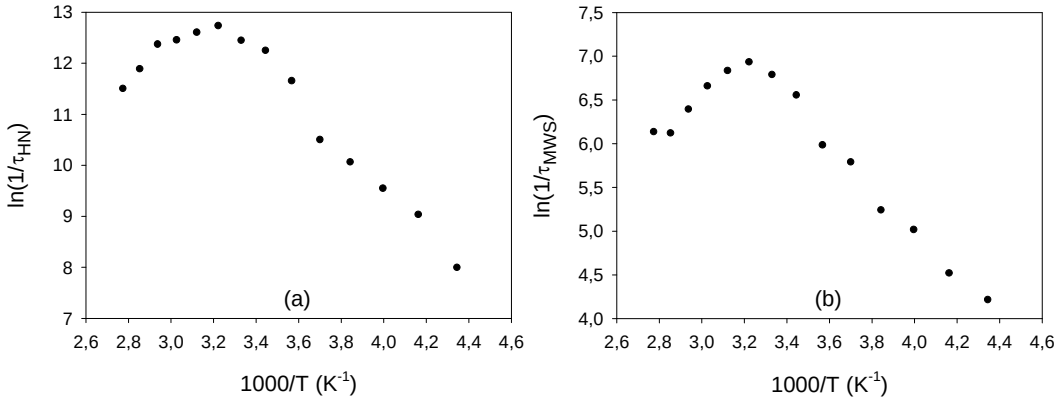
Çizelge 4.6 Tüm numunelerin MWS süreci için bulunan τ_{MWS} durulma zamanları (x10^{-2} s)

T (K)	230	240	250	260	270	280	290	300	310	320	330	340	350	360
OUS 2,5 ton 50 μ altı	1,152	1,023	0,810	0,598	0,415	0,315	0,230	0,215	0,192	0,160	0,175	0,199	0,235	0,254
OUS2,5 ton 50-63 μ	1,051	0,612	0,578	0,394	0,325	0,272	0,195	0,152	0,112	0,085	0,175	0,199	0,235	0,254
OUS 2,5 ton 63-125 μ	0,974	0,677	0,582	0,374	0,308	0,239	0,151	0,134	0,091	0,085	0,011	0,179	0,235	0,254
OUS 2,5 ton 125-250 μ	0,935	0,672	0,502	0,343	0,275	0,171	0,113	0,099	0,101	0,112	0,162	0,174	0,229	0,250
OUS 5 ton 50 μ altı	1,254	0,971	0,786	0,514	0,423	0,288	0,210	0,210	0,175	0,138	0,155	0,149	0,175	0,232
OUS 5 ton 50-63 μ	1,391	9,699	0,763	0,476	0,386	0,288	0,193	0,168	0,148	0,107	0,139	0,209	0,186	0,183
OUS 5 ton 63-125 μ	1,201	0,825	0,663	0,406	0,202	0,202	0,181	0,125	0,103	0,088	*	0,082	0,092	0,090
OUS 5 ton 125-250 μ	1,202	0,725	0,472	0,412	0,225	0,178	0,142	0,106	0,065	0,054	0,062	0,081	0,087	0,104
OUS 7,5 ton 50 μ altı	1,321	0,981	0,596	0,503	0,332	0,253	0,164	0,140	0,132	0,141	0,163	0,152	*	*
OUS 7,5 ton 50-63 μ	1,633	1,284	0,633	0,494	0,330	0,249	0,167	0,132	0,131	0,093	0,153	0,141	0,122	0,199
OUS 7,5 ton 63-125 μ	1,489	1,099	0,669	0,535	0,308	0,254	0,144	0,114	0,098	0,108	0,129	0,169	0,222	0,219
OÜP 2,5 ton 50-63 μ	0,923	0,532	0,463	0,403	0,298	0,263	0,167	0,158	0,144	0,111	0,123	0,157	0,210	0,257
OÜP 2,5 ton 125-250 μ	0,767	0,464	0,458	0,249	0,228	0,170	0,134	0,091	0,072	0,062	0,070	0,011	*	*
OÜP 5 ton 50 μ altı	*	*	*	*	0,293	0,218	0,187	0,140	0,137	0,120	0,092	0,096	0,101	0,113
OÜP 5 ton 50-63 μ	0,736	0,610	0,378	0,262	0,232	0,198	0,147	0,120	0,099	0,078	0,082	0,089	0,091	0,128
OÜP 5 ton 63-125 μ	0,581	0,599	0,324	0,216	0,198	0,118	0,122	0,086	0,067	0,061	0,078	0,109	0,111	0,150
OÜP 5 ton 125-250 μ	0,501	0,285	0,253	0,217	0,133	0,088	0,060	0,044	0,040	0,037	0,043	0,061	0,075	0,078
OÜP 7,5 ton 50 μ altı	1,131	0,578	0,386	0,293	0,353	0,226	0,163	0,140	0,133	0,095	0,085	0,072	0,062	0,059
OÜP 7,5 ton 50-63 μ	0,527	0,581	0,322	0,211	0,146	0,137	0,096	0,068	0,066	0,049	0,051	0,069	0,071	0,130
OÜP 7,5 ton 63-125 μ	0,760	0,431	0,233	0,219	0,116	0,129	0,095	0,052	0,049	0,040	0,044	0,049	0,068	0,068
OÜP 7,5 ton 125-250 μ	0,321	0,167	0,197	0,088	0,073	0,060	0,033	0,032	0,022	0,016	0,014	0,015	0,025	0,028

*: Deneysel veri elde edilemedi

4.2.5. Arrhenius grafikleri ve aktivasyon enerjileri

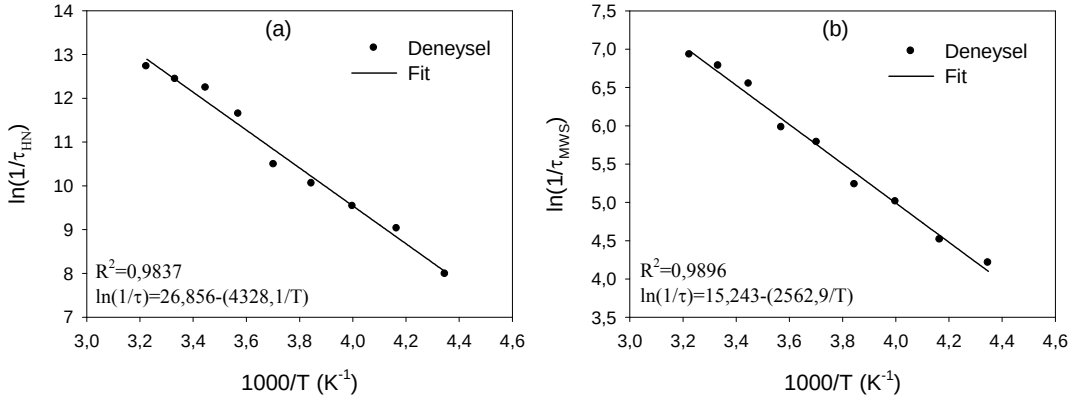
Numunelerin fit parametrelerinden elde edilen τ_{HN} ve τ_{MWS} durulma zamanları kullanılarak, hem yönelimli (HN) hem de arayüzeysel (MWS) süreçlerin Arrhenius grafikleri çizilmiştir. OUS 7,5 ton 63-125 μ numunesi için çizilen grafik, Şekil 4.12'de verilmiştir.



Şekil 4.12 OUS 7,5 ton 63-125 μ numunesinin a) HN, b) MWS süreci için Arrhenius grafikleri

Bu numune ve diğer numuneler için, her iki süreçte çizilen tüm Arrhenius grafiklerinde, τ durulma zamanları 310 K ile 320 K civarından itibaren artmaya başlayarak eğriler pozitif eğimli hale gelmektedir. Bu yüzden tüm numunelerde, aktivasyon enerjilerinin hesaplanmasında sadece eğimin negatif olduğu bölge baz alınmıştır. Bu bölge, Arrhenius tipi davranışı temsil eder. Şekil 4.13'te, bu numune için eğimin negatif olduğu bölge ile, bu bölgenin Denklem (3.132)'ye fit edildiği Arrhenius grafikleri verilmiştir. Diğer numuneler için de, bu negatif eğimli doğrusal bölge ele alınmış olup, toplu biçimde Ek-4'te basınç ve parçacık büyüklüğüne göre karşılaştırmalı olarak verilmiştir.

Bu grafiklerdeki doğruların eğiminden, $\text{eğim} = E_A / k$ (k: Boltzmann sabiti) kullanılarak, aktivasyon enerjileri, HN süreci için 35,99 kJ/mol, MWS süreci için 21,31 kJ/mol bulunmuştur. Ayrıca, yine aynı grafiklerin fit sonuçlarından, V_∞ yüksek sıcaklıktaki durulma hızları, HN süreci için $2{,}33.10^6$ s^{-1}, MWS süreci için $1{,}39.10^3$ s^{-1} şeklinde hesaplanmıştır.



Şekil 4.13 OUS 7,5 ton 63-125 μ numunesinin a) HN, b) MWS süreci için negatif eğim bölgesindeki Arrhenius grafikleri ve en iyi uyum doğruları

Dipol yönelimi (HN) ve arayüzeysel kutuplanma (MWS) süreçleri için hesaplanan aktivasyon enerjileri, tüm numuneler için, sırasıyla Çizelge 4.7 ve 4.8'de verilmiştir.

Çizelge 4.7 İncelenen tüm numunelerin HN süreci için bulunan aktivasyon enerjileri

Basınç	Parçacık Büyüklüğü	E_A (kJ/mol)	
		OUS	OÜP
2,5 Ton	50 μ altı	20,298	*
	50-63 μ	25,416	27,765
	63-125 μ	31,862	*
	125-250 μ	35,399	36,785
5 Ton	50 μ altı	21,339	23,858
	50-63 μ	29,962	29,557
	63-125 μ	33,701	34,868
	125-250 μ	38,073	39,763
7,5 Ton	50 μ altı	22,316	24,841
	50-63 μ	30,926	31,604
	63-125 μ	35,986	37,248
	125-250 μ	*	39,851

*: Numune elde edilememiştir

Çizelge 4.8 İncelenen tüm numunelerin MWS süreci için bulunan aktivasyon enerjileri

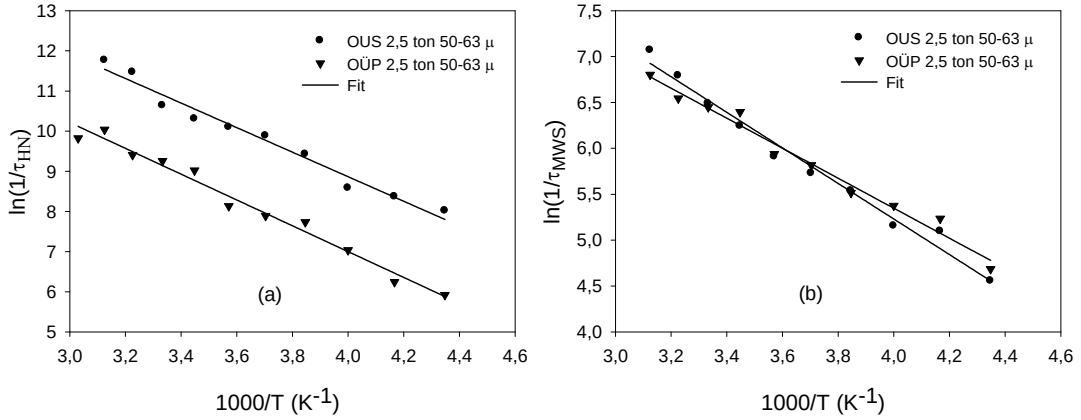
Basınç	Parçacık Büyüklüğü	E_A (kJ/mol)	
		OUS	OÜP
2,5 Ton	50 μ altı	14,647	*
	50-63 μ	16,104	13,586
	63-125 μ	17,215	*
	125-250 μ	19,175	17,052
5 Ton	50 μ altı	15,535	13,232
	50-63 μ	17,501	15,187
	63-125 μ	18,370	16,649
	125-250 μ	20,747	18,725
7,5 Ton	50 μ altı	18,215	14,904
	50-63 μ	19,943	17,525
	63-125 μ	21,309	19,375
	125-250 μ	*	19,972

*: Numune elde edilememiştir

Her iki süreç için tespit edilen aktivasyon enerjilerinin, montmorillonit miktarına göre, parçacık büyüklüğüne göre ve basınca göre incelemeleri tek tek ele alınmıştır.

i) Montmorillonit miktarına göre,

Farklı miktarda montmorillonit içeren OUS ve OÜP numunelerinin aktivasyon enerjileri birbirinden farklı bulunmuştur. Dipol yöneliminden (HN) kaynaklanan aktivasyon enerjileri OÜP grubu için daha büyük iken, arayüzeysel kutuplanma (MWS) süreci için bulunan aktivasyon enerjileri OUS grubunda daha büyük olmaktadır. Örneğin, pelet basıncı 7,5 ton, parçacık büyüklüğü 63-125 μ olan OUS ve OÜP numunelerinin aktivasyon enerjileri, HN süreci için sırasıyla 35,986 ve 37,248 kJ/mol değerinde iken, MWS süreci için 21,306 ve 19,375 kJ/mol değerinde bulunmaktadır. Bu iki numunenin HN ve MWS süreçleri için çizilen Arrhenius grafikleri Şekil 4.14'te verilmiştir. HN sürecinde heterojenlik artarken aktivasyon enerjilerindeki artma, dipollerin yönelim almasını zorlaştırdığı anlamına gelir. MWS sürecinde heterojenlik artarken aktivasyon enerjilerindeki azalma ise, yük taşıyıcılarının (dipoller veya iyonlar) daha kolayca yer değiştirmesine karşılık gelmektedir.

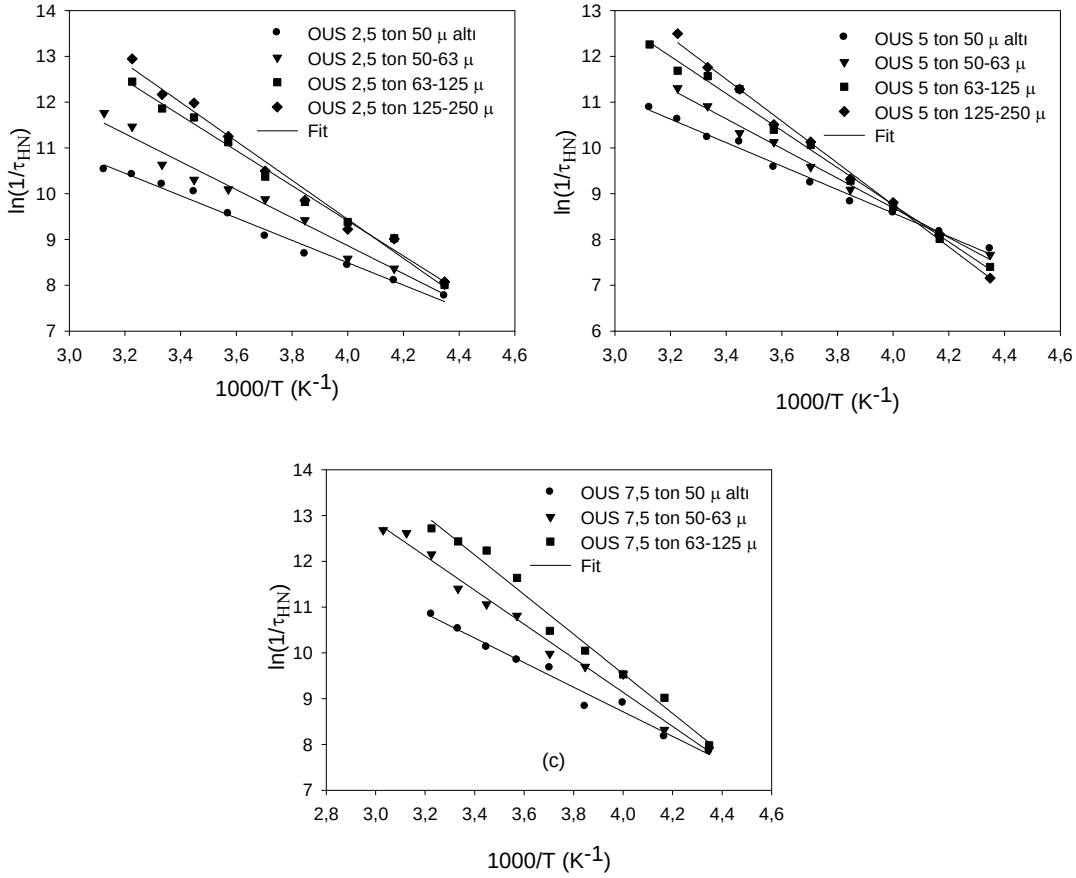


Şekil 4.14 OUS ve OÜP 2,5 ton 50-63 μ numunelerinin a) HN, b) MWS süreci için çizilen Arrhenius grafikleri

ii) Parçacık büyüklüğüne göre,

Çizelge 4.7 ve 4.8 incelendiğinde, parçacık büyüklüklerindeki farklılıkların, aktivasyon enerjilerinde oldukça büyük değişikliklere yol açtığı görülmektedir. Artan parçacık büyüklüğü ile HN ve MWS süreçlerinin her ikisi için de aktivasyon enerjileri önemli oranda artmaktadır. Örneğin, Çizelge 4.7'ye göre, OUS 2,5 ton grubunun aktivasyon enerjileri, en küçük parçacık büyüklüğüne sahip olan OUS 2,5 ton 50 μ numunesi için 20, 298 kJ/mol iken, en büyük parçacık büyüklüğüne sahip olan OUS 2,5 ton 125-250 μ numunesi için 35,399 kJ/mol değerine yükselmiştir. OUS ve OÜP gruplarının diğer pelet basınçlarında da buna benzer bir artış vardır. Numunelerin elektrik modülü formalizminden elde edilen durulma zamanları kullanılarak oluşturulan Arrhenius grafiklerinden de bu değişim kolaylıkla görülebilmektedir. Şekil 4.15'te HN süreci için OUS grubunun sabit basınçta, farklı parçacık büyüklüğü için çizilen Arrhenius grafikleri görülmektedir. MWS süreci için OUS grubunun ve HN ile MWS süreci için OÜP grubunun Arrhenius grafikleri ise Ek-4'te verilmiştir.

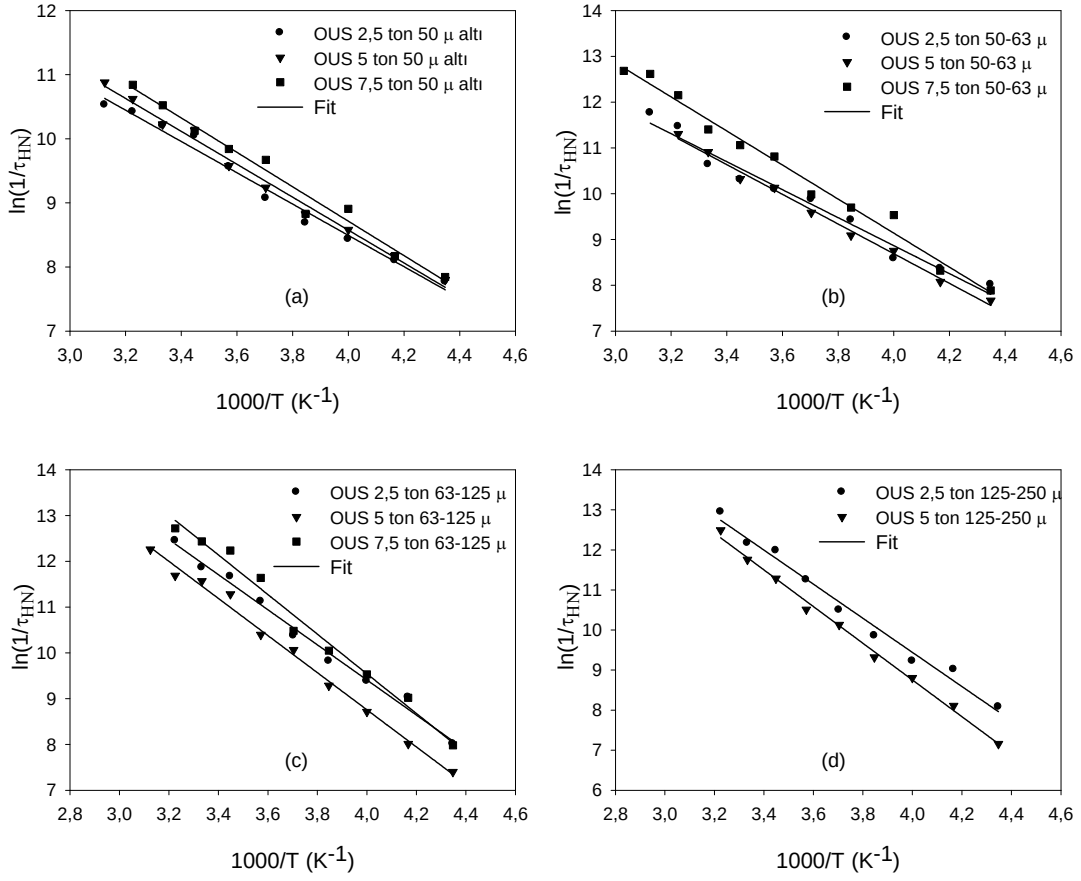
Parçacık büyüklüğündeki artışla aktivasyon enerjilerinin büyümesi, daha önce yorumlandığı gibi, dipol yöneliminin ve yer değiştirmelerinin zorlaştığı anlamına gelir.



Şekil 4.15 HN süreci için, OUS grubunun a) 2,5, b) 5 ve c) 7,5 ton için parçacık büyüklüğüne göre Arrhenius grafiklerinin değişimleri

iii) Basınca göre,

Pelet oluşturma basınçlarının atmasıyla, aktivasyon enerjilerinin de arttığı görülmektedir. Ancak artış miktarı oldukça küçük olmaktadır. Örneğin, OUS grubunun 50 μ altı parçacık büyüklüğüne sahip olan numunelerin aktivasyon enerjileri, 2,5 ton için 20,298 kJ/mol iken, 7,5 ton için 22,316 kJ/mol değerine çıkmaktadır. Sonuç olarak, parçacık büyüklüğü değişikliğinde oluşan aktivasyon enerjisi farkları, basınç değişikliğinde oluşanlardan çok daha büyük olmaktadır. Şekil 4.16'da HN süreci için, OUS grubunun sabit parçacık büyüklüğü baz alınarak, değişen basıncın Arrhenius grafiği üzerindeki etkisi görülmektedir. MWS süreci için OUS grubunun ve HN ile MWS süreci için OÜP grubunun Arrhenius grafikleri ise Ek-4'te verilmiştir.

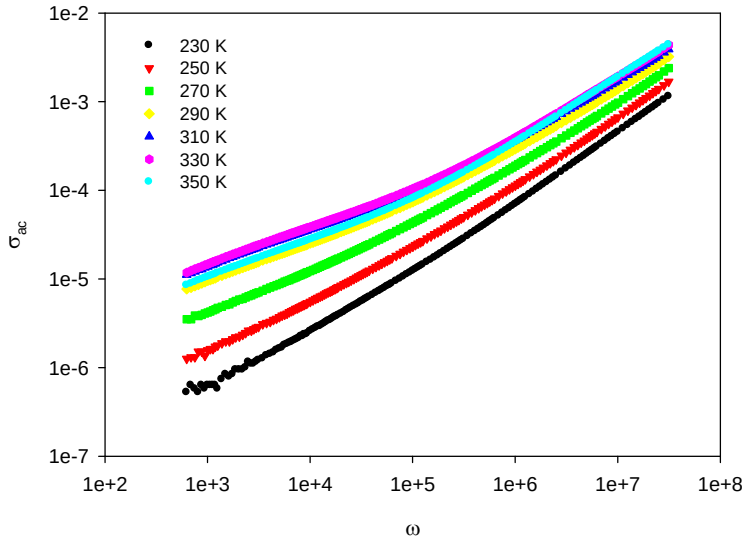


Şekil 4.16 HN süreci için, OUS grubunun a) 50 μ altı, b) 50-63 μ, c) 63-125 μ ve d) 125-250 μ için basınca göre Arrhenius grafiklerinin değişimleri

4.2.6. İletkenlik ölçüm sonuçları

Numunelerin ε'' sanal geçirgenlikleri, Denklem (3.51)'de tanımlanan $\sigma_{ac} = \sigma' = \varepsilon_0 \omega \varepsilon''$ ifadesinde kullanılarak, her bir numunenin iletkenlik değerleri hesaplanmıştır. Şekil 4.17'de OUS 5 ton 50 μ numunesinin, hesaplanan iletkenlik değerlerinin açısal frekansa göre değişimi, ara sıcaklık değerleri için verilmiştir. Hesaplanan iletkenlik değerleri, Denklem (3.121)'de $\sigma(\omega) = \sigma' = \sigma_0 + \mathrm{A}_\sigma \omega^n$ şeklinde tanımlanan kuvvet yasası denklemine fit edilerek, σ_0, A_σ ve n parametreleri belirlenmiştir. Çizelge 4.9'da ve Şekil 4.18'de bu parametrelerin sıcaklığa göre değişimi verilmiştir. Çizelgedeki değerlere göre, σ_0 ve A_σ parametreleri, Bona ve ark. (2002) tarafından bulunan değerlerle aynı mertebededir. n parametreleri, Jonscher (1983) ile Dyre ve Shroder (2000) tarafından öngörülen 0,6 ile 1,0 aralığına düşmekte olup, 310 K sıcaklığına kadar artan sıcaklıkla azalmakta, bu sıcaklıktan sonra artmaktadır. Ancak bu

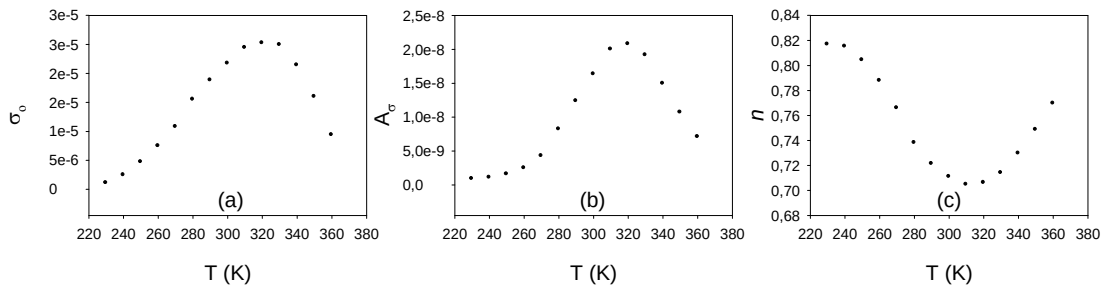
durum, diğer numuneler için genel olarak doğru olsa da, bazı numunelerde, incelenen tüm sıcaklıklarda, *n* parametresi sıcaklıkla azalmaktadır. Mansour ve ark. (2010), *n* parametresinin sıcaklıkla değişiminin, değişme biçimine göre dört farklı modelle açıklanabileceğini belirtmiştir. Bu çalışmada elde edilen *n* parametrelerinin sıcaklıkla değişimi, bu modellerden OLPT (overlapping-large polaron tunneling) modeline uymaktadır. Ancak bu çalışmada bu inceleme yapılmayacaktır.



Şekil 4.17 OUS 5 ton 50 μ numunesinin açısal frekansa göre iletkenlik grafiği

Çizelge 4.9 OUS 5 ton 50 μ numunesinin iletkenlik fit sonuçları

T(K)	230	240	250	260	270	280	290	300	310	320	330	340	350	360
σ_0 x10^{-5}	0,105	0,243	0,469	0,744	1,077	1,546	1,880	2,168	2,440	2,517	2,489	2,138	1,593	0,934
A_σ x10^{-8}	0,086	0,106	0,155	0,246	0,425	0,819	1,235	1,632	1,996	2,074	1,913	1,493	1,065	0,707
n	0,817	0,815	0,804	0,788	0,766	0,738	0,721	0,711	0,704	0,706	0,714	0,729	0,748	0,769



Şekil 4.18 OUS 5 ton 50 μ numunesinin a) σ_0, b) A_σ ve c) *n* parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

Benzer inceleme tüm numuneler için yapılmış olup, σ_0, A_σ ve n parametreleri sırasıyla Çizelge 4.10, 4.11 ve 4.12'da verilmiştir. İletkenliğin açısal frekansla ve fit parametrelerinin sıcaklıkla değişim grafikleri Ek-5'te verilmiştir.

Çizelge 4.10 Numunelerin iletkenlik fitinden elde edilen σ_0 parametreleri (S/m (x10^{-5}))

T (K)	230	250	270	290	310	330	350
OUS 2,5 ton 50 μ altı	0,0815	0,0990	0,0971	0,0168	-0,0994	-0,1605	-0,1781
OUS2,5 ton 50-63 μ	0,0170	0,0306	0,0430	0,0391	0,0217	0,0141	0,0169
OUS 2,5 ton 63-125 μ	0,1371	0,2694	0,3284	0,1107	-0,1440	-0,2659	-0,3911
OUS 2,5 ton 125-250 μ	0,0789	0,1447	0,1419	0,1164	0,0282	0,0059	-0,0122
OUS 5 ton 50 μ altı	0,1047	0,4691	1,0765	1,8800	2,4401	2,4890	1,5933
OUS 5 ton 50-63 μ	0,2579	0,3003	0,2022	-0,0787	-0,3996	-0,6539	-0,7561
OUS 5 ton 63-125 μ	0,0777	0,1504	0,1547	0,0183	-0,1335	-0,2100	-0,1787
OUS 5 ton 125-250 μ	0,0479	0,1423	0,0577	-0,1482	-0,3137	-0,3364	-0,3492
OUS 7,5 ton 50 μ altı	0,0256	0,0327	0,0287	0,0160	0,0061	0,0009	-0,0173
OUS 7,5 ton 50-63 μ	0,2388	1,0694	2,7281	5,8493	8,1585	5,9277	2,5834
OUS 7,5 ton 63-125 μ	0,0976	0,1964	0,1585	-0,0840	0,1885	0,8225	0,2819
OÜP 2,5 ton 50-63 μ	0,0041	0,0315	0,0543	0,0567	0,0467	0,0339	0,0218
OÜP 2,5 ton 125-250 μ	-0,0040	0,0485	0,1375	0,1755	0,1546	0,1149	*
OÜP 5 ton 50 μ altı	0,0026	0,0021	0,0652	-0,1063	-0,4463	-0,5204	-0,5158
OÜP 5 ton 50-63 μ	0,2034	0,4290	0,6987	0,8535	0,8093	0,6391	0,4314
OÜP 5 ton 63-125 μ	0,0954	0,2264	0,3415	0,1638	-0,1459	-0,2025	-0,3606
OÜP 5 ton 125-250 μ	0,0668	0,1314	0,2041	0,0655	-0,0859	-0,1308	-0,2026
OÜP 7,5 ton 50 μ altı	0,1899	0,4729	0,7801	0,9730	0,9720	0,8660	0,6889
OÜP 7,5 ton 50-63 μ	0,0906	0,1757	0,2340	0,1233	-0,1104	-0,2534	-0,3050
OÜP 7,5 ton 63-125 μ	0,0674	0,1313	0,1804	0,0144	-0,1923	-0,1726	-0,2091
OÜP 7,5 ton 125-250 μ	0,0790	0,1282	0,1709	0,1193	-0,0080	-0,0779	-0,0973

*: Deneysel veri elde edilemedi

Çizelge 4.11 Numunelerin iletkenlik fitinden elde edilen A_σ parametreleri (S/m .s^n(x10^{-8}))

T (K)	230	250	270	290	310	330	350
OUS 2,5 ton 50 μ altı	0,0312	0,0610	0,1650	0,4006	0,6281	0,7048	0,7019
OUS2,5 ton 50-63 μ	0,0048	0,0047	0,0111	0,0319	0,0574	0,0622	0,0540
OUS 2,5 ton 63-125 μ	0,0624	0,1973	0,6674	1,8503	2,4782	2,4276	2,0369
OUS 2,5 ton 125-250 μ	0,0269	0,0840	0,2465	0,4122	0,5407	0,4583	0,2658
OUS 5 ton 50 μ altı	0,0857	0,1553	0,4246	1,2346	1,9964	1,9134	1,0649
OUS 5 ton 50-63 μ	0,2045	0,4340	1,2085	2,3164	3,1083	3,0822	2,5478
OUS 5 ton 63-125 μ	0,0235	0,0877	0,2981	0,7311	1,4408	1,1965	1,0592
OUS 5 ton 125-250 μ	0,0340	0,2351	0,9064	1,8518	2,1541	1,9310	1,8981
OUS 7,5 ton 50 μ altı	0,0007	0,0018	0,0045	0,0094	0,0129	0,0160	0,0201
OUS 7,5 ton 50-63 μ	0,2977	0,5602	1,3255	3,4390	6,0717	6,2493	4,2218
OUS 7,5 ton 63-125 μ	0,0926	0,3893	1,6440	4,3399	6,1383	5,5027	3,9156
OÜP 2,5 ton 50-63 μ	0,0012	0,0011	0,0022	0,0056	0,0118	0,0167	0,0153
OÜP 2,5 ton 125-250 μ	0,0243	0,0401	0,1018	0,2718	0,3883	0,3124	*
OÜP 5 ton 50 μ altı	0,0000	0,0001	0,3580	1,0399	1,5905	1,4366	1,1474
OÜP 5 ton 50-63 μ	0,1177	0,2857	1,0555	3,3448	6,8261	7,8064	5,6481
OÜP 5 ton 63-125 μ	0,0864	0,2597	0,8737	2,5108	3,4648	2,4867	1,7418
OÜP 5 ton 125-250 μ	0,0294	0,1426	0,5240	1,4295	1,8439	1,4647	1,2541
OÜP 7,5 ton 50 μ altı	0,0977	0,2251	0,6876	2,2195	4,5845	5,7845	4,8582
OÜP 7,5 ton 50-63 μ	0,0611	0,1674	0,5307	1,4277	2,4141	2,3277	1,7195
OÜP 7,5 ton 63-125 μ	0,0253	0,1265	0,5839	1,7037	2,6395	2,1821	1,6812
OÜP 7,5 ton 125-250 μ	0,0324	0,0809	0,2158	0,5087	0,8161	0,7195	0,4922

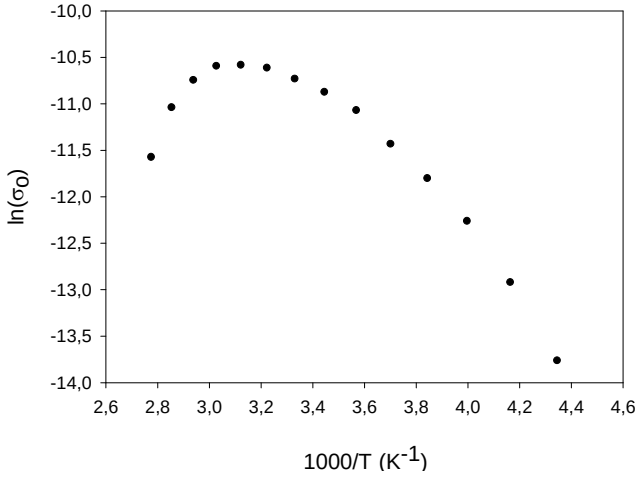
*: Deneysel veri elde edilemedi

Çizelge 4.12 Numunelerin iletkenlik fitinden elde edilen *n* parametreleri

T (K)	230	250	270	290	310	330	350
OUS 2,5 ton 50 μ altı	0,790	0,766	0,728	0,696	0,684	0,682	0,678
OUS2,5 ton 50-63 μ	0,825	0,834	0,800	0,755	0,733	0,734	0,741
OUS 2,5 ton 63-125 μ	0,784	0,746	0,703	0,668	0,667	0,675	0,667
OUS 2,5 ton 125-250 μ	0,798	0,761	0,725	0,713	0,707	0,704	0,697
OUS 5 ton 50 μ altı	0,817	0,804	0,766	0,721	0,704	0,714	0,748
OUS 5 ton 50-63 μ	0,744	0,717	0,679	0,659	0,655	0,663	0,671
OUS 5 ton 63-125 μ	0,802	0,755	0,710	0,681	0,670	0,677	0,673
OUS 5 ton 125-250 μ	0,777	0,721	0,675	0,659	0,660	0,660	0,633
OUS 7,5 ton 50 μ altı	0,902	0,862	0,813	0,783	0,770	0,752	0,740
OUS 7,5 ton 50-63 μ	0,754	0,742	0,712	0,675	0,652	0,654	0,677
OUS 7,5 ton 63-125 μ	0,766	0,715	0,665	0,638	0,641	0,660	0,680
OÜP 2,5 ton 50-63 μ	0,933	0,950	0,922	0,879	0,847	0,832	0,833
OÜP 2,5 ton 125-250 μ	0,806	0,810	0,784	0,751	0,743	0,759	*
OÜP 5 ton 50 μ altı	0,981	0,926	0,680	0,649	0,647	0,666	0,676
OÜP 5 ton 50-63 μ	0,776	0,744	0,691	0,645	0,621	0,622	0,643
OÜP 5 ton 63-125 μ	0,752	0,718	0,675	0,636	0,634	0,661	0,671
OÜP 5 ton 125-250 μ	0,788	0,732	0,687	0,654	0,655	0,670	0,667
OÜP 7,5 ton 50 μ altı	0,795	0,766	0,721	0,673	0,647	0,644	0,657
OÜP 7,5 ton 50-63 μ	0,770	0,737	0,694	0,658	0,643	0,654	0,672
OÜP 7,5 ton 63-125 μ	0,798	0,738	0,684	0,649	0,644	0,665	0,678
OÜP 7,5 ton 125-250 μ	0,800	0,772	0,738	0,708	0,696	0,710	0,729

*: Deneysel veri elde edilemedi

Yapılan fit işlemlerinden elde edilen σ_0 parametresi, 10^{-5} ile 10^{-8} boyutu arasında kalmaktadır. Ancak, bazı numunelerde bu parametre, 280 K ve üzeri sıcaklıklarda negatif değerler almaktadır. Tüm numunelerde, σ_0 parametresi, 310-320 K sıcaklıklarına kadar artan sıcaklıkla artarak maksimum değerine ulaşırken, bu sıcaklık bölgesinden sonra, artan sıcaklıkla azalmaktadır. Bu nedenle, σ_0'ın sıcaklığın tersine göre çizilmesi ile oluşan grafik, Arrhenius tipi bir davranış göstermemektedir. OUS 5 ton 50 μ altı numunesi için bu durum Şekil 4.19'da verilmiştir.



Şekil 4.19 OUS 5 ton 50 μ numunesi için hesaplanan σ_0 parametresinin, sıcaklığın tersine göre değişimi

5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

Çalışmada farklı miktarda montmorillonit içeren iki kil numunesinin dielektrik özellikleri incelendi. Bu incelemede, temel olarak, montmorillonit miktarının, parçacık büyüklüğünün, pelet basıncının, sıcaklığın ve numunelerin maruz kaldığı vakumun dielektrik özelliklere etkisi ele alındı.

İlk önce, deneysel olarak elde edilen kondüktans ve suseptans değerlerinden reel ve sanal geçirgenlik ile, bunların birbirine oranı olan kayıp tanjantlar hesaplandı. Numunelerin düşük frekanslardaki kondüktans ve suseptans değerlerinin çok küçük olması nedeniyle ölçümlerde kullanılan analizör bu düşük frekanslarda oldukça kararsız tepkiler vermiştir. Bu yüzden hesaplamalar 100 Hz frekansından başlayacak şekilde yapıldı. Ayrıca, hesaplanan reel ve sanal geçirgenlikler kullanılarak Cole-Cole grafikleri çizildi. Ancak, bu çizimlerde durulmayı temsil eden pikler gözlenemedi. Bu yüzden, süreçleri daha iyi yorumlayabilmek için, elektrik modülü formalizmi kullanıldı.

İncelemeler dört ana grupta değerlendirilebilir. Bunlar; oda sıcaklığı ölçümleri, sabit frekansta sıcaklık ölçümleri, sabit sıcaklıkta frekans ölçümleri ve iletkenlik ölçümleri şeklindedir. Oda sıcaklığı ölçümlerinde, neredeyse tüm numunelerde, kayıp tanjant grafiklerinin yaklaşık 10^5 rad/s frekansında keskin bir durulma piki verdiği ve pik genliklerinin oldukça büyük olduğu gözlenmiştir. Numunelerin bulunduğu ortam vakumlandığında, bu piklerin daha düşük frekansa doğru kaydığı, pik genliklerinin küçüldüğü ve piklerin yarı yükseklikteki genişliklerinin arttığı görülmektedir. Durulma frekanslarındaki bu azalmanın (durulma zamanlarındaki artmanın), numune içerisindeki nemin uzaklaşmasından ve ortam basıncının azalmasından kaynaklandığı düşünülebilir.

Sabit frekans ölçümlerinde, reel ve sanal geçirgenlikler belli sıcaklık değerlerinde (310 K – 320 K) pik vermekte ve artan frekansla bu pikler, yüksek sıcaklığa doğru yaklaşık 10 K kadar kaymaktadır. Ayrıca artan frekansla reel ve sanal geçirgenlik değerleri de azalmaktadır. Yine bu ölçümlerde, kayıp tanjantların da belli sıcaklık değerlerinde pik verdiği gözlenirken, bu piklerin artan frekansla yüksek sıcaklığa doğru yaklaşık 40 K kadar kaydığı görülmektedir.

Sabit sıcaklık ölçümlerinde, her numune için, 230 K – 360 K arasında 10 K'lik artışlarla toplam ondört sabit sıcaklıkta ölçümler alınmıştır. Düşük sıcaklıklarda elektrik modülünde çizilen Cole-Cole grafikleri yarım daireyi tamamlamaya yaklaşırken, sıcaklık arttıkça çeyrek daireye doğru bir gidiş olmaktadır. Kayıp tanjant grafiklerinde gözlenen piklerin ise, belli bir sıcaklık değerine (310 K – 320 K) kadar, artan sıcaklıkla

yüksek frekanslara doğru, bu sıcaklık değerinden sonra düşük frekanslar kısmına doğru kaydığı görülmektedir.

Elde edilen deneysel verilere, yönelimli (HN) ve arayüzeysel (MWS) süreçlerinin her ikisini birden temsil etmek üzere oniki parametreli genel bir denklem kullanılarak fit yapılıp, fit parametreleri elde edilmiştir. Deneysel verilerin fit edilmesinde kullanılan oniki parametreli teorik bağıntı ile çok iyi uyumlu fitler elde edilmekle birlikte, τ durulma zamanları dışındaki parametrelerdeki değişimlerde bir düzen yoktur. Üstelik bu durulma zamanlarındaki düzen, yalnızca Arrhenius tipi davranış gösteren 230 K - 310 K arasında gözlenmektedir. Bu sıcaklık aralığındaki durulma zamanları kullanılarak, tüm numunelerin HN ve MWS süreçlerindeki aktivasyon enerjileri hesaplanmıştır. Literatürle karşılaştırıldığında, bu enerji değerlerinin uyumlu olduğu söylenebilir. Bulunan sonuçlara göre, HN sürecinde, yüzde yüz montmorillonitten oluşan OUS numunelerinin aktivasyon enerjisinin, yüzde seksen beş montmorillonit içeren OÜP numunelerinin aktivasyon enerjisinden daha küçük olduğu, MWS sürecinde ise daha büyük olduğu belirlenmiştir. Her iki numune grubu için, HN ve MWS süreçlerinde, artan parçacık büyüklüğü ve artan basınçla aktivasyon enerjilerinin büyüdüğü tespit edilmiştir.

İletkenliklerin frekansa göre çizilen grafiklerinde, artan frekansla iletkenliğin de arttığı görülmektedir. Bununla birlikte, belli bir sıcaklık değerine kadar (310 K – 320 K), artan sıcaklıkla iletkenliğin arttığı, bu sıcaklıktan sonra, artan sıcaklıkla iletkenliğin azaldığı görülmektedir. Çizilen grafiklere kuvvet yasası bağıntısı fit edilerek, σ_0 dc iletkenliği ile A_σ ve *n* parametreleri hesaplanmıştır. Tüm numuneler için hesaplanan bu üç parametrenin sıcaklıkla belli bir düzen içinde değiştiği görülmektedir.

Oniki parametreli bağıntıdan elde edilen τ durulma zamanlarının ve kuvvet yasası fitinden elde edilen σ_0 dc iletkenliklerinin, 310 K – 320 K'den sonraki sıcaklıklarda gösterdiği anormal durum incelenmeli ve bu yüksek sıcaklık bölgesinde malzemenin neden böyle tersine bir tepki gösterdiği araştırılmalıdır. Bu durum, Arrhenius tipi bir davranışa uymadığı gibi, Vogel-Fulcher-Tammann (VFT), Mod-Eşleşme-Teorisi (MCT) ve bilinen diğer davranışlarla da açıklanamamaktadır. Herhangi bir sürece sıcaklığın etkisinin bir ölçüsü olan bu tip modellerde, elde edilen grafikler hep negatif eğimlidir. Bu çalışmadaki grafiklerde, 310 K – 360 K arasındaki bölgede, eğriler pozitif eğimlidir. Bununla birlikte, yönelimli, arayüzeysel ve iletkenlik

durulması aktivasyon enerjilerini, bu sıcaklık aralığını da kapsayacak şekilde hesaplamak için yeni bir modelin türetilmesi gerekmektedir.

Daha sonraki çalışmalarda, belli sıcaklıklarda tepkinin tersine dönmesinin malzemedeki nemden kaynaklanıp kaynaklanmadığını anlamak için, numuneler yüksek sıcaklıklara çıkartılıp, sahip olduğu tüm nemin atılması sağlanarak ölçümler yapılacaktır. Ayrıca, durulma zamanlarını tespit etmek için, Kohlrausch-Williams-Watts (KWW) durulma zamanları dağılım fonksiyonu kullanılarak süreç analiz edilmeye çalışılacaktır. Diğer bir çalışmada ise, kuvvet yasası fitlerinden elde edilen *n* parametrelerinin uyduğu OLPT modeli detaylı olarak araştırılacaktır.

100 Hz'in altındaki frekanslarda oluşan kararsızlıklar nedeniyle, bu frekans bölgesinde tepkinin nasıl olduğu çok iyi anlaşılamamaktadır. Epoksi reçinesi, bor ve diğer bazı malzemelerle alınan deneme ölçümlerinde, bu bölgede daha kararlı değerler elde edilmiş olması, bu sorunun deney sistemiyle ilgili olmadığını ve malzemeden kaynaklandığını göstermektedir. Numunenin pelet kalınlığının azaltılması (örneğin 0,5 mm gibi) okuma çözünürlüğünü artırmasına, dolayısıyla kararsızlıkları azaltmasına rağmen, incelenen numunelerin aşırı kırılgan yapıda olmaları nedeniyle daha ince peletler oluşturulamamaktadır. Ayrıca, 100 Hz'in altındaki frekanslarda, bazı araştırmacıların (Shusta ve ark., 2007; Mansour ve ark., 2010; Perrier ve Bergeret, 1995) yaptığı gibi, ölçümlerin bir köprü devresiyle alınması, bu bölgedeki verilerin daha doğru olmasını sağlayacaktır.

KAYNAKLAR

Anderson, J. C., 1967, Dielectrics, *Chapman and Hall LTD*, London.

Anonymous-1, 2010, Clay [online], http://en.wikipedia.org/wiki/Clay, [Ziyaret Tarihi: 13 Eylül 2010].

Anonymous-2, 2010, Clay minerals [online], http://en.wikipedia.org/wiki/Clay_minerals, [Ziyaret Tarihi: 13 Eylül 2010].

Anonymous-3, 2010, Montmorillonite [online], http://en.wikipedia.org/wiki/Montmorillonite, [Ziyaret Tarihi: 13 Eylül 2010].

Arroyo, F. J., Carrique, F., Jimenez-Olivares, M. L. and Delgado, A.V., 2000, Rheological and Electrokinetic Properties of Sodium Montmorillonite Suspensions, *Journal of Colloid and Interface Science*, 229, 118-122.

Axelrod, E., Givant, A., Shappir, J., Feldman, Y. and Sa'ar, A., 2002, Dielectric Relaxation and Transport in Porous Silicon, Physical Review B, *Physical Review B: Condensed Matter and Materials Physics*, 65, 165429-(1-7).

Bailey, S. V., 1980a, Summary of recommendations of AIPEA nomenclature committee on clay minerals, *American Mineralogist*, 65, 1-7.

Blum, G., Maier, H., Sauer, F. and Schwan, H. P., 1995, Dielectric Relaxation of Colloidal Suspensions at Radio Frequencies Caused by Surface Conductance, *Journal of Physical Chemistry*, 99, 780-789.

Bobnar, V., Lunkenheimer, P., Loidl, A., Kaul, E. E. and Geibel, C., 2002, Dielectric Properties of the Low Dimensional Vanadium Oxides $Ba_2V_3O_9$ and $Sr_2V_3O_9$, *Solid State Communications*, 122, 595-599.

Bona, N., Ortenzi, A. and Capaccioli, S., 2002, Advanced in Understanding the Relationship between rock wettability and High-Frequency Dielectric Response, *Journal of Petroleum and Engineering*, 33, 87-99.

Calvet, R., 1975, Dielectric Properties of Montmorillonites Saturated by Bivalent Cations, *Clays and Clay Minerals*, 23, 257-265.

Cava, R. J., Flemin, R. M., Littlewood, P., Rietman, E. A., Schneemeyer, L. F. and Dunn, R. G., 1984, Dielectric Response of the Charge-Density Wave in $K_{0,3}MoO_3$, *Physical Review B: Condensed Matter and Materials Physics*, 30(6), 3228-3229.

Chelkowski, A., 1980, Dielectric Physics, *Institte of Physics, Silesian University Katowice*, Poland.

Cole, K. S., Cole, R. H., 1941, Dispersion and Absorbtion in Dielectrics -I Alternating Current Characteristics, *Journal of Chemical Physics*, 9, 341-352.

Costa, M. M., Pires Junior, G. F. M. and Sombra, A. S. B., 2010, Dielectric and Impedance Properties' Studies of the of Lead Doped (PbO)-Co_2Y Type Hexaferrite ($Be_2Co_2Fe_{12}O_{22}(Co_2Y)$), *Materials Chemistry and Physics*, 123, 35-39.

Çelik, M., Karakaya, N. ve Temel, A., 1997, Giresun Yöresi Kaolin-Alunit ve Diğer Metal Dışı Mineralleşmelerin Özelliklerinin İncelenmesi ve Ekonomik Öneminin Araştırılması, *TÜBİTAK YDABÇAG-139*, 172s.

Çelik, M., Karakaya, N. and Temel, A., 1999, Clay Minerals in Hydrothermally Altered Volcanic Rocks, Eastern Pontides, Turkey, *Clays and Clay Minerals*, 47 (6), 708-717.

Dainel, V., 1967, Dielectric Relaxation, *Academic Press*, London.

Das, P. S., Chakraborty, P. K., Behera, B. and Choudhary, R. N. P., 2007, Electrical Properties of $Li_2BiV_5O_{15}$ Ceramics, *Physica B: Condensed Matter*, 395, 98-103.

Davidson, D. W. and Cole, R. H., 1951, Dielectric Relaxation in Glycerol, Propylene Glycol, and n-Propanol, *The Journal of Chemical Physics*, 19 (12), 1484-1490.

Debye, P., 1929, Polar Molecules, *Dover Publications Inc. Reinhold Publising Corporation*, Germany.

Deryal, A., 2004, Montmorillonit Kilinin Dielektrik Özelliklerinin 5 Hz – 13 MHz Frekans Aralığında İncelenmesi, Yüksek Lisans Tezi, *Selçuk Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, Konya.

Diandra, L., Pelecky, L. and Birge, N. O., 1994, Dielectric Measurement of the Model Glass Transition in Orientationally Disordered Cyclo-Octanol, *Physical Review B: Condensed Matter and Materials Physics*, 50 (18), 13250-13259.

Dudley, L. M., Bialkowski, S., Or, D. and Junkermeier, C., 2003, Low Frequency Impedance of Montmorillonite Suspensions: Polarization Mechanism in the Low Frequency Domain, *Soil Science Society of America Journal*, 67, 518-526.

Durmuş, H., Küçükçelebi, H., Güleç, A., Deryal, A., Karakaya, N. ve Zengin, S., 2008, Montmorillonit Türü Kil Mineralllerinde Nemin ve Sıcaklığın Dielektrik Durulma Süreçlerine Etkisi, *Selçuk Üniversitesi Fen-Edebiyat Fakültesi Fen Dergisi*, 32, 71-80.

Dutta, P., Biswas, S., Kumar De, S., 2002, Dielectric Relaxation in Polyaniline-Polyvinyl Alcohol Composites, *Materials Research Bulletin*, 32, 193-200.

Dyre, J. C. and Schroder, T. B., 2000, Universality of AC Conduction in Disordered Solids, *Reviews of Modern Physics*, 72(3), 873-892.

Einfeldt, J., MeiBner, D. and Kwasniewski, A., 2001, Polymerdynamics of Cellulose and Other Polysaccharides in Solid State-Secondary Dielectric Relaxation Processes, *Progress in Polymer Science*, 26, 1419-1472.

Fasquelle, D., Rousseau, A., Guilloux-Viry, M., Deputier, S., Perrin, A. and Carru, J.C., 2010, Dielectric and Structural Characterization of $KnBO_3$ Ferroelectric Thin Films Epitaxially Grown by Pulsed Laser Deposition on Nb Doped $SrTiO_3$, *Thin Solid Films*, 518, 3432-3438.

Fröhlich, H., 1958, Theory of Dielectrics: Dielectric Constant and Dielectric Loss, *Oxford at the Clarendon Press*, London.

Gatos, K. G., Martinez Alcazar, J. G., Psarras, G. C., Thomann, R. and Karger-Kocsis, J., 2007, Polyurethane Latex/Water Dispersible Boehmite Alumina Nanocomposites: Thermal, Mechanical and Dielectrical Properties, *Composites Science and Technology*, 67, 157-167.

Gökçen, M., 2008, Au/SiO2/n-GaAs (MOY) Yapıların Elektrik ve Dielektrik Karakteristiklerinin Frekans ve Sıcaklığa Bağlı İncelenmesi, Doktora Tezi, *Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, Ankara.

Guranich, P., Shusta, V., Gerzanich, E., Slivka, A., Kuritsa, I. and Gamonnai, O., 2007, Influence of Hydrostatic Pressure on the Dielectric Properties of $CuInP_2S_6$ and $CuInP_2Se_6$ Layered Crystals, *Journal of Physics: Conference Series*, 79, 012009-(1-4).

Hairetdinov, E. F., Uvarov, N. F. and Patel, H. K., 1996, Disadvantages of Electric Modulus Formalism in Description of Electrical Relaxation in Solids, *Ferroelectrics*, 176 (1), 2123-219.

Hammami, H., Arous, M., Lagache, M., Kallel, A., 2007, Study of Interfacial MWS Relaxation by Dielectric Spectroscopy in Unidirectional PZT Fibres/Epoxy Resin Composites, *Journal of Alloys and Compounds*, 430, 1-8.

Havriliak, S., Negami, S., 1966, A Complex Plane Analysis of Alpha-Dispersions in Some Polymer Systems, *Journal of Polymer Science: Part C*, 14, 99-117.

Hedvig, P., 1977, Dielectric Spectroscopy of Polymers, *John Wiley & Sons*, New York.

Hilker, B., Fields, K. B., Stern, A., Space, B., Zhang, X. P. and Harmon, J. P., 2010, Dielectric Analysis of Poly(Methyl Methacrylate) Zinc(II) Mono-Pinacolborane Diphenylporphyrin Composites, *Polymer*, 51, 4790-4805.

Hippel, A. R. V., 1954, Dielectrics and Waves, *The M.I.T. Press*, Massachusets.

Hoekstra, P. and Delaney, A., 1974, Dielectric Properties of Soils at UHF and Microwave Frequencies, *Journal of Geophysical Research*, 79 (11), 1699-1708.

Haouzi, A., Kharroubi, M., Belarbi, H., Devautour-Vinot, S., Henn, F., Giuntini, J. C., 2004, Activation Energy for dc Conductivity in Dehydrated Alkali Metal-Exchanged Montmorillonites: Experimental Results and Model, *Applied Clay Science*, 27, 67-74.

Howell, B. F. Jr. and Licastro, P. H., 1961, Dielectric Behaviour of Rocks and Minerals, *The American Mineralogist*, 46, 269-287.

Hwang, Y. H., Seo, J. A., Kwon, H. J. and Kim, H. K., 2007, Relaxation Dynamics of Sugar Glasses, *Rep. Institute of Fluid Science*, 19, 27-34.

İyibakanlar, G., 2003, Polimerlerin Dilektrik Özelliklerinin Sıcaklık ve Frekansla Değişimlerinin İncelenmesi, Doktora Tezi, *Anadolu Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, Eskişehir.

İzci, E., 2001, Gördes Yöresi Doğalklinoptilolitin Doğal ve İyon Değiştirmiş Formlarının Dielektrik Özelliklerinin İncelenmesi, Doktora Tezi, *Anadolu Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, Eskişehir.

Jonscher, A. K., 1977, The 'Universal' Dielectric Response, *Nature*, 267, 673-679.

Jonscher, A. K., 1978, Low-Frequency Dispersion in Carrier-Dominated Dielectrics, *Philosophical Magazine B*, 38 (6), 587-601.

Jonscher, A. K., 1983, Dielectric Relaxation in Solids, *Chelsea Dielectric Press*, London.

Kao, K. C., 2004, Dielectric Pheomena in Solids, *Elsevier Academic Press*, California.

Karakaya, M. Ç., 2006, Kil Minerallerinin Özellikleri ve Tanımlama Yöntemleri, *Bizim Büro Basımevi*, Ankara.

Kaya, A., Fang., H. Y., 1997, Identification of Contaminated Soils by Dielectric Constant and Electrical Conductivity, *Journal of Environmental Engineering*, 123 (2), 169-177.

Kedyulich, V. M., Slivka, A. G., Gerzanich, E. I. and Guivan, A. M., 2002, The Effect of Hydrostatic Pressure on Transverse Dielectric Permeability of KH_2PO_4 Crystals, *Condensed Matter Physics*, 5 (4(32)), 761-767.

Keymeulen, J. V. and Dekeyser, W., 1957, Dielectric Loss of and Defects in Clay Minerals, *Journal of Chemical Physics*, 77 (1), 172-175.

Kremer, F., 2002, Dielectric Spectroscopy-Yesterday, Today and Tomorrow, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 305 (1-3), 1-9.

Kundu, S. K. and Chaudhuri, B. K., 2003, Dielectric Relaxation Behavior of A Liquid Crystal Showing An Unusual Type of Antiferroelectric-Ferroelectric-Antiferroelectric Phase Sequence, *Physical Review E*, 67, 041704-(1-5).

Lee, B. W. and Auh, K. H., 2001, Effect of Internal Stress on the Dielectric Properties of Barium Titanate Ceramics, *Journal of Ceramic Processing Research*, 2 (3), 134-138.

Liu, J., Duan, C. G., Yin, W. G., Mei, W. N., Smith, R. W. and Hardy, J. R., 2004, Large Dielectric Constant and Maxwell-Wagner Relaxation in $Bi_{2/3}Cu_3Ti_4O_{12}$, *Physical Review B: Condensed Matter and Materials Physics*, 70, 144106-(1-7).

Logsdon, S., Laird, D., 2004, Cation and Water Content Effects on Dipole Rotation Activation Energy of Smectites, *Soil Science Society of America Journal*, 68, 1586-1591.

Lunkenheimer, P, Pimenov, A., Schiener, B., Böhmer, R. and Loidl, A., 1996, High-Frequency Dielectric Spectroscopy on Glycerol, *Europhysics Letters*, 33 (8), 611-616.

Macedo, P. B., Moynihan, C. T. and Bose, R., 1972, The Role of Ionic Diffusion in Polarization in Vitreous Ionic-Conductors, *Physics and Chemistry Glasses*, 13, 171-179.

Mansour, S. A., Yahia, I. S. and Sakr, G. B., 2010, Electrical Conductivity and Dielectric Relaxation Behavior of Fluorescein Sodium Salt (FSS), *Solid State Communication*, 150, 1386-1391.

Maxwell, J. C., 1865, A Dynamical Theory of Electromagnetic Field, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, 155, 459-512.

Maxwell, J. C., 1892, A Treatise on Electricity and Magnetism, 3rd edition, vol. 2, reissued 1954, *Oxford Clarendon*, London.

McCrum, N. G., Read, B. E. and Willams, G., 1967, Anelastic and Dielectric Effects in Polymeric Solids, *John Wiley*, London, 102-121.

Mierzwa, M., Floudas, G. and Wegner, G., 2000, Effect of Pressure on the Side-Chain Crystallization of Poly (N-Octadecyl Methacrylated) Studied by Dielectric Spectroscopy, *Dielectric Newsletter*, Issue June, 1-8.

Mitchell, J. K., Asce, M. and Arulanandan, K., 1968, Electrical Dispersion in Relation to Soil Structure, *Journal of the Soil Mechanics and Foundation Division*, 94, SM 2, 443-470.

Molak, A., Paluch, M., Klimontko, J., Ujma, Z. and Gruszka, I., 2005, Electric Modulus Approach to the Analysis of Electric Relaxation in Highly Conducting $(Na_{0,75}Bi_{0,25})(Mn_{0,25}Nb_{0,75})O_3$ Ceramics, *Journal of Physics D: Applied Physics*, 38, 1450-1460.

Mostafa, M. F., AbdelKader, M. M. and Arafat, S. S., 2002, Conductivity and Permittivity Studies in the Diluted Perovskite System $[(NH_3)(CH_2)_6(NH_3)]Fe_xZn_{1-x}Cl_4$,x=1, 08, 05, and 0, *Zeitschrift für Naturforschung*, 57a, 897-908.

Moynihan, C. T., 1994, Analysis of Electrical Relaxation in Glasses and Melts with Large Concentrations of Mobile Ions, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 172-174, 1395-1407.

Moynihan, C. T., 1998, Description and Analysis of Electrical Relaxation Data for Ionically Conducting Glasses and Melts, *Solid State Ionics*, 105, 175-183.

Moynihan, C. T., Boesch, L.P. and Laberge, N. L., 1973, Decay Function for the Electric Field Relaxation in Vitreous Ionic Conductors, *Journal of Physics and Chemistry of Glasses*, 14, 122-125.

Mpoukouvalas, K., Gomopoulos, N., Floudas, G., Herrmann, C., Hanewald, A. and Best, A., 2006, Effect of Pressure on the Segmental Dynamics of Bisphenol-A-Polycarbonate, *Polymer*, 47, 7170-7177.

Nikonorova, N. A., Barmatov, E. B., Pebalk, D. A., Barmatova, M. V., Dominguez-Espinosa, G., Diaz-Calleja,R. and Pissis, P., 2007, Electrical Properties of Nanocomposites Based on Comb-Shaped Nematic Polymer and Silver Nanoparticles, *Journal of Physical Chemistry*, 111, 8451-8458.

Nobre, M. A. L. and Lanfredi, S., 2003, Dielectric Spectroscopy on $Bi_3Zn_2Sb_3O_{14}$ Ceramics: An Approach Based on the Complex Impedance, *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 64, 2457-2464.

Paluch, M., Ziolo, J., Rzoska, S. J. and Habdas, P., 1996, High-Pressure and Temperature Dependence of Dielectric Relaxation in Supercooled Di-Isobutyl Phthalate, *Physical Review E*, 54 (4), 4008-4011.

Parlaktürk, F., 2007, $Au/Bi_4Ti_3O_{12}/SiO_2/n$-Si (MFIS) Yapıların Hazırlanması, Elektriksel ve Dilektrik Özelliklerinin Frekans ve Sıcaklığa Bağlı İncelenmesi, Doktora Tezi, *Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, Ankara.

Pastor, M., Goenka, S., Maiti, S., Biswas, K. and Manna, I., 2010, Phase Evolution, Dielectric and Impedance Spectroscopic Study of $SrNb_2O_6$ Columbite Phase, *Ceramics International*, 36, 1041-1045.

Perrier, G. and Bergeret, A., 1995, Maxwell-Wagner-Sillars Relaxation in Polystyrene-Glass-Bead Composites, *Journal of Applied Physics*, 77 (6), 2651-2658.

Prabakar, K., Narayandass, SA. K. and Mangalaraj, D., 2002, Impedance and Electric Modulus Analysis of $Cd_{0,6}Zn_{0,4}Te$ Thin Films, *Crystal Research and Technology*, 37, 1094-1103.

Prabu, M., Selvasekarapandian, S., Kulkarni, A. N., Hirankumar, G. and Sanjeeviraja, C., 2010, Conductivity and Dielectric Studies on $LiCeO_2$, *Journal of Rare Earths*, 28 (3), 435-438.

Psarras, G. C., Manolakaki, E. and Tsangaris, G. M., 2002, Electrical Relaxations in Polymeric Particulate Composites of Epoxy Resin and Metal Particles, *Composites: Part A*, 33, 375-384.

Raghavender, M., Kumar, G. S. and Prasad, G., 2004, Complex Impedance Studies on Layer Structured Lanthanum Substituted SBT Ceramics, *International Symposium of Research Students on Material Science and Engineering*, Chennai, India.

Raissi, T., Ramdani, N., Ibos, L. and Candau, Y., 2005, Guarenteed Method for the Estimation of Dielectric Relaxation Model Parameters, *Proceeding of the 5th International Conference on Inverse Problems in Engineering: Theory and Practice*, Cambridge, United Kingdom, R01 (1-7).

Raythatha, R. and Sen, P. N., 1986, Dielectric Properties of Clay Suspensions in MHz to GHz Range, *Journal of Colloid and Interface Science*, 109(2), 301-309

Saad, E. A. F. I., 2005, Effect of Phase Change on Dielectric Properties of Zinc Phthalocyanine Thin Films, *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials*, 7 (6), 3127-3134.

Salman, F., 2004, AC Conductivity and Dielectric Study of Chalcogenide Glasses of Se-Tre-Ge System, *Turkish Journal of Physics*, 28, 41-48.

Schwan, H. P., Schwarz, G., Maczuk, J. and Pauly, H., 1962, On the Low-Frequency Dielectric Dispersion of Colloidal Particles in Electrolyte Solution, *Journal of Physical Chemistry*, 66, 2626-2635.

Scwagierczak, D. and Kulawik, J., 2010, Dielectric Properties of High Permittivity Ceramics Based on $Dy_{2/3}CuTa_4O_{12}$, *Journal of Alloys and Compounds*, 491, 465-471.

Sengwa, R. J., Choudhary, S., Sankhla, S., 2009, Dielectric Spectroscopy of Hydrophilic Polymer-Montmorillonite Clay Nanocomposite Aqueous Colloidal Suspension, *Colloid and Surface A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 336, 79-87.

Shusta, V. S., Prits, I. P., Guranich, P. P., Gerzanich, E. I. and Slivka, A. G., 2007, Dielectric Properties of $CuInP_2S_6$ Crystals Under High Pressure, *Condansed Matter Physics*, 10 (1(49)), 91-94.

Sillars, R. H., 1937, The Properties of Dielectrics Containing semi-Conducting Particles Various Shapes, *Journal of Institute of Electrical and Electronic Engineers*, 80, 378-394.

Simon, U. and Flesch, U., 1999, Cation-Cation Interaction in Dehydrated Zeolites X and Y Monitored by Modulus Spectroscopy, *Journal of Porous Materials*, 6, 33-40.

Singh, R., Tandon, R. P., Panwar, V. S. and Chandra, S., 1991, Low Temperature Relaxation in Polypyrole, *Journal of Chemical Physics*, 95(1), 722-723.

Smits, A. L. M., Wübbenhorst, M., Kruiskamp, P. H., van Soest, J. J. G., Vligenthart, J. F. G. and van Turnhout, J., 2001, Structure Evolution in Amylopectin/Ethylene Glycol Mixtures by H-Bond Formation and Phase Seperation Studied with Dielectric Relaxation Spectroscopy, *Journal of Physical Chemistry B*, 105, 5630-5636.

Smyth, C. P., 1955, Dielectric Behavior and Structure, Dielectric Constant and Loss, Dipole Moment and Molecular Structure, *McGraw-Hill*, ABD.

Starkweather, H. W. and Avakian, P., 1992, Conductivity and the Electric Modulus in polymers, *Journal of Polymer Science: Part B: Polymer Physics*, 30, 637-641.

Suchanicz, J. and Wojcik, K., 2003, Effect of External Stress on Dielectric Properties of $PbTiO_3$ Single Crystal, *Materials Science and Engineering*, B104, 31-35.

Taraev, B., 1975, Physics of Dielectric Materials, *Mir Publishers*, Moscow.

Tsangaris, G. M., Psarras, G. C. and Koulombi, N., 1998, Electric Modulus and Interfacial Polarization in Comnposite Polymeric Systems, *Journal of Material Science*, 33, 2027-2037.

Tuncer, E., 2001, Dielectric Relaxation in Dielectric Mixtures, Thesis for the Degree of Doctor of Philosophy, *Chalmers University of Technology, Department of Electrical and Computer Engineering*, Gothenburg, Sweden.

Urban, S., Gestblom, B., Gandolfo, C. and Veracini, C. A., 2002, Broad Band Relaxation Studies of a Substance with the Nematic, Smectit A, and Smectie B Polymorphism, *Zeitschrift Für Naturforschung Section A*, 57a, 819-823.

Ushida, J, Tokushima, M., Shirane, M., Gomyo, A. and Yamada, H., 2003, Immittance Matching for Multidimensional Open-System Photonic Crystals, *Physical Review B: Condensed Matter and Materials Physics*, 68, 155115-(1-7).

Wagner, K. W., 1914, Erklärung der Dielektrischen Nachwirkungsvorgänge auf Grund Maxwellscher Vorstellungen, *Electrical Engineering (Archiv fur Elektrotechnik)*, 2(9), 371-387.

Weaver, C. and Pollard, L. D., 1973, The Chemistry of Clay Minerals, *Elsevier Scientific Publishing Company*, ABD.

Wu, Y. J., Wang, N., Lin, Y. Q., Liu, X. Q. and Chen, X. M., 2010, Effects of Ba Substitution on Structure and Dielectric Response of $Bi_2Mn_4O_{10}$ Ceramics, *Material Chemistry and Physics*, 121, 326-329.

Young, R. O., Montmorillonite –Micro Nutrilite- The Clay That can Heal Your Body, http://www.herbvita.net/dr_write_up_on_montmorillonite.pdf , [Ziyaret Tarihi: 13 Eylül 2010]

Yücedağ, İ., 2007, Metal-Yalıtkan-Yarıiletken (MIS) Yapılarda Elektrik ve Dielektrik Özelliklerinin Sıcaklık ve Frekansa Bağlı İncelenmesi, Doktora Tezi, *Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, Ankara.

Zhou W., Xu, W. D., Sun, Y. M. and Zhou Y. W., 2010, Phases Confirmation of Cloudy Silwet L-77 Aqueous Solution by Dielectric Relaxation Spectroscopy, *Chinese Chemical Letters*, 21, 734-737.

EKLER

EK-1 Kullanılan temel denklemin geçirgenlik modunda ve elektrik modülü formalizminde elde edilen reel ve sanal kısımları.

Geçirgenlik modunda Denklem (3.126) ile verilen temel ifade, Maple 11 programı ile reel ve sanal kısımlarına ayrılmıştır. Buna göre, reel ve sanal geçirgenlikler sırasıyla,

$$\varepsilon' = \frac{\left[\varepsilon_0(\varepsilon_{\infty 1}+\varepsilon_{\infty 2}) - \mathrm{A}_\sigma \omega^{(n-1)} \sin(n\pi/2)\mathrm{A}_1^{\gamma_1} + \varepsilon_0(\varepsilon_{s1}-\varepsilon_{\infty 1})\cos(\gamma_1\phi_1)\right]\mathrm{A}_2^{\gamma_2} - \varepsilon_0(\varepsilon_{\infty 2}-\varepsilon_{s2})\mathrm{A}_1^{\gamma_1}\cos(\gamma_2\phi_2)}{\mathrm{A}_1^{\gamma_1}\mathrm{A}_2^{\gamma_2}\varepsilon_0} \quad \text{(Ek-1.1)}$$

$$\varepsilon'' = \frac{\left[\varepsilon_0(\varepsilon_{\infty 1}-\varepsilon_{s1})\sin(\gamma_1\phi_1) + \mathrm{A}_\sigma \omega^{(n-1)}\mathrm{A}_1^{\gamma_1}\cos(n\pi/2)\right]\mathrm{A}_2^{\gamma_2} - \varepsilon_0(\varepsilon_{\infty 2}-\varepsilon_{s2})\mathrm{A}_1^{\gamma_1}\sin(\gamma_2\phi_2)}{\mathrm{A}_1^{\gamma_1}\mathrm{A}_2^{\gamma_2}\varepsilon_0} \quad \text{(Ek-1.2)}$$

şeklinde bulunmuştur. Gösterimlerde kolaylık olması açısından, yönelimli kutuplanmayı temsil eden HN ifadesinin parametreleri 1 indisi ile, arayüzeysek kutuplanmayı temsil eden MWS ifadesi 2 indisi ile gösterilmiştir. Denklemlerdeki, A ve ϕ değerleri Denklem (3.103) ve (3.104)'te tanımlandığı gibidir.

Çalışmada kullanılan metot, elektrik modülü formalizmi olduğundan, yukarıdaki denklemlerin elektrik modülü karşılıkları, Denklem (3.128)'de verilen dönüşüm bağıntısı kullanılarak hesaplanmıştır. Buna göre, Denklem (3.129)'da tanımlanan elektrik modülü formalizmindeki temel ifadenin reel ve sanal kısımları,

$$\mathrm{M}' = \frac{\mathrm{Pay}_1}{\mathrm{Payda}_1} + \frac{\mathrm{Pay}_2}{\mathrm{Payda}_2} \quad \text{(Ek-1.3)}$$

$$\mathrm{M}'' = \frac{\mathrm{Pay}_3}{\mathrm{Payda}_1} + \frac{\mathrm{Pay}_4}{\mathrm{Payda}_2} \quad \text{(Ek-1.4)}$$

şeklinde yazılır. Burada Pay_1, Pay_2, Pay_3, Pay_4, Payda_1 ve Payda_2,

$$\mathrm{Pay}_1 = \mathrm{M}_{\infty 1}\mathrm{M}_{s1}(\mathrm{M}_{s1}\mathrm{A}_1^{\gamma_1} + (\mathrm{M}_{\infty 1} - E_{s1})\cos(\gamma_1\phi_1))\mathrm{A}_1^{\gamma_1}, \quad \text{(Ek-1.5)}$$

$$\mathrm{Pay}_2 = \mathrm{M}_{\infty 2}\mathrm{M}_{s2}((\mathrm{M}_{\infty 2} - \mathrm{M}_{s2})\cos(\gamma_2\phi_2)\mathrm{M}_{s2}\mathrm{A}_2^{\gamma_2} - \mathrm{M}_{\infty 2}\mathrm{M}_{s2}(\mathrm{A}_\sigma/\varepsilon_0)\omega^{n-1}\cos((n-1)\pi/2)), \quad \text{(Ek-1.6)}$$

$$\mathrm{Pay}_3 = \mathrm{M}_{\infty 2}\mathrm{M}_{s2}\sin(\gamma_2\phi_2)A_1^{\gamma_1}(\mathrm{M}_{\infty 1} - \mathrm{M}_{s1}), \quad \text{(Ek-1.7)}$$

$$\mathrm{Pay}_4 = \mathrm{M}_{\infty 2}\mathrm{M}_{s2}((\mathrm{M}_{\infty 2} - \mathrm{M}_{s2})\sin(\gamma_2\phi_2) + \mathrm{M}_{\infty 2}\mathrm{M}_{s2}(\mathrm{A}_\sigma/\varepsilon_0)\omega^{n-1}\mathrm{A}_2^{\gamma_2}\sin((n-1)\pi/2)), \quad \text{(Ek-1.8)}$$

$$\mathrm{Payda}_1 = \mathrm{M}_{s1}\mathrm{A}_1^{\gamma_1}(2(\mathrm{M}_{\infty 1} - \mathrm{M}_{s1})\cos(\gamma_1\phi_1) + \mathrm{M}_{s1}\mathrm{A}_1^{\gamma_1}) + (\mathrm{M}_{\infty 1} - \mathrm{M}_{s1})^2, \quad \text{(Ek-1.9)}$$

$$\mathrm{Payda}_2 = (M_{\infty 2} - M_{s2})(2M_{s2}\cos(\gamma_2\phi_2) + (M_{\infty 2} - M_{s2})A_2^{-\gamma_2}) + A_2^{\gamma_2}(M_{\infty 2}{}^2 + M_{s2}{}^2(\mathrm{A}_\sigma/\varepsilon_0)^2\omega^{2n-2}) - 2M_{\infty 2}M_{s2}\omega^{n-1} \cdot\left[(M_{\infty 2} - M_{s2})\cos(\gamma_2\phi_2 + (n-1)\pi/2) + M_{s2}A_2^{\gamma_2}\cos((n-1)\pi/2)\right], \quad \text{(Ek-1.10)}$$

olarak yazılır. Denklemlerdeki A ve ϕ ifadeleri, (3.103) ve (3.104)'te verildiği gibi olup, M_∞ ve M_s değerleri ise,

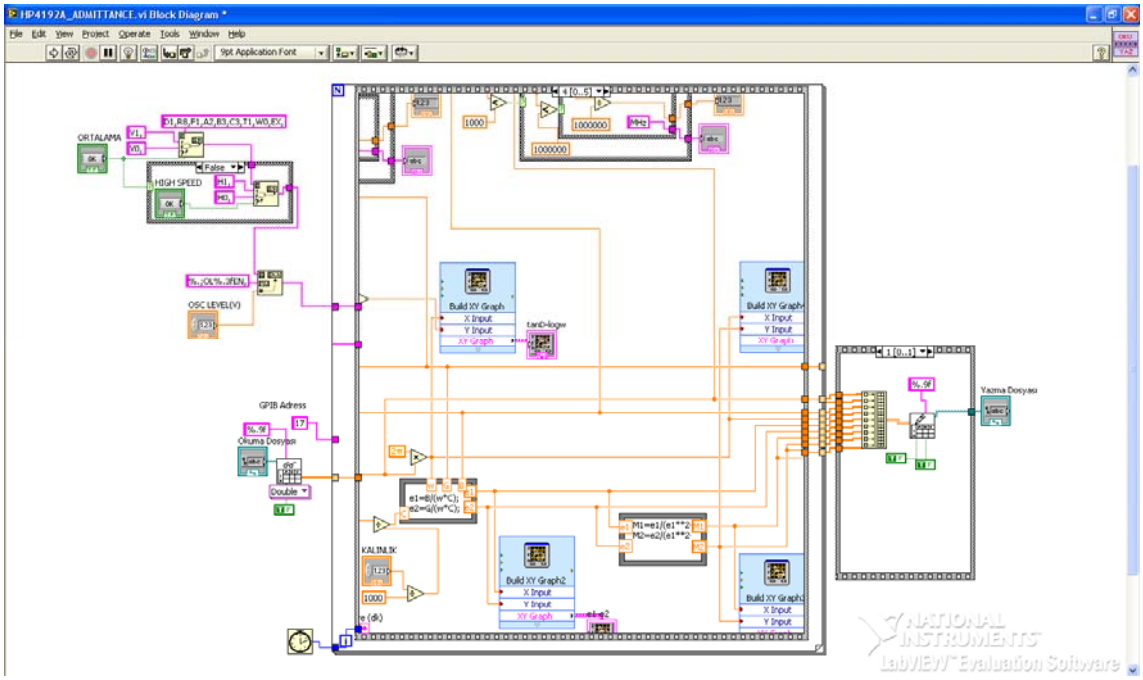
$$M_\infty = \frac{1}{\varepsilon_\infty} \text{ ve } M_s = \frac{1}{\varepsilon_s} \qquad \text{(Ek-1.11)}$$

şeklinde tanımlanmaktadır.

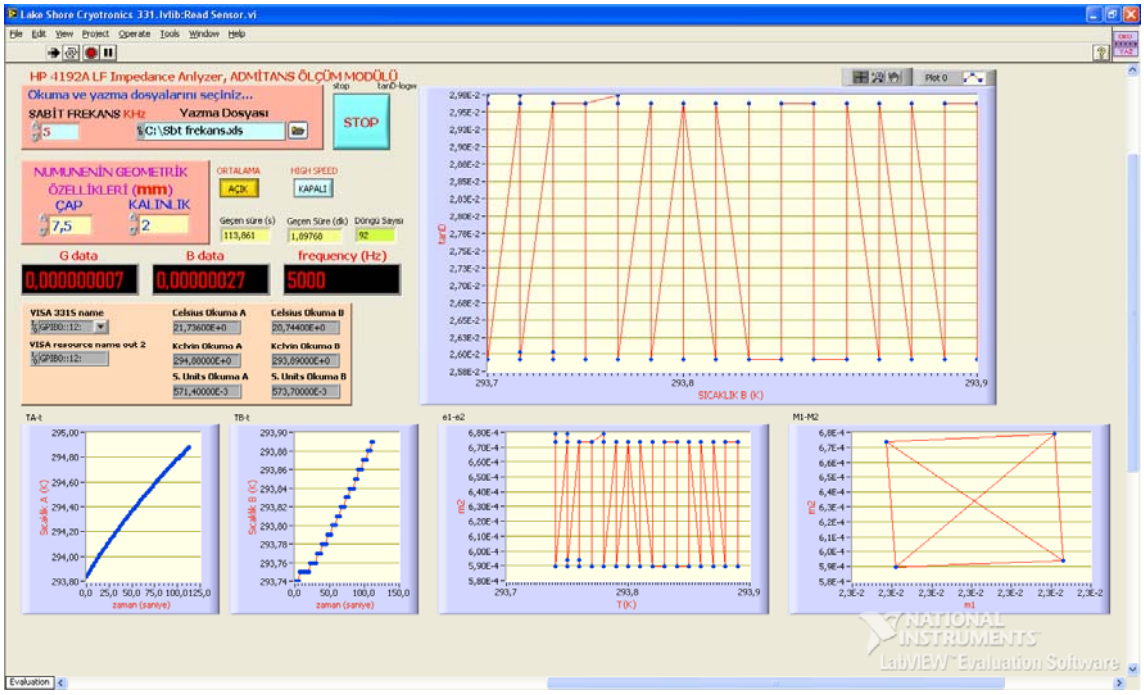
EK-2 Ölçümlerdeki otomasyonun sağlanması için, LabView programıyla, kullanım amacına göre çeşitli yazılımlar geliştirilmiştir. Sabit sıcaklıkta admitans ölçümü için hazırlanan yazılımın ön panel ve blok diyagram ekran görüntüleri sırasıyla Şekil Ek-2.1 ve Ek-2.2'de, sabit frekansta admitans ölçümü için hazırlanan yazılımın ön paneli Şekil Ek-2.3'te ve HP 4192A LF'nin tüm modlarını kullanan yazılımın ön paneli ise Şekil Ek-2.4'te verilmiştir.



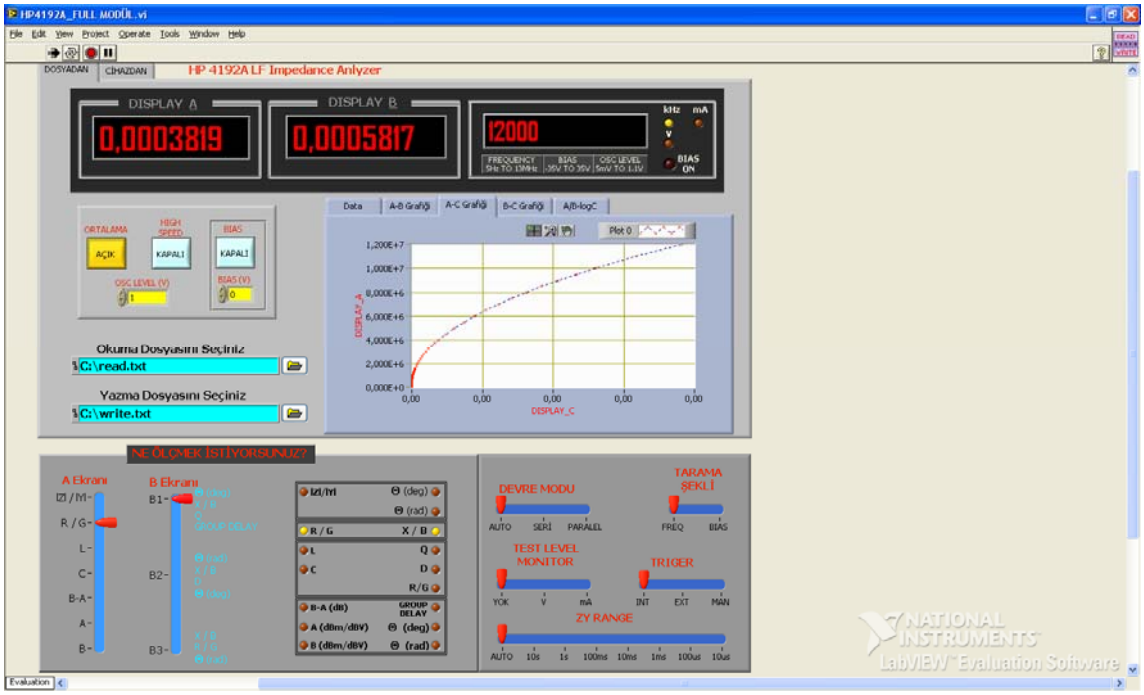
Şekil Ek-2.1 Sabit sıcaklıkta admitans ölçümü için geliştirilen yazılımın ön paneli



Şekil Ek-2.2 Sabit sıcaklıkta admitans ölçümü için geliştirilen yazılımın blok diyagramının bir kısmı



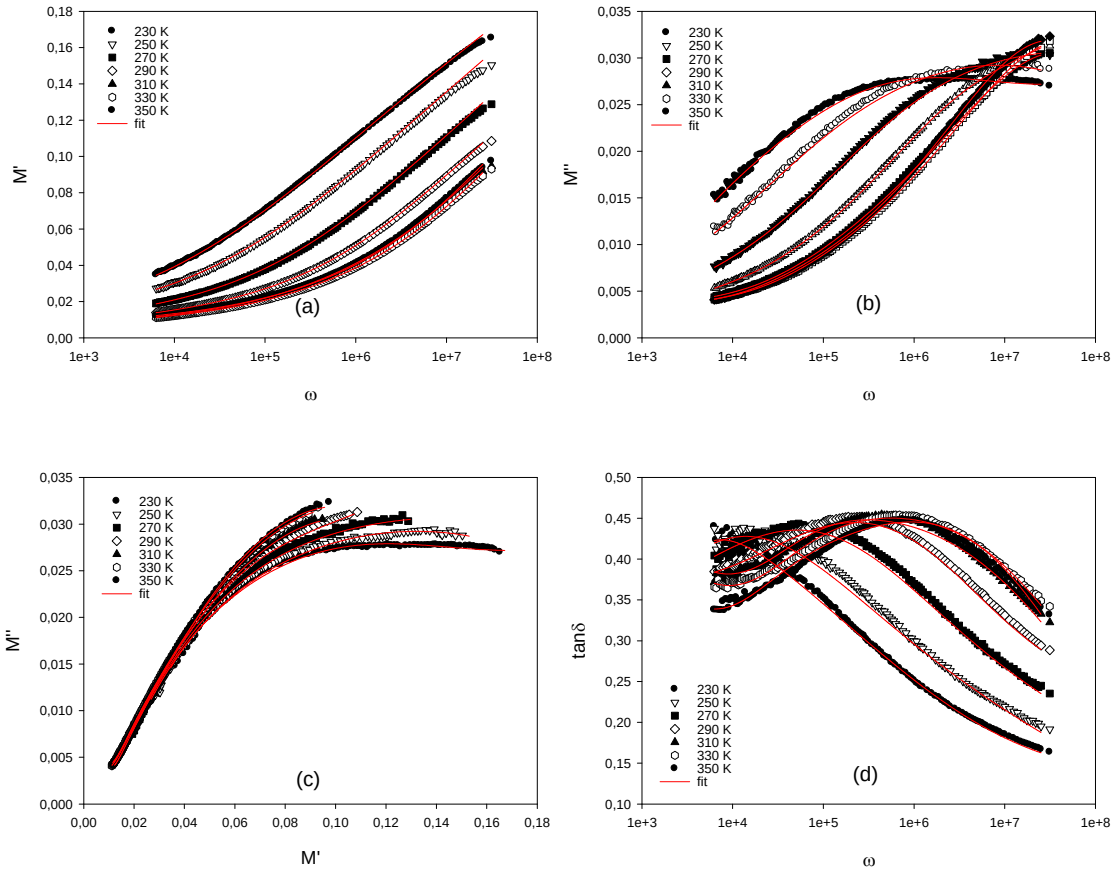
Şekil Ek-2.3 Sabit frekansta admitans ölçümü için geliştirilen yazılımın ön paneli



Şekil Ek-2.4 HP 4192A LF'nin tüm modlarını çalıştırabilen yazlımın ön paneli

Ek-3 Ölçümü alınan tüm numunelerin elektrik modülü formalizminde çizilen ve fit edilen $M'-\log\omega$, $M''-\log\omega$, $M'-M''$ ve $\tan\delta-\log\omega$ grafikleri ve fit parametreleri.

Ek-3.1. OUS 2,5 ton 50 mikron altı

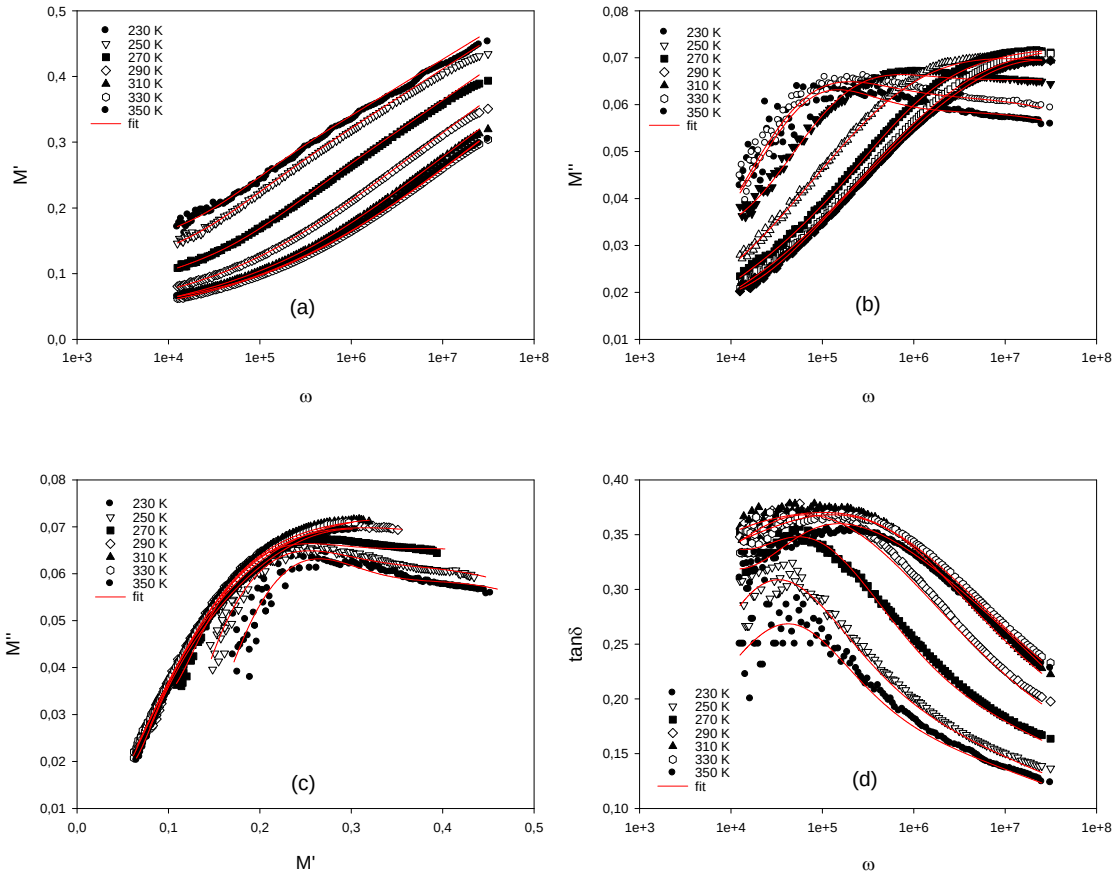


Şekil Ek-3.1 OUS 2,5 ton 50 μ altı numunesinin a) $M'-\log\omega$, b) $M''-\log\omega$, c) $M'-M''$ ve d) $\tan\delta-\log\omega$ grafikleri

Çizelge Ek-3.1 OUS 2,5 ton 50 μ altı numunesinin fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-4}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-2}(s)	A_σ(x10^{-6}) $\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	0,128	0,018	0,353	0,000	4,229	1,000	0,008	0,175	0,000	1,152	0,222	0,187
240	0,050	0,008	0,671	0,283	3,027	0,259	0,009	0,274	0,079	1,023	0,123	0,033
250	0,052	0,009	0,463	0,141	2,176	0,219	0,006	0,292	0,018	0,810	0,229	0,000
260	0,191	0,010	0,584	0,406	1,688	0,052	1,000	0,932	0,404	0,598	0,034	0,559
270	0,058	0,007	0,790	0,442	1,147	0,233	0,004	0,297	0,020	0,415	0,413	0,000
280	0,058	0,004	0,517	0,060	0,703	0,738	0,007	0,215	0,001	0,315	0,154	0,165
290	0,045	0,003	0,573	0,079	0,434	0,783	0,008	0,220	0,002	0,230	0,036	0,337
300	0,130	0,004	0,470	0,045	0,370	0,066	0,004	0,543	0,438	0,215	1,062	0,000
310	0,135	0,005	0,477	0,040	0,299	0,055	0,004	0,538	0,422	0,192	1,251	0,009
320	0,138	0,004	0,484	0,011	0,268	0,042	0,004	0,550	0,395	0,160	1,361	0,002
330	0,142	0,004	0,487	0,040	0,308	0,050	0,004	0,528	0,435	0,175	1,006	0,036
340	0,133	0,003	0,494	0,014	0,440	0,051	0,005	0,521	0,450	0,199	0,675	0,019
350	0,145	0,003	0,482	0,004	0,615	0,040	0,005	0,516	0,457	0,235	0,532	0,027
360	0,012	0,006	0,280	1,000	0,806	0,236	0,003	0,871	0,569	0,254	0,943	0,000

Ek-3.2. OUS 2,5 ton 50-63 mikron arası

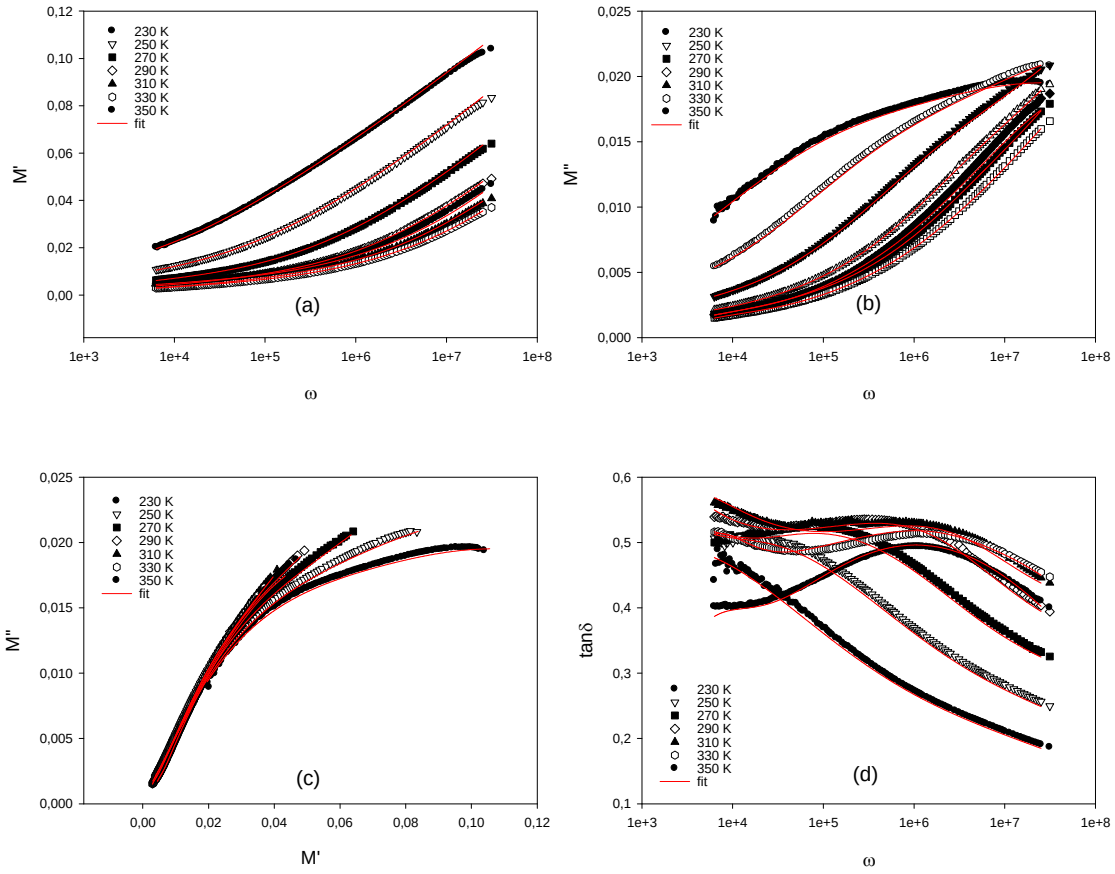


Şekil Ek-3.2 OUS 2,5 ton 50-63 μ numunesinin a) $M'-\log\omega$, b) $M''-\log\omega$, c) $M'-M''$ ve d) $\tan\delta-\log\omega$ grafikleri

Çizelge Ek-3.2 OUS 2,5 ton 50-63 μ numunesinin fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-4}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-2}(s)	A_σ(x10^{-6}) $\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	0,673	0,100	0,647	0,657	3,310	0,076	0,002	0,881	0,268	1,051	0,652	0,159
240	0,321	0,089	0,650	0,373	2,327	0,532	0,012	0,501	0,505	0,612	0,000	0,000
250	0,657	0,097	0,378	0,408	1,874	0,096	0,002	0,822	0,228	0,578	0,081	0,070
260	0,135	0,036	0,538	0,021	0,809	0,596	0,028	0,990	0,742	0,394	0,076	0,006
270	0,110	0,025	0,603	0,035	0,511	0,648	0,029	1,000	0,748	0,325	0,069	0,074
280	0,817	0,042	0,449	0,502	0,412	0,254	0,013	0,755	0,450	0,272	0,071	0,005
290	0,533	0,031	0,465	0,431	0,334	0,264	0,014	0,898	0,561	0,195	0,105	0,049
300	0,083	0,017	0,465	0,059	0,240	0,582	0,028	0,442	0,395	0,152	0,115	0,043
310	0,051	0,009	0,989	0,366	0,105	0,677	0,087	0,320	0,004	0,112	0,001	0,757
320	0,718	0,030	0,987	0,719	0,078	0,247	0,010	0,921	0,556	0,085	1,039	0,025
330	0,512	0,029	0,984	0,695	0,087	0,240	0,008	0,889	0,554	0,175	0,863	0,002
340	0,097	0,015	1,000	0,496	0,140	0,880	0,186	0,117	0,002	0,199	0,002	0,721
350	0,346	0,024	0,352	0,006	0,282	0,220	0,016	0,795	0,608	0,235	0,259	0,006
360	0,071	0,004	0,579	0,133	0,406	1,000	0,011	0,221	0,001	0,254	0,188	0,000

Ek-3.3. OUS 2,5 ton 63-125 mikron arası

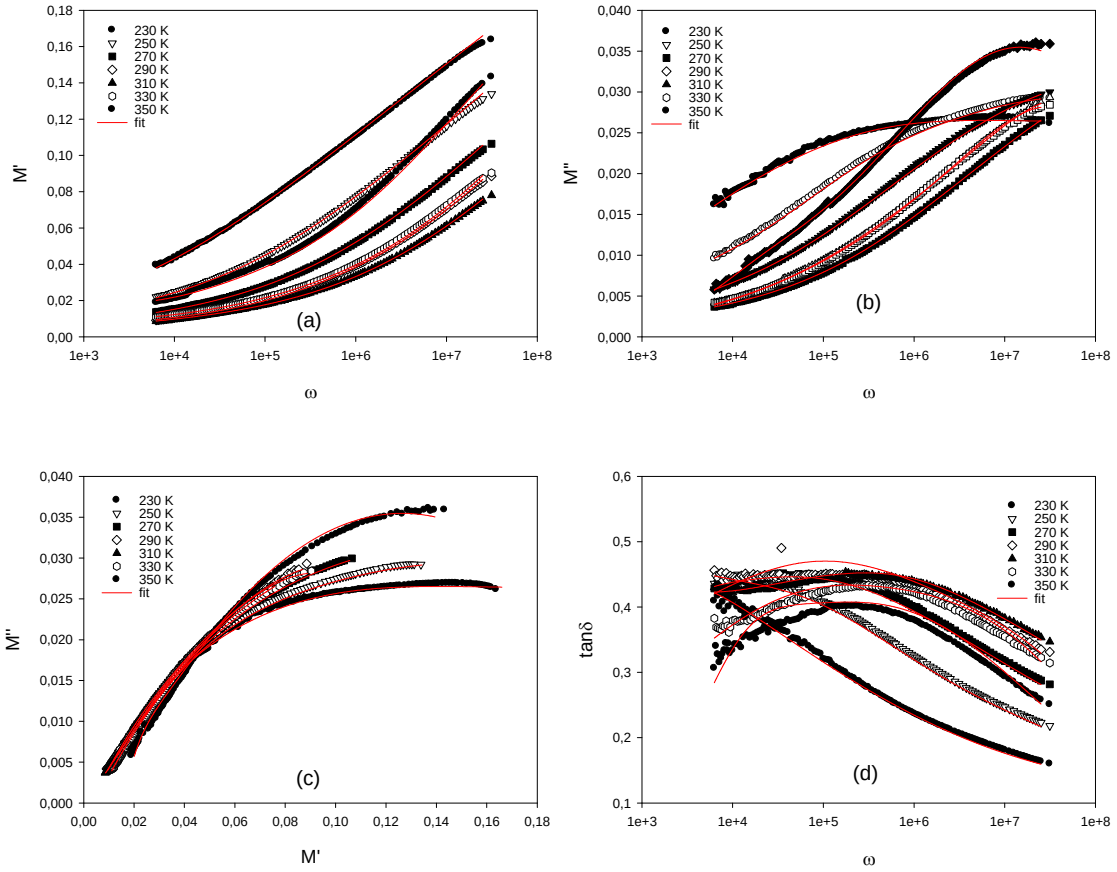


Şekil Ek-3.3 OUS 2,5 ton 63-125 μ numunesinin a) $M'-\log\omega$, b) $M''-\log\omega$, c) $M'-M''$ ve d) $\tan\delta-\log\omega$ grafikleri

Çizelge Ek-3.3 OUS 2,5 ton 63-125 μ numunesinin fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-4}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-3}(s)	$A_\sigma(x10^{-5})\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	0,086	0,003	0,572	0,412	3,323	0,859	0,042	0,050	0,001	9,742	0,002	0,571
240	0,010	0,002	1,000	0,411	1,199	0,275	0,018	0,194	0,111	6,772	0,002	0,578
250	0,025	0,004	0,481	0,036	0,842	0,195	0,003	0,311	0,110	5,816	0,150	0,008
260	0,020	0,002	0,509	0,004	0,543	0,229	0,003	0,360	0,242	3,736	0,074	0,105
270	0,020	0,002	0,525	0,006	0,313	0,314	0,003	0,486	0,446	3,079	0,076	0,173
280	0,010	0,001	0,650	0,115	0,148	0,205	0,002	0,454	0,313	2,393	0,216	0,014
290	0,011	0,001	0,978	0,351	0,086	0,256	0,002	0,430	0,277	1,507	0,376	0,007
300	0,011	0,001	1,000	0,365	0,071	0,432	0,002	0,392	0,237	1,338	0,313	0,069
310	0,010	0,001	1,000	0,351	0,039	0,569	0,002	0,301	0,000	0,909	0,594	0,020
320	0,010	0,001	0,596	0,033	0,058	1,000	0,002	0,416	0,305	0,851	0,303	0,094
330	0,054	0,002	0,618	0,001	0,012	0,044	0,002	0,627	0,354	0,112	2,017	0,001
340	0,049	0,002	0,510	0,110	0,140	1,000	0,002	0,241	0,000	1,786	0,812	0,056
350	0,101	0,003	0,498	0,163	0,382	0,028	0,001	0,541	0,621	2,355	0,974	0,065
360	0,117	0,004	0,601	0,329	0,406	0,038	0,002	0,402	0,426	2,541	0,554	0,069

Ek-3.4. OUS 2,5 ton 125-250 mikron arası

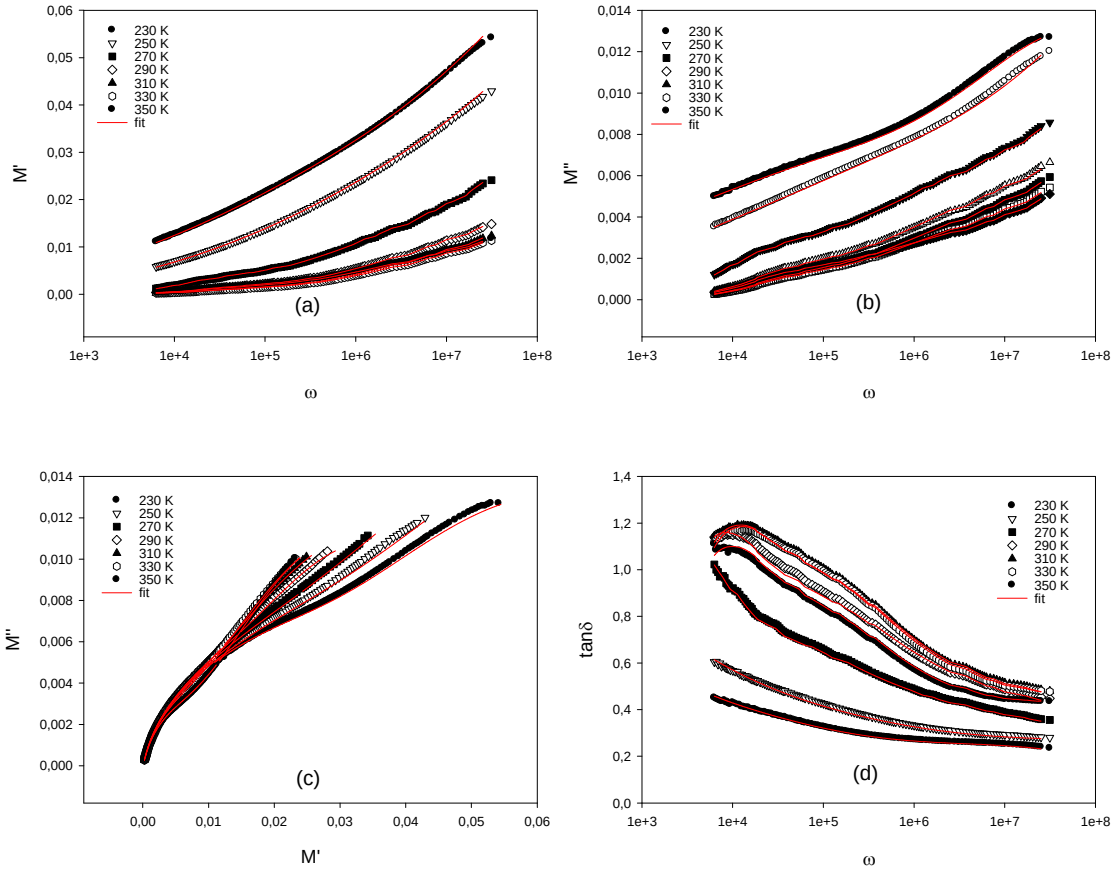


Şekil Ek-3.4 OUS 2,5 ton 125-250 μ numunesinin a) $M' - \log \omega$, b) $M'' - \log \omega$, c) $M' - M''$ ve d) $\tan \delta - \log \omega$ grafikleri

Çizelge Ek-3.4 OUS 2,5 ton 125-250 μ numunesinin fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-4}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-3}(s)	$A_\sigma(x10^{-6})\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	0,283	0,014	0,333	0,374	3,108	0,116	0,009	0,349	0,074	9,352	0,164	0,122
240	0,158	0,005	0,348	0,002	1,218	0,109	0,007	0,819	0,553	6,721	0,191	0,000
250	0,044	0,008	0,726	0,385	0,989	0,243	0,006	0,284	0,005	5,022	0,776	0,005
260	0,252	0,003	0,561	0,359	0,526	0,128	0,005	0,932	0,609	3,427	0,155	0,076
270	0,213	0,006	0,397	0,262	0,277	0,123	0,003	1,000	0,000	2,752	0,016	0,665
280	0,135	0,006	0,481	0,052	0,130	0,059	0,004	0,580	0,358	1,706	2,271	0,000
290	0,119	0,005	0,999	0,492	0,063	0,056	0,003	0,688	0,414	1,125	3,685	0,000
300	0,144	0,005	0,481	0,080	0,052	0,074	0,003	0,580	0,376	0,988	3,551	0,000
310	0,105	0,004	0,564	0,131	0,024	0,089	0,003	0,587	0,374	1,009	2,503	0,000
320	0,129	0,006	0,509	0,063	0,058	0,062	0,004	0,594	0,338	1,121	1,524	0,019
330	0,077	0,007	0,636	0,093	0,012	0,082	0,003	0,590	0,316	1,618	2,423	0,000
340	0,015	0,007	0,348	0,250	0,140	0,238	0,004	0,345	0,000	1,742	0,058	0,000
350	0,219	0,017	0,488	0,197	0,382	0,019	0,006	0,528	0,463	2,292	3,336	0,124
360	0,221	0,019	0,406	0,106	0,406	0,046	0,007	0,388	0,360	2,500	1,725	0,082

Ek-3.5. OUS 5 ton 50 mikron altı

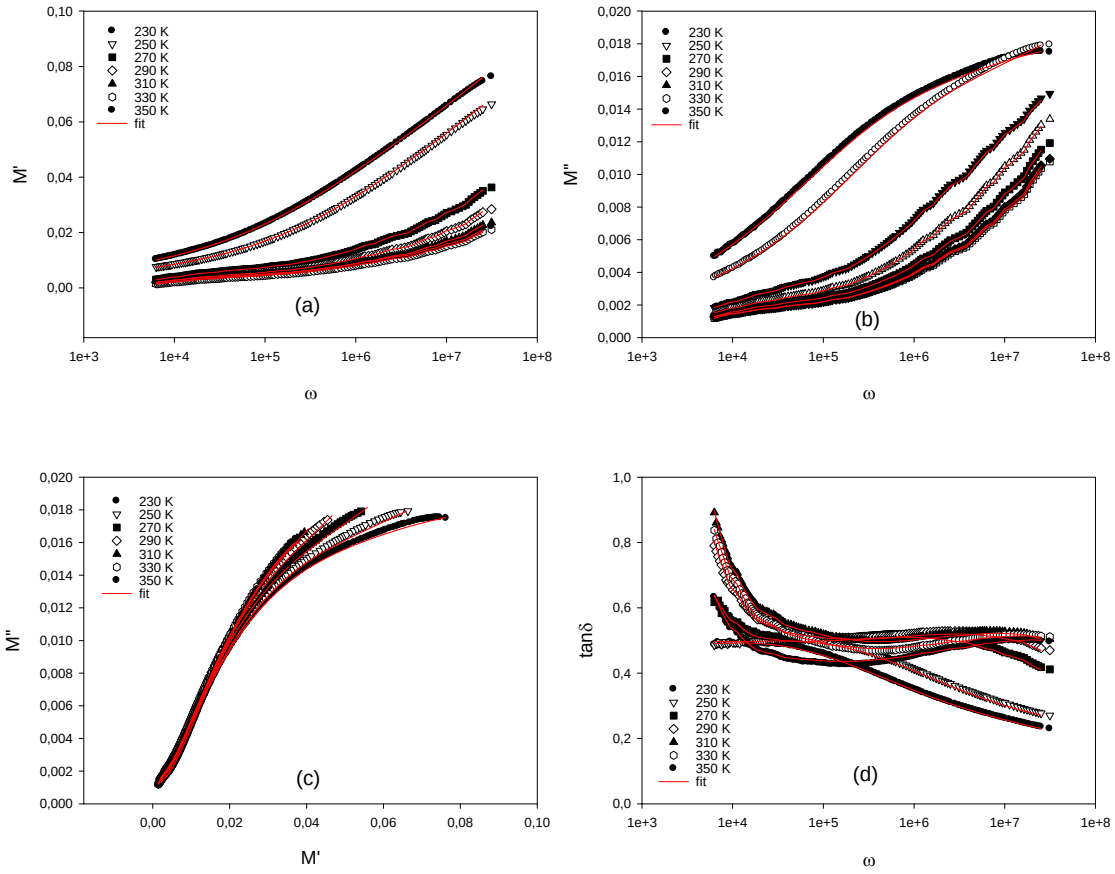


Şekil Ek-3.5 OUS 5 ton 50 μ altı numunesinin a) $M' - \log \omega$, b) $M'' - \log \omega$, c) $M' - M''$ ve d) $\tan \delta - \log \omega$ grafikleri

Çizelge Ek-3.5 OUS 5 ton 50 μ altı numunesinin fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-4}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-2}(s)	$A_\sigma(x10^{-6})\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	0,071	0,001	0,649	0,356	4,110	0,033	0,003	0,598	0,404	1,254	0,397	0,000
240	0,073	0,001	0,634	0,341	2,827	0,033	0,003	0,586	0,415	0,971	0,405	0,102
250	0,103	0,001	0,594	0,331	1,876	0,040	0,002	0,546	0,439	0,786	0,541	0,181
260	0,207	0,000	0,442	0,000	1,473	0,046	0,002	0,502	0,381	0,514	0,786	0,170
270	0,049	0,000	0,608	0,099	0,972	0,049	0,002	0,407	0,249	0,423	0,875	0,223
280	0,199	0,000	0,745	0,332	0,693	0,055	0,002	0,335	0,104	0,288	1,832	0,215
290	0,025	0,000	0,821	0,191	0,398	0,033	0,001	0,441	0,231	0,210	2,652	0,206
300	1,000	0,000	1,000	0,784	0,362	0,178	0,002	0,274	0,036	0,210	2,836	0,243
310	0,010	0,000	0,922	0,274	0,243	0,173	0,002	0,224	0,001	0,175	2,471	0,289
320	0,010	0,000	1,000	0,333	0,188	0,201	0,002	0,229	0,000	0,138	2,940	0,275
330	0,016	0,000	0,996	0,311	0,308	0,099	0,002	0,221	0,000	0,155	2,795	0,285
340	0,023	0,000	1,000	0,389	0,540	0,130	0,002	0,218	0,032	0,149	2,814	0,272
350	0,023	0,000	1,000	0,359	0,515	0,108	0,003	0,206	0,077	0,175	1,808	0,297
360	0,040	0,000	1,000	0,406	0,706	0,017	0,001	0,333	0,031	0,232	2,896	0,163

Ek-3.6. OUS 5 ton 50-63 mikron arası

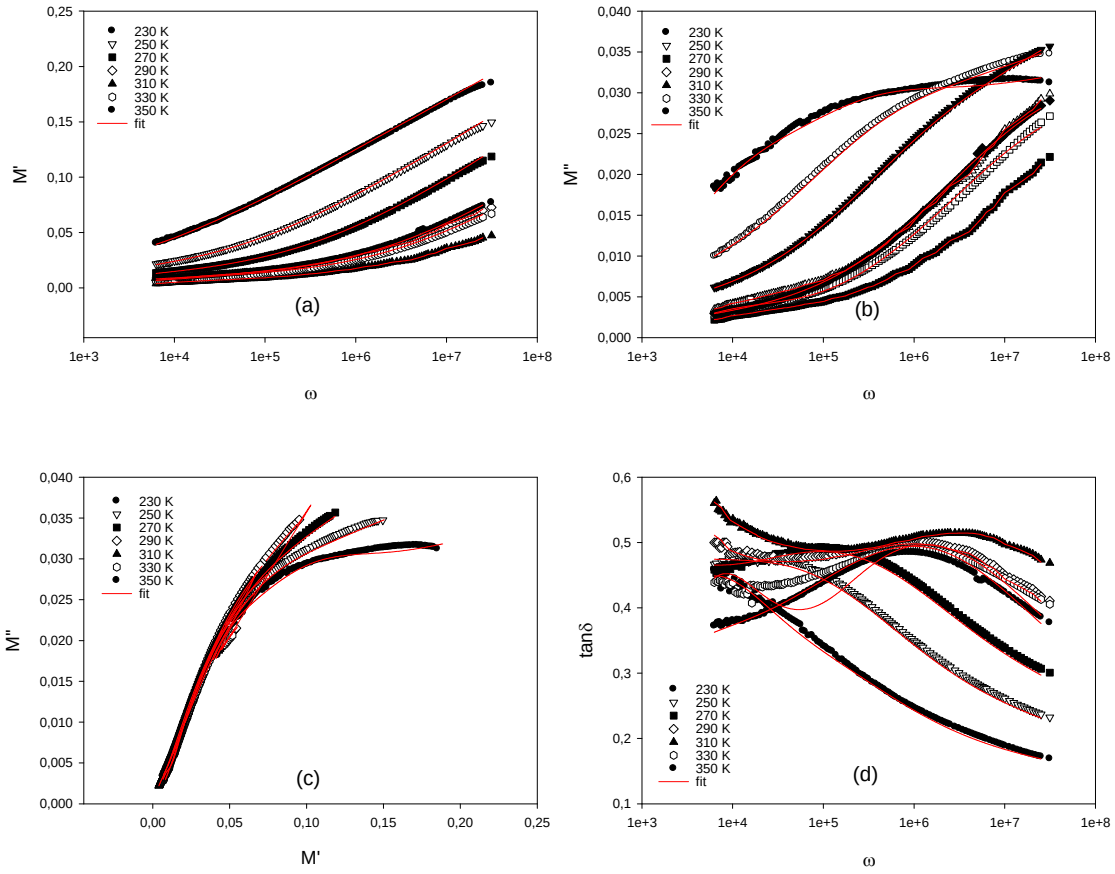


Şekil Ek-3.6 OUS 5 ton 50-63 μ numunesinin a) $M' - \log\omega$, b) $M'' - \log\omega$, c) $M' - M''$ ve d) $\tan\delta - \log\omega$ grafikleri

Çizelge Ek-3.6 OUS 5 ton 50-63 μ numunesinin fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-4}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-2}(s)	$A_\sigma(x10^{-6})\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	0,071	0,001	0,649	0,356	4,110	0,033	0,003	0,598	0,404	1,254	0,397	0,000
240	0,073	0,001	0,634	0,341	2,827	0,033	0,003	0,586	0,415	0,971	0,405	0,102
250	0,103	0,001	0,594	0,331	1,876	0,040	0,002	0,546	0,439	0,786	0,541	0,181
260	0,207	0,000	0,442	0,000	1,473	0,046	0,002	0,502	0,381	0,514	0,786	0,170
270	0,049	0,000	0,608	0,099	0,972	0,049	0,002	0,407	0,249	0,423	0,875	0,223
280	0,199	0,000	0,745	0,332	0,693	0,055	0,002	0,335	0,104	0,288	1,832	0,215
290	0,025	0,000	0,821	0,191	0,398	0,033	0,001	0,441	0,231	0,210	2,652	0,206
300	1,000	0,000	1,000	0,784	0,362	0,178	0,002	0,274	0,036	0,210	2,836	0,243
310	0,010	0,000	0,922	0,274	0,243	0,173	0,002	0,224	0,001	0,175	2,471	0,289
320	0,010	0,000	1,000	0,333	0,188	0,201	0,002	0,229	0,000	0,138	2,940	0,275
330	0,016	0,000	0,996	0,311	0,308	0,099	0,002	0,221	0,000	0,155	2,795	0,285
340	0,023	0,000	1,000	0,389	0,540	0,130	0,002	0,218	0,032	0,149	2,814	0,272
350	0,023	0,000	1,000	0,359	0,515	0,108	0,003	0,206	0,077	0,175	1,808	0,297
360	0,040	0,000	1,000	0,406	0,706	0,017	0,001	0,333	0,031	0,232	2,896	0,163

Ek-3.7. OUS 5 ton 63-125 mikron arası

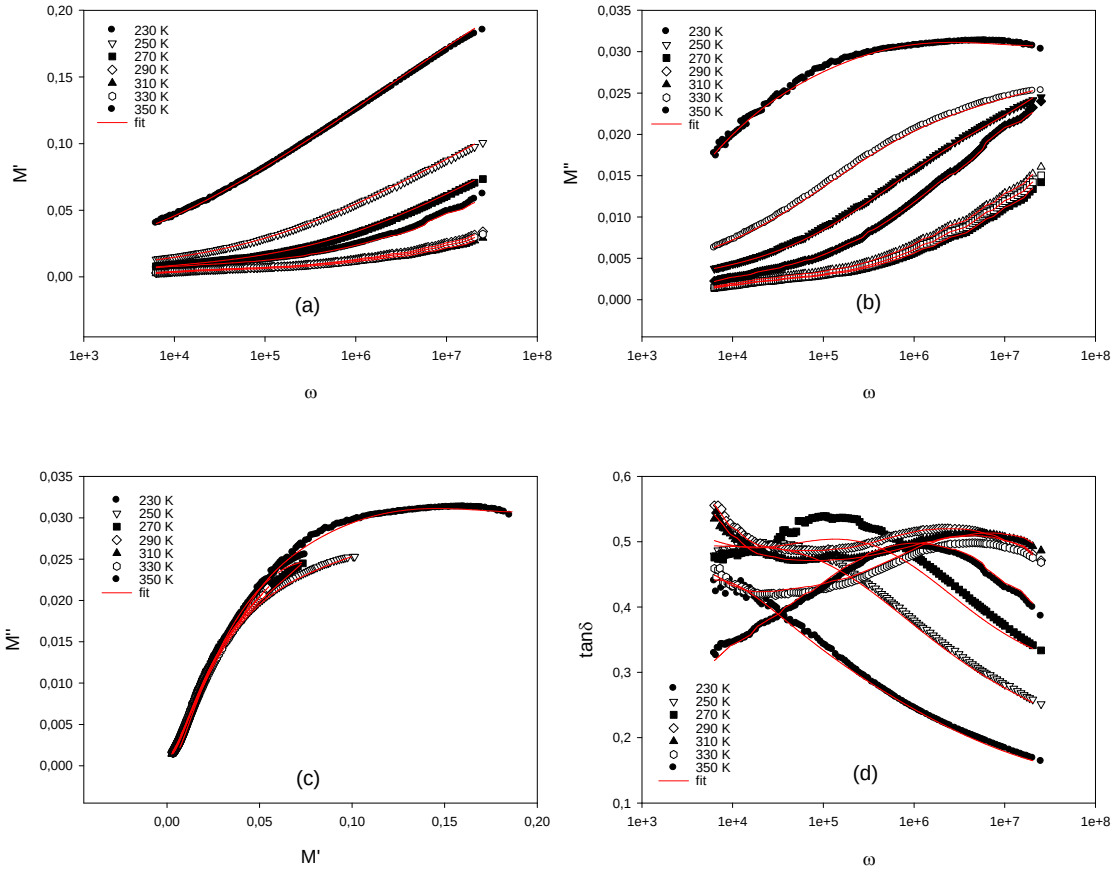


Şekil Ek-3.7 OUS 5 ton 63-125 μ numunesinin a) $M' - \log \omega$, b) $M'' - \log \omega$, c) $M' - M''$ ve d) $\tan \delta - \log \omega$ grafikleri

Çizelge Ek-3.7 OUS 5 ton 63-125 μ numunesinin fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-4}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-2}(s)	$A_\sigma(x10^{-6})\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	0,067	0,018	1,000	0,355	6,104	0,411	0,000	0,864	0,136	1,201	0,002	0,796
240	0,073	0,011	0,776	0,429	3,310	0,271	0,005	0,350	0,179	0,825	0,434	0,111
250	0,061	0,007	0,818	0,414	1,645	0,319	0,005	0,345	0,186	0,663	0,727	0,008
260	0,049	0,004	0,500	0,004	0,928	0,497	0,007	0,364	0,328	0,406	0,216	0,143
270	0,043	0,005	0,674	0,275	0,426	0,352	0,005	0,351	0,176	0,202	1,200	0,000
280	0,043	0,003	0,858	0,367	0,305	0,638	0,004	0,341	0,199	0,202	1,090	0,027
290	0,028	0,003	0,776	0,273	0,126	0,518	0,004	0,350	0,173	0,181	1,476	0,004
300	0,059	0,002	0,945	0,365	0,095	0,184	0,004	0,325	0,247	0,125	3,174	0,000
310	0,016	0,001	1,000	0,341	0,084	0,782	0,003	0,997	0,696	0,103	0,311	0,293
320	0,024	0,003	0,823	0,297	0,047	0,702	0,004	0,341	0,156	0,088	2,129	0,033
330	Fit sonucu yok.											
340	0,031	0,004	0,994	0,424	0,046	0,845	0,003	0,379	0,224	0,082	4,723	0,000
350	0,050	0,005	0,748	0,330	0,065	0,259	0,003	0,373	0,193	0,092	4,787	0,000
360	0,137	0,007	0,592	0,174	0,127	0,036	0,003	0,754	0,541	0,090	1,732	0,142

Ek-3.8. OUS 5 ton 125-250 mikron arası

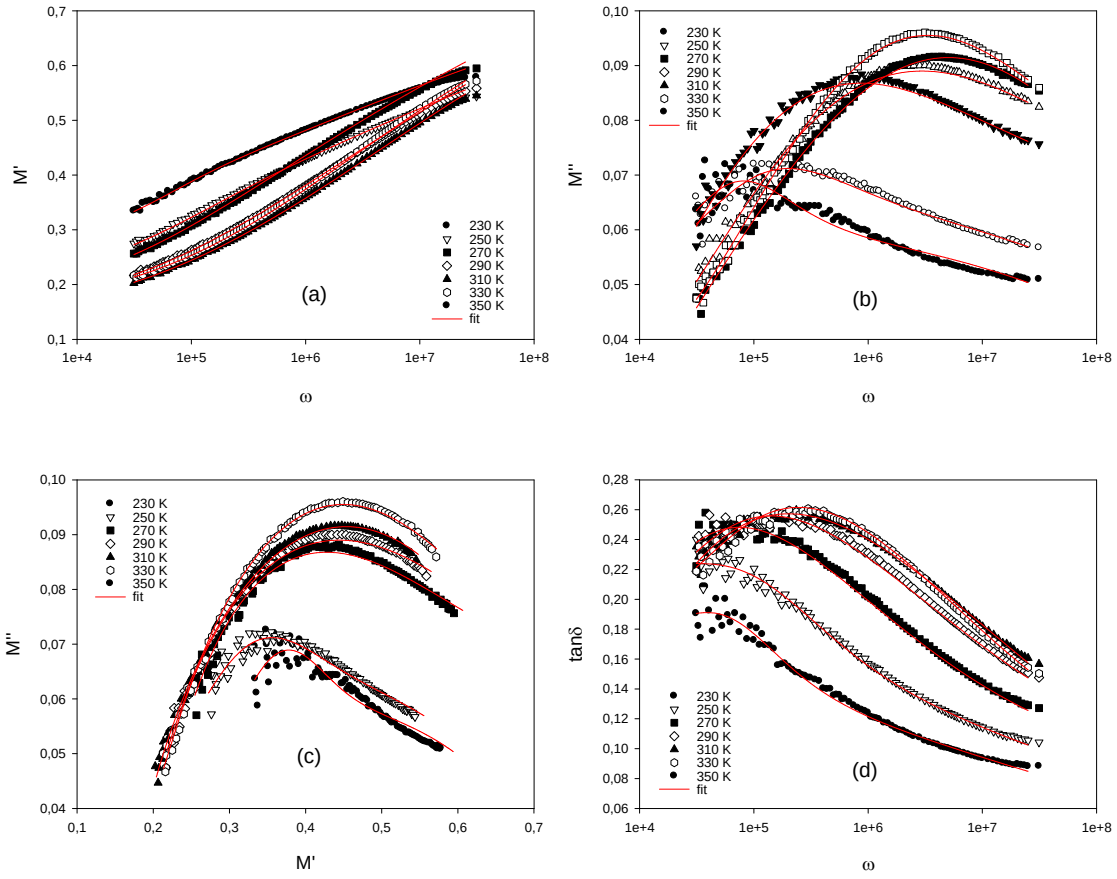


Şekil Ek-3.8 OUS 5 ton 125-250 μ numunesinin a) M'– log ω, b) M''– log ω, c) M'– M'' ve d) tan δ – log ω grafikleri

Çizelge Ek-3.8 OUS 5 ton 125-250 μ numunesinin fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-4}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-2}(s)	A_σ(x10^{-6}) $\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	0,993	0,013	1,000	0,821	7,787	0,142	0,006	0,468	0,265	1,202	1,124	0,025
240	0,090	0,002	0,906	0,390	3,002	0,134	0,012	0,383	0,447	0,725	1,406	0,000
250	0,038	0,004	0,647	0,274	1,499	0,221	0,004	0,686	0,580	0,472	0,467	0,129
260	0,047	0,003	0,486	0,015	0,895	1,000	0,004	0,232	0,000	0,412	1,282	0,065
270	0,034	0,003	0,765	0,336	0,399	0,533	0,003	0,472	0,401	0,225	3,749	0,000
280	0,035	0,002	0,665	0,215	0,272	0,194	0,003	0,445	0,340	0,178	0,898	0,098
290	0,011	0,001	0,611	0,004	0,126	0,272	0,002	0,740	0,586	0,142	0,313	0,261
300	0,015	0,001	0,679	0,162	0,078	0,406	0,002	0,445	0,341	0,106	1,781	0,095
310	0,010	0,001	1,000	0,282	0,037	0,465	0,003	0,569	0,485	0,065	0,550	0,237
320	0,015	0,002	0,679	0,135	0,049	0,492	0,003	0,302	0,023	0,054	4,324	0,007
330	0,019	0,002	0,941	0,368	0,050	0,337	0,002	0,369	0,181	0,062	4,252	0,000
340	0,069	0,003	0,590	0,125	0,042	0,058	0,002	0,760	0,487	0,081	3,277	0,034
350	0,056	0,004	0,937	0,513	0,063	0,095	0,002	0,725	0,460	0,087	3,400	0,000
360	1,000	0,004	1,000	0,819	0,119	0,145	0,003	0,521	0,229	0,104	0,238	0,347

Ek-3.9. OUS 7,5 ton 50 mikron altı

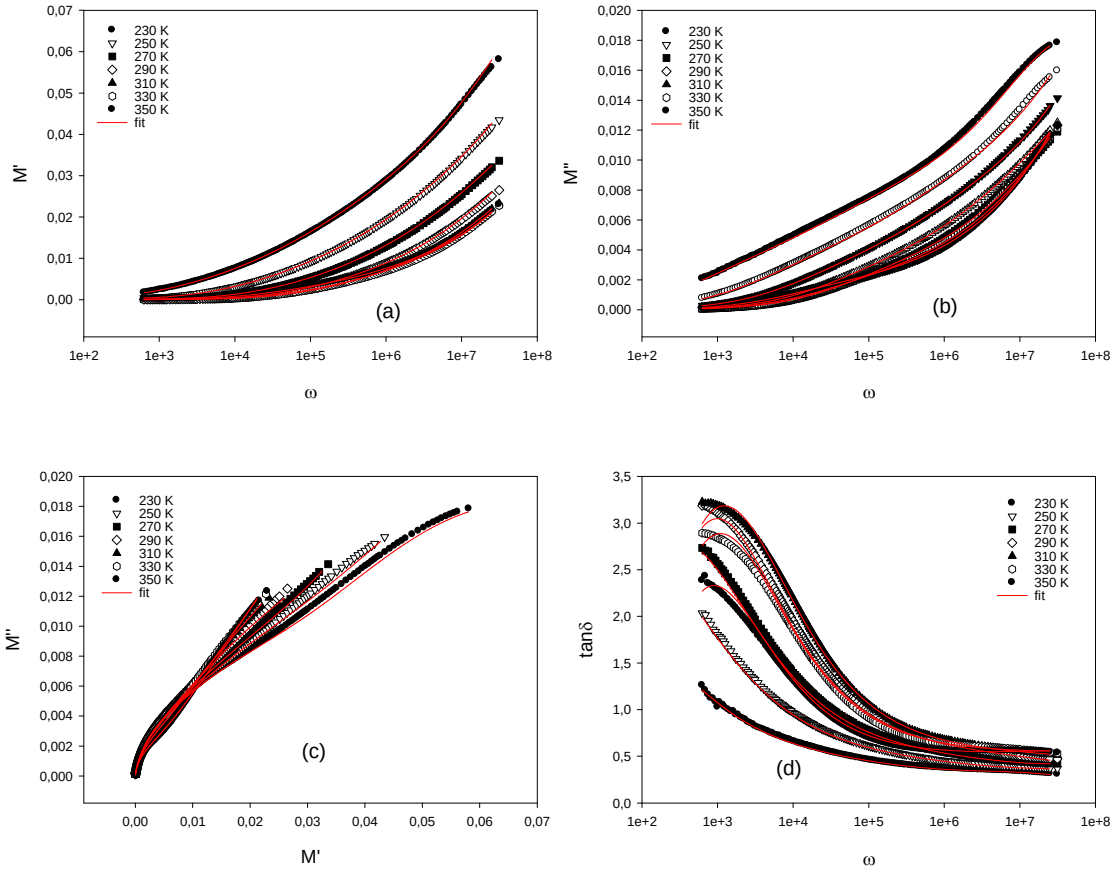


Şekil Ek-3.9 OUS 7,5 ton 50 μ altı numunesinin a) $M' - \log \omega$, b) $M'' - \log \omega$, c) $M' - M''$ ve d) $\tan \delta - \log \omega$ grafikleri

Çizelge Ek-3.9 OUS 7,5 ton 50 μ altı numunesinin fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-4}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-2}(s)	$A_\sigma(x10^{-8})\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	0,042	0,002	0,998	0,084	3,926	0,800	0,125	0,766	0,749	1,321	0,161	0,071
240	0,082	0,009	0,812	0,190	2,827	0,808	0,114	0,730	0,756	0,981	0,099	0,258
250	0,070	0,010	0,744	0,080	1,354	0,773	0,098	0,788	0,743	0,596	1,322	0,018
260	0,099	0,011	0,832	0,274	1,462	0,864	0,099	0,724	0,760	0,503	0,306	0,295
270	0,250	0,060	0,402	0,001	0,630	0,947	0,098	0,160	0,007	0,332	0,319	0,000
280	0,255	0,052	0,439	0,087	0,532	0,992	0,096	0,158	0,016	0,253	0,984	0,003
290	0,359	0,079	0,399	0,142	0,400	0,825	0,079	0,156	0,002	0,164	0,105	0,436
300	0,386	0,099	0,554	0,833	0,269	0,823	0,132	0,146	0,107	0,140	1,587	0,508
310	0,010	0,100	0,334	0,556	0,195	0,844	0,070	0,416	0,326	0,132	0,000	0,000
320	0,630	0,100	0,440	0,281	0,209	0,198	0,028	0,926	0,575	0,141	0,000	0,000
330	0,234	0,039	0,434	0,000	0,223	0,814	0,096	0,227	0,202	0,163	0,167	0,031
340	0,320	0,042	0,486	0,102	0,373	0,811	0,108	0,149	0,022	0,152	0,612	0,098
350	Fit sonucu yok.											
360												

Ek-3.10. OUS 7,5 ton 50-63 mikron arası

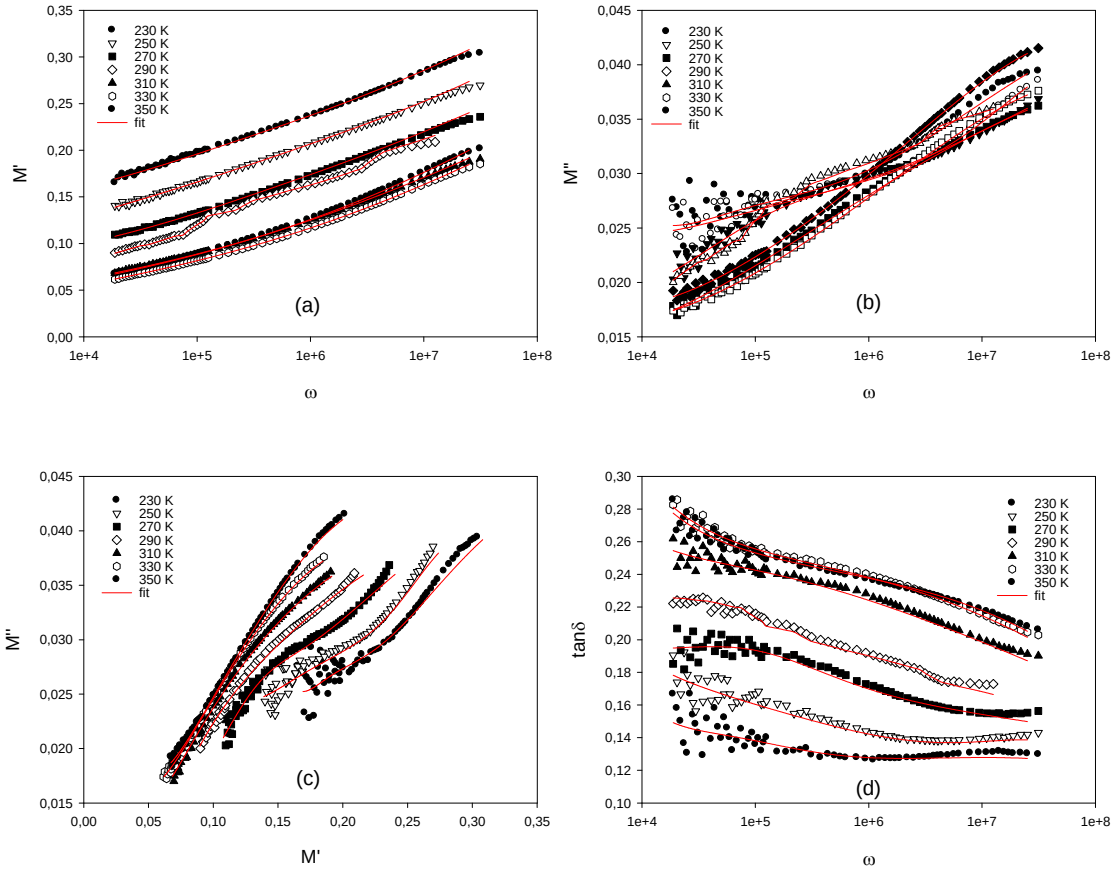


Şekil Ek-3.10 OUS 7,5 ton 50-63 μ numunesinin a) $M' - \log\omega$, b) $M'' - \log\omega$, c) $M' - M''$ ve d) $\tan\delta - \log\omega$ grafikleri

Çizelge Ek-3.10 OUS 7,5 ton 50-63 μ numunesinin fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-4}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-2}(s)	$A_\sigma(x10^{-5})\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	0,069	0,000	0,832	0,349	3,756	0,040	0,002	0,516	0,277	1,633	0,130	0,001
240	0,057	0,000	0,833	0,279	2,436	0,045	0,001	0,509	0,282	1,284	0,223	0,040
250	0,028	0,000	0,818	0,024	0,724	0,086	0,002	0,482	0,345	0,633	0,237	0,132
260	1,000	0,000	0,812	0,055	0,615	0,072	0,001	0,342	0,001	0,494	0,547	0,088
270	1,000	0,000	1,000	0,220	0,462	0,072	0,001	0,345	0,000	0,330	0,979	0,085
280	1,000	0,000	0,978	0,168	0,201	0,106	0,001	0,324	0,000	0,249	1,486	0,102
290	1,000	0,000	1,000	0,728	0,157	0,128	0,001	0,671	0,496	0,167	2,611	0,091
300	0,010	0,000	0,000	0,000	0,111	0,252	0,001	0,315	0,000	0,132	3,382	0,090
310	0,010	0,000	0,000	0,000	0,053	0,294	0,001	0,323	0,000	0,131	4,202	0,081
320	1,000	0,000	1,000	0,676	0,033	0,714	0,001	0,319	0,000	0,093	4,140	0,080
330	0,010	0,000	0,807	0,000	0,031	1,000	0,001	0,315	0,000	0,153	3,421	0,079
340	0,010	0,000	0,870	0,043	0,043	1,000	0,001	0,312	0,004	0,141	2,862	0,067
350	0,010	0,000	0,826	0,005	0,063	0,745	0,001	0,306	0,022	0,122	2,170	0,059
360	0,011	0,000	0,964	0,125	0,100	0,149	0,001	0,298	0,048	0,199	1,217	0,051

Ek-3.11. OÜP 2,5 ton 50-63 mikron arası

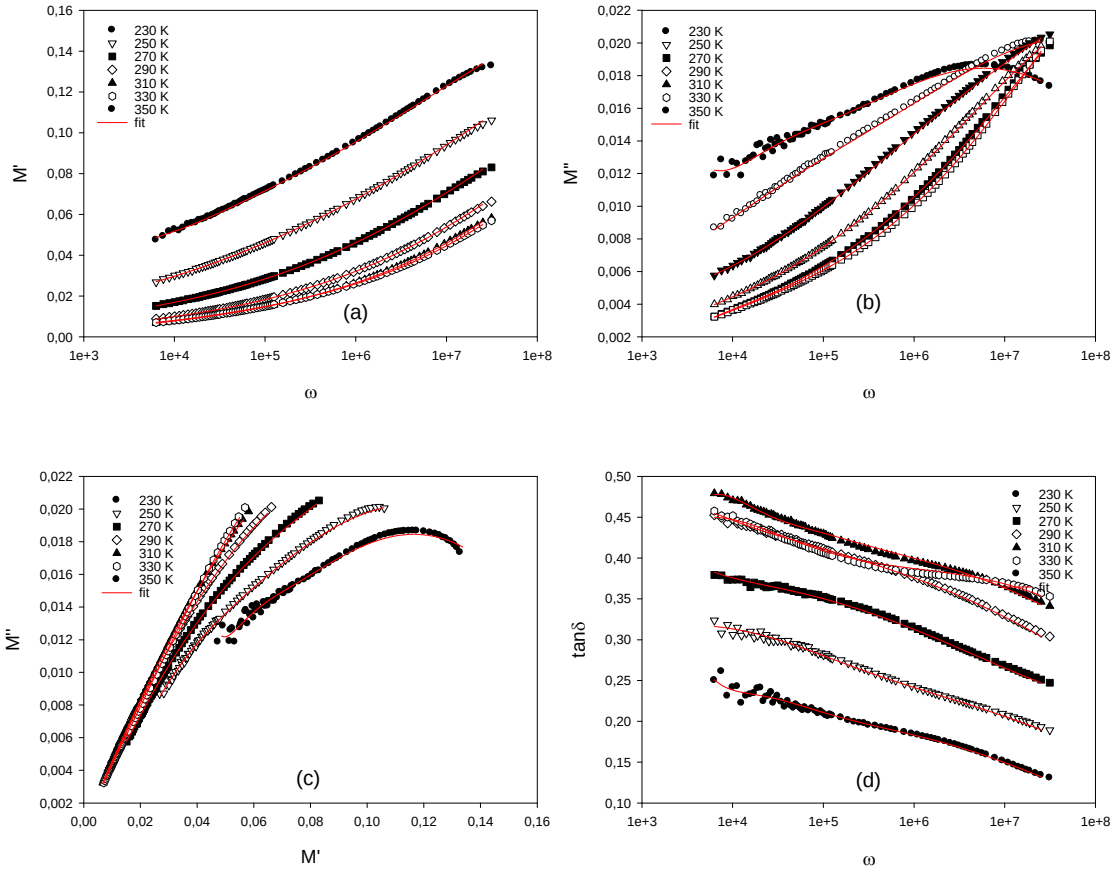


Şekil Ek-3.11 OÜP 2,5 ton 50-63 μ numunesinin a) $M'-\log\omega$, b) $M''-\log\omega$, c) $M'-M''$ ve d) $\tan\delta-\log\omega$ grafikleri

Çizelge Ek-3.11 OÜP 2,5 ton 50-63 μ numunesinin fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-3}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-3}(s)	$A_\sigma(x10^{-6})\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	0,164	0,073	0,861	0,176	2,680	0,450	0,011	0,326	0,255	9,226	1,608	0,122
240	1,000	0,069	0,870	0,837	1,942	0,014	0,000	1,000	0,001	5,320	4,797	0,116
250	0,060	0,000	0,775	0,133	0,879	0,378	0,074	0,442	0,580	4,632	0,018	0,000
260	0,066	0,000	0,741	0,169	0,438	0,330	0,063	0,407	0,497	4,026	0,000	0,000
270	0,010	0,001	1,000	0,274	0,374	0,989	0,067	0,146	0,122	2,975	0,008	0,001
280	1,000	0,000	0,800	0,124	0,293	0,395	0,050	0,383	0,492	2,633	0,005	0,000
290	0,377	0,021	0,848	0,711	0,121	0,111	0,021	0,555	0,478	1,667	0,029	0,030
300	0,965	0,026	0,845	0,781	0,096	0,119	0,012	0,633	0,526	1,583	0,428	0,001
310	0,345	0,021	0,897	0,720	0,082	0,110	0,016	0,481	0,448	1,438	0,242	0,038
320	0,311	0,021	0,935	0,709	0,044	0,111	0,016	0,562	0,525	1,110	0,631	0,000
330	0,305	0,020	0,921	0,682	0,049	0,090	0,016	0,408	0,360	1,231	0,501	0,031
340	0,306	0,017	0,936	0,672	0,058	0,102	0,018	0,554	0,522	1,573	0,331	0,022
350	0,312	0,017	0,948	0,661	0,058	0,097	0,018	0,565	0,502	2,100	0,311	0,000
360	0,346	0,019	0,937	0,659	0,063	0,081	0,015	0,563	0,391	2,569	0,150	0,010

Ek-3.12. OÜP 2,5 ton 125-250 mikron arası

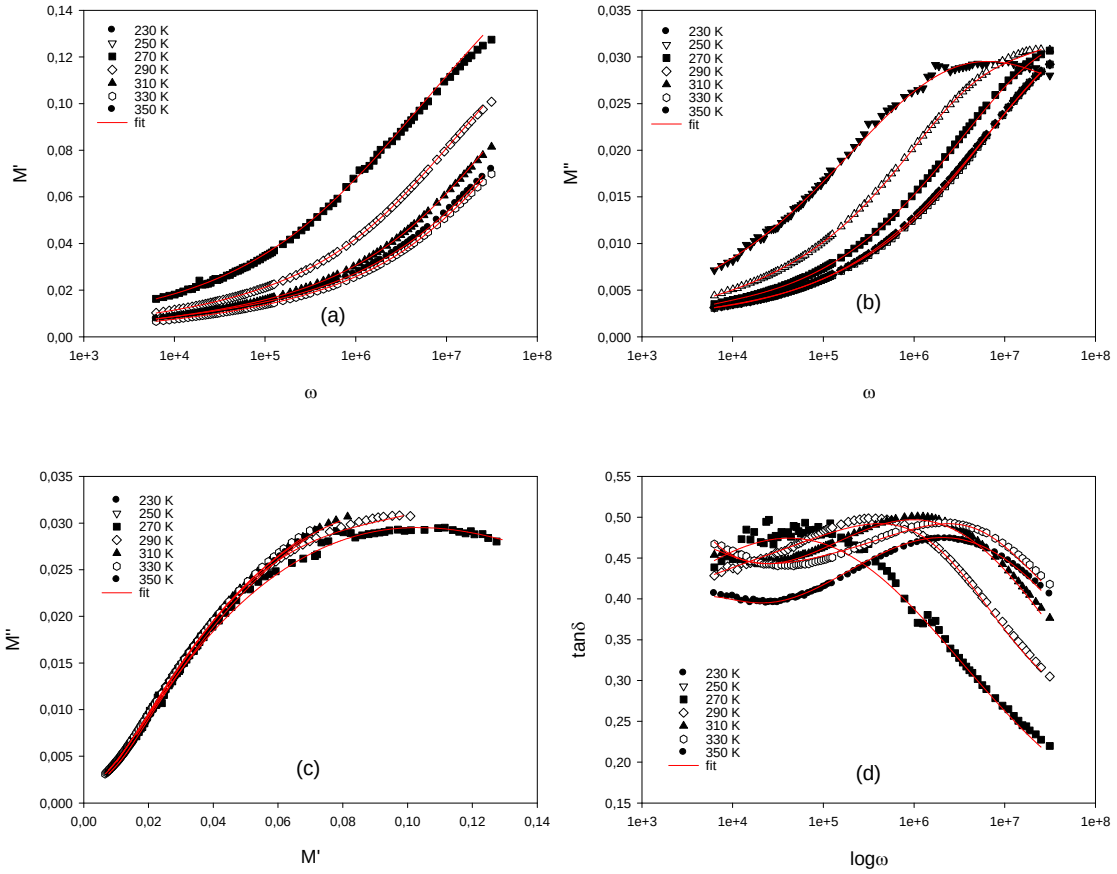


Şekil Ek-3.12 OÜP 2,5 ton 125-250 μ numunesinin a) $M' - \log \omega$, b) $M'' - \log \omega$, c) $M' - M''$ ve d) $\tan \delta - \log \omega$ grafikleri

Çizelge Ek-3.12 OÜP 2,5 ton 125-250 μ numunesinin fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-3}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-3}(s)	$A_\sigma(x10^{-6})\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	0,046	0,015	0,998	0,010	2,890	0,150	0,005	0,325	0,069	7,668	4,185	0,005
240	0,043	0,022	0,813	0,231	0,892	0,151	0,004	0,330	0,056	4,636	6,041	0,046
250	0,189	0,009	0,855	0,683	0,896	0,023	0,002	0,959	0,549	4,580	0,725	0,000
260	0,202	0,008	0,821	0,676	0,371	0,031	0,003	0,948	0,608	2,490	1,202	0,092
270	0,994	0,007	0,240	0,162	0,179	0,082	0,004	0,581	0,498	2,275	1,461	0,000
280	0,657	0,005	0,247	0,155	0,091	0,103	0,004	0,577	0,499	1,700	1,936	0,032
290	0,126	0,005	0,228	0,088	0,057	0,139	0,003	0,583	0,497	1,340	3,082	0,036
300	0,176	0,004	0,264	0,135	0,024	0,146	0,004	0,567	0,493	0,911	3,544	0,068
310	0,010	0,004	0,189	0,000	0,018	0,207	0,003	0,584	0,480	0,724	4,167	0,058
320	0,048	0,002	0,932	0,563	0,016	0,384	0,005	0,222	0,008	0,622	0,338	0,295
330	0,066	0,002	0,644	0,396	0,021	0,802	0,006	0,786	0,747	0,704	0,140	0,431
340	0,103	0,004	1,000	0,653	0,037	0,489	0,006	0,210	0,003	0,111	2,552	0,162
350	Fit sonucu yok.											
360												

Ek-3.13. OÜP 5 ton 50 mikron altı

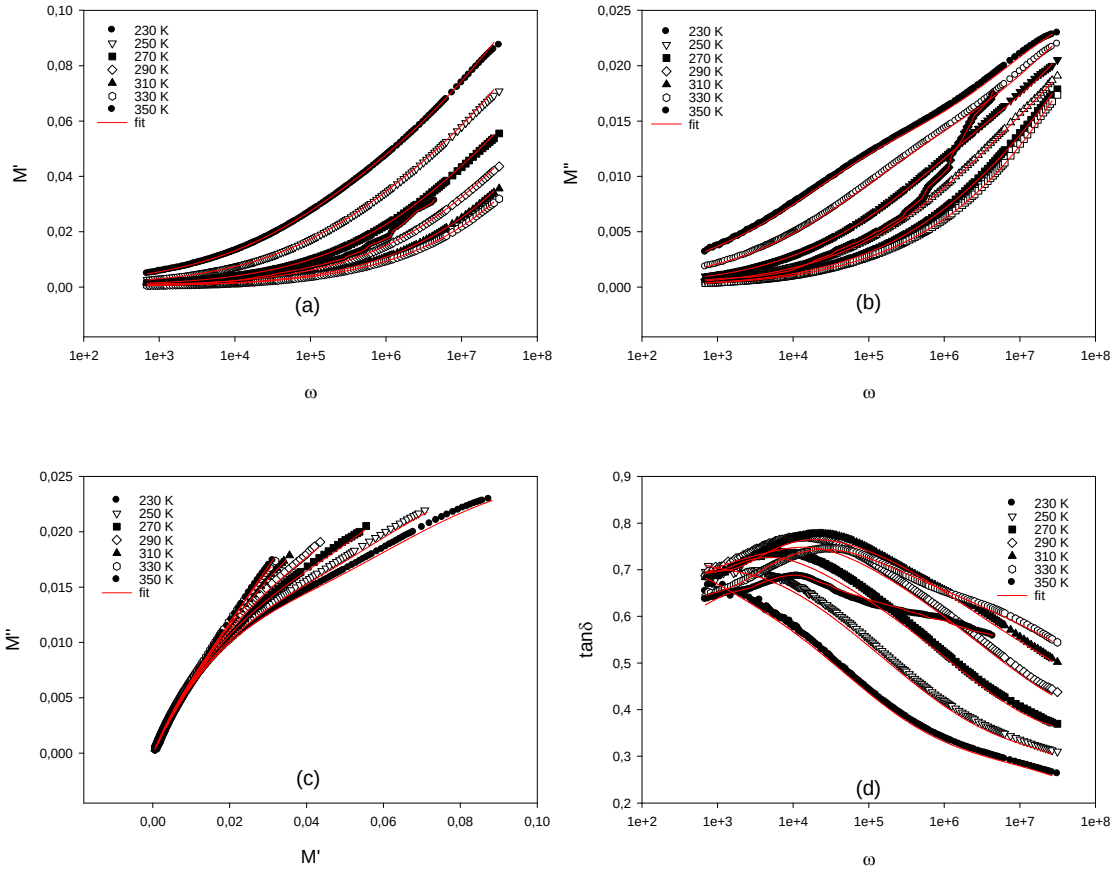


Şekil Ek-3.13 OÜP 5 ton 50 μ altı numunesinin a) $M' - \log \omega$, b) $M'' - \log \omega$, c) $M' - M''$ ve d) $\tan \delta - \log \omega$ grafikleri

Çizelge Ek-3.13 OÜP 5 ton 50 μ altı numunesinin fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-4}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-3}(s)	$A_\sigma(x10^{-6})\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	Fit sonucu yok.											
240												
250												
260												
270	0,493	0,006	0,530	0,630	2,991	0,135	0,003	0,691	0,405	2,931	1,038	0,008
280	0,122	0,005	0,336	0,741	2,314	0,179	0,003	0,686	0,408	2,183	1,309	0,000
290	0,038	0,001	0,828	0,244	1,108	1,000	0,018	0,176	0,006	1,867	0,009	0,688
300	0,042	0,001	0,881	0,316	0,938	1,000	0,005	0,252	0,037	1,403	0,567	0,000
310	0,115	0,003	0,874	0,466	0,822	1,000	0,002	0,965	0,006	1,373	0,010	0,797
320	0,089	0,002	0,717	0,316	0,531	1,000	0,003	0,813	0,722	1,199	0,282	0,305
330	0,019	0,000	0,839	0,169	0,444	1,000	0,004	0,455	0,416	0,921	0,641	0,066
340	0,143	0,003	0,994	0,561	0,497	1,000	0,003	0,202	0,001	0,957	7,042	0,024
350	0,161	0,004	0,998	0,571	0,563	1,000	0,003	0,180	0,055	1,005	4,714	0,072
360	0,187	0,005	0,422	0,004	0,613	0,010	0,004	0,409	0,019	1,130	0,993	0,155

Ek-3.14. OÜP 5 ton 50-63 mikron arası

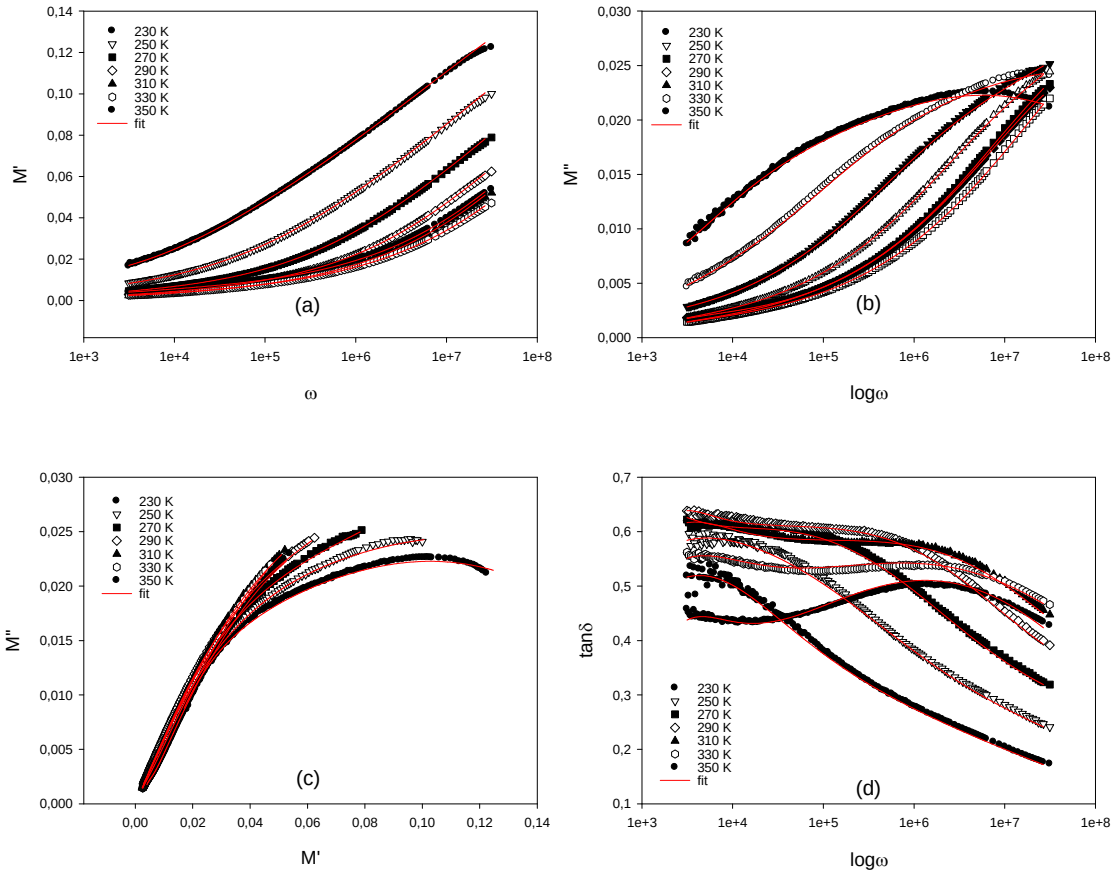


Şekil Ek-3.14 OÜP 5 ton 50-63 μ numunesinin a) $M'-\log\omega$, b) $M''-\log\omega$, c) $M'-M''$ ve d) $\tan\delta-\log\omega$ grafikleri

Çizelge Ek-3.14 OÜP 5 ton 50-63 μ numunesinin fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-3}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-3}(s)	$A_\sigma(x10^{-6})\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	0,172	0,002	0,469	0,268	3,552	0,033	0,002	0,948	0,524	7,356	0,736	0,003
240	0,171	0,001	0,472	0,249	2,253	0,035	0,001	0,946	0,536	6,102	0,791	0,062
250	0,091	0,000	0,590	0,120	0,861	0,065	0,003	0,589	0,361	3,783	0,122	0,292
260	0,393	0,000	0,440	0,000	0,358	0,067	0,002	0,510	0,240	2,621	0,467	0,150
270	1,000	0,000	0,444	0,040	0,280	0,063	0,001	0,438	0,079	2,321	1,759	0,000
280	0,173	0,000	0,457	0,000	0,231	0,051	0,001	0,763	0,464	1,983	1,159	0,179
290	1,000	0,000	0,453	0,000	0,101	0,072	0,001	0,691	0,440	1,467	1,069	0,251
300	0,068	0,000	0,687	0,002	0,095	0,060	0,005	0,998	0,381	1,196	0,167	0,578
310	0,085	0,000	0,987	0,426	0,066	0,037	0,001	0,507	0,161	0,989	7,131	0,045
320	1,000	0,000	0,999	0,435	0,042	0,113	0,002	0,377	0,102	0,776	0,449	0,445
330	0,010	0,000	0,439	0,000	0,034	0,247	0,001	0,426	0,170	0,821	1,374	0,286
340	0,010	0,000	0,362	0,000	0,049	0,246	0,001	0,424	0,124	0,894	4,022	0,136
350	0,153	0,000	0,535	0,072	0,068	0,037	0,001	0,611	0,459	0,912	3,369	0,223
360	0,074	0,000	1,000	0,383	0,086	0,029	0,013	0,688	0,811	1,280	0,197	0,582

Ek-3.15. OÜP 5 ton 63-125 mikron arası

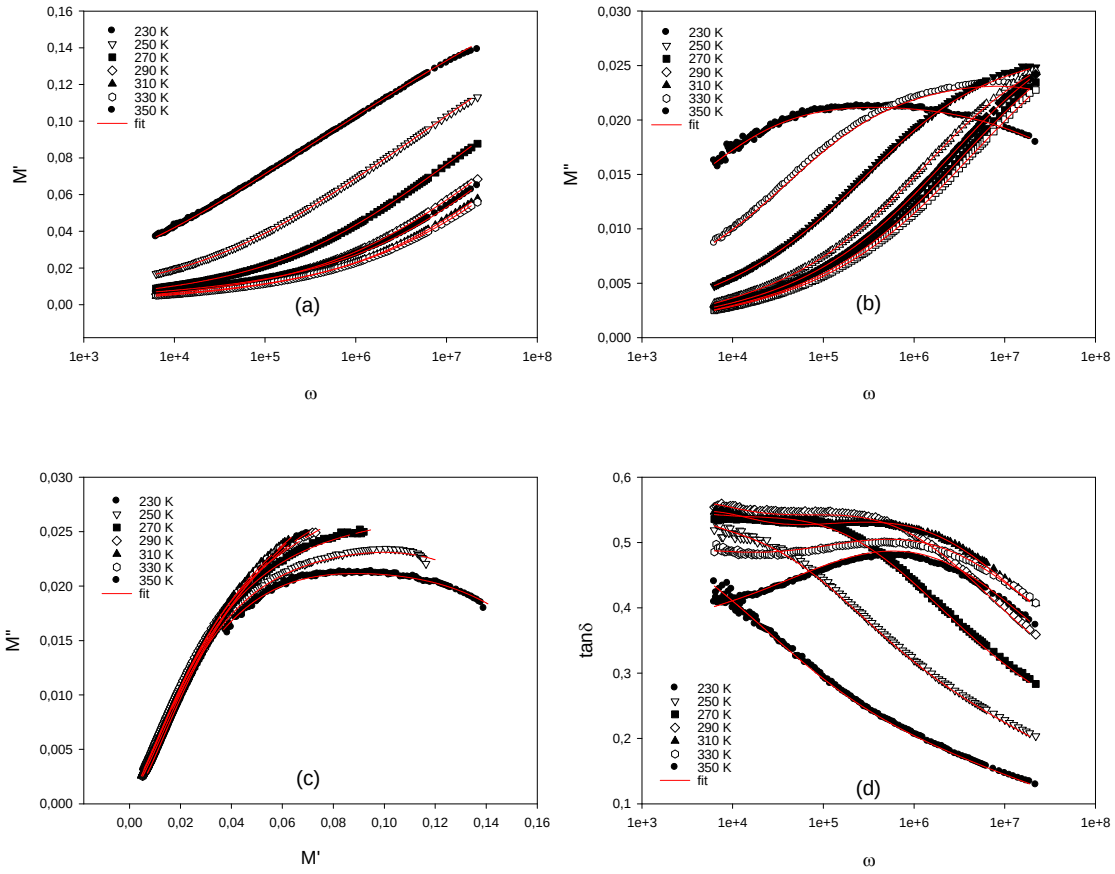


Şekil Ek-3.15 OÜP 5 ton 63-125 μ numunesinin a) $M' - \log\omega$, b) $M'' - \log\omega$, c) $M' - M''$ ve d) $\tan\delta - \log\omega$ grafikleri

Çizelge Ek-3.15 OÜP 5 ton 63-125 μ numunesinin fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-3}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-3}(s)	$A_\sigma(x10^{-5})\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	0,185	0,008	0,281	0,002	5,222	0,022	0,002	0,652	0,352	5,813	0,615	0,003
240	0,172	0,005	0,309	0,000	2,128	0,030	0,001	0,717	0,371	5,992	0,192	0,000
250	0,163	0,003	0,328	0,005	0,858	0,052	0,002	0,843	0,491	3,241	0,117	0,000
260	0,096	0,000	0,560	0,137	0,350	0,079	0,002	0,997	0,570	2,160	0,061	0,000
270	0,043	0,002	0,516	0,083	0,278	0,237	0,002	0,670	0,528	1,983	0,316	0,002
280	0,054	0,002	0,473	0,000	0,203	0,994	0,002	0,564	0,489	1,181	0,556	0,002
290	0,047	0,001	0,498	0,001	0,097	1,000	0,002	0,561	0,494	1,217	0,389	0,075
300	0,035	0,001	0,637	0,158	0,053	0,994	0,002	0,305	0,067	0,858	0,299	0,092
310	0,050	0,001	0,528	0,060	0,046	1,000	0,002	0,278	0,013	0,670	0,639	0,040
320	0,052	0,001	0,998	0,523	0,062	1,000	0,002	0,295	0,004	0,610	0,830	0,032
330	0,074	0,001	0,884	0,508	0,078	0,507	0,001	0,308	0,076	0,781	1,147	0,002
340	0,139	0,002	0,429	0,003	0,104	0,026	0,002	0,284	0,274	1,094	0,567	0,062
350	0,146	0,003	0,413	0,000	0,113	1,000	0,003	0,081	0,000	1,112	0,341	0,125
360	0,179	0,004	0,388	0,000	0,119	0,086	0,003	0,458	0,881	1,496	0,232	0,158

Ek-3.16. OÜP 5 ton 125-250 mikron arası

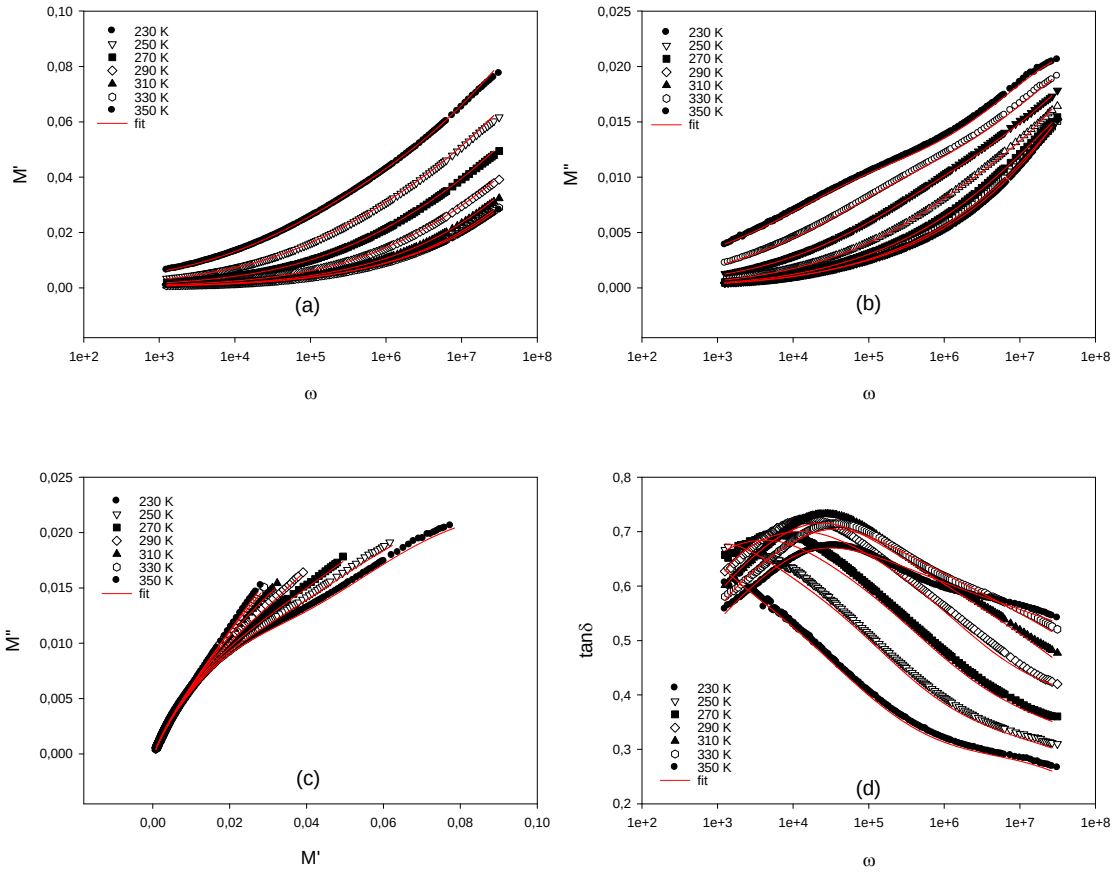


Şekil Ek-3.16 OÜP 5 ton 125-250 μ numunesinin a) $M' - \log \omega$, b) $M'' - \log \omega$, c) $M' - M''$ ve d) $\tan \delta - \log \omega$ grafikleri

Çizelge Ek-3.16 OÜP 5 ton 125-250 μ numunesinin fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-3}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-3}(s)	$A_\sigma(x10^{-6})\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	0,152	0,008	0,291	0,006	4,121	0,052	0,006	0,898	0,501	5,013	0,115	0,056
240	0,034	0,009	0,550	0,070	2,695	0,168	0,008	0,327	0,080	2,854	2,290	0,123
250	0,043	0,003	0,804	0,398	0,828	0,153	0,004	0,944	0,647	2,531	0,391	0,093
260	0,039	0,002	0,745	0,356	0,659	0,160	0,003	0,913	0,634	2,173	0,464	0,088
270	0,045	0,003	0,734	0,348	0,199	0,189	0,003	0,885	0,648	1,330	0,491	0,208
280	0,055	0,002	0,668	0,284	0,204	0,385	0,003	0,842	0,670	0,875	0,491	0,247
290	0,051	0,002	0,602	0,176	0,084	0,732	0,003	0,847	0,682	0,596	0,765	0,238
300	0,041	0,002	0,638	0,212	0,053	0,320	0,003	0,888	0,669	0,435	0,674	0,262
310	0,032	0,002	0,585	0,077	0,020	0,998	0,004	0,824	0,676	0,402	0,495	0,319
320	0,028	0,002	0,616	0,194	0,011	0,269	0,003	0,846	0,639	0,373	0,827	0,264
330	0,038	0,002	0,977	0,478	0,017	1,000	0,003	0,409	0,334	0,426	1,984	0,156
340	0,047	0,003	0,621	0,249	0,021	0,411	0,003	0,862	0,682	0,608	0,526	0,292
350	0,061	0,002	0,813	0,422	0,056	1,000	0,003	0,847	0,703	0,746	0,129	0,407
360	0,135	0,004	0,442	0,032	0,092	0,079	0,003	0,910	0,001	0,783	0,005	0,862

Ek-3.17. OÜP 7,5 ton 50 mikron altı

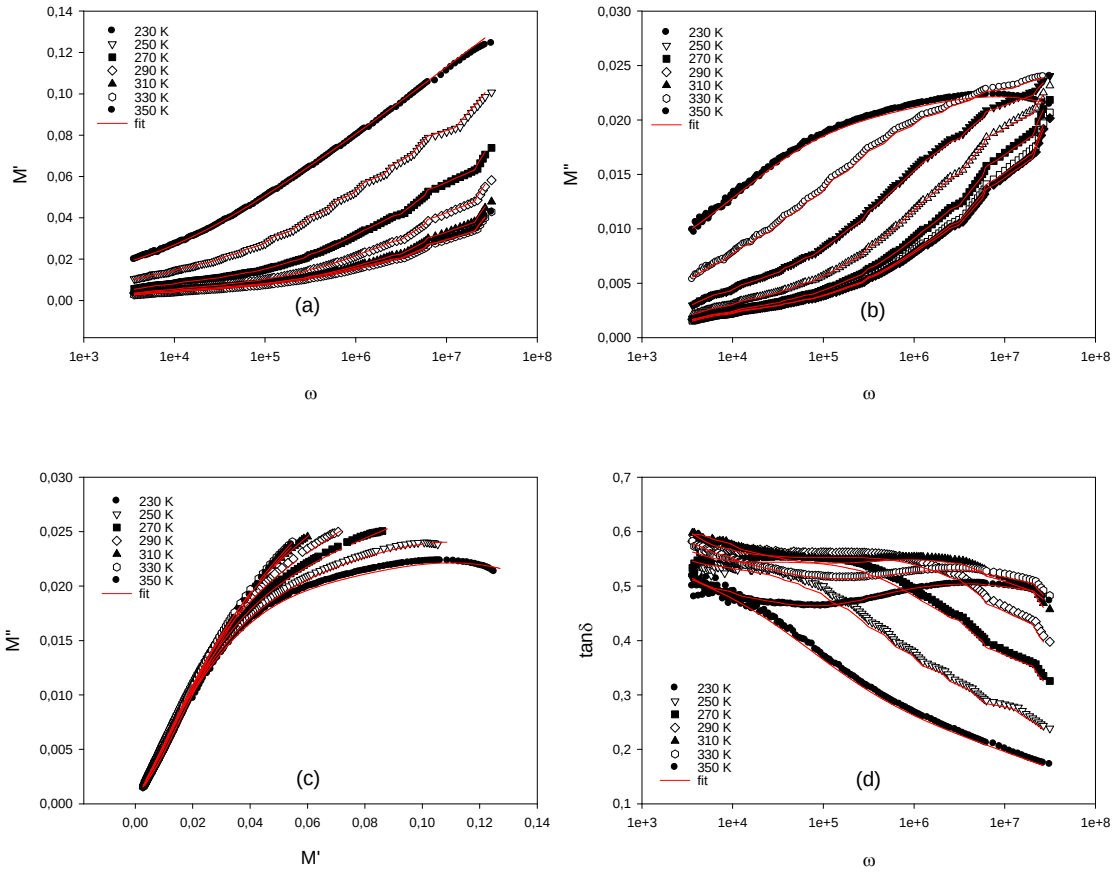


Şekil Ek-3.17 OÜP 7,5 ton 50 μ altı numunesinin a) $M' - \log \omega$, b) $M'' - \log \omega$, c) $M' - M''$ ve d) $\tan \delta - \log \omega$ grafikleri

Çizelge Ek-3.17 OÜP 7,5 ton 50 μ altı numunesinin fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-3}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-2}(s)	$A_\sigma(x10^{-6})\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	0,123	0,001	0,424	0,040	2,395	0,039	0,002	0,846	0,508	1,131	0,273	0,001
240	0,017	0,001	0,585	0,180	0,811	0,264	0,003	0,814	0,663	0,578	0,284	0,251
250	0,015	0,001	0,594	0,146	0,558	0,194	0,002	0,826	0,629	0,386	0,546	0,200
260	0,013	0,001	0,522	0,003	0,274	0,258	0,002	0,777	0,629	0,293	0,524	0,252
270	0,010	0,001	0,520	0,003	0,263	0,231	0,002	0,688	0,572	0,353	0,412	0,316
280	0,238	0,001	0,474	0,155	0,296	0,038	0,001	0,573	0,303	0,226	2,699	0,063
290	0,010	0,001	0,530	0,000	0,103	0,393	0,001	0,669	0,539	0,163	1,183	0,276
300	0,167	0,000	0,464	0,000	0,092	0,052	0,001	0,585	0,385	0,140	0,967	0,295
310	0,010	0,000	0,405	0,000	0,051	0,160	0,001	0,488	0,311	0,133	1,222	0,301
320	0,010	0,000	0,316	0,000	0,048	0,160	0,001	0,506	0,316	0,095	1,000	0,338
330	0,010	0,000	0,368	0,000	0,044	0,227	0,001	0,547	0,382	0,085	1,471	0,311
340	0,010	0,000	0,302	0,000	0,024	0,283	0,001	0,418	0,182	0,072	1,962	0,263
350	0,011	0,000	0,009	1,000	0,020	0,412	0,001	0,419	0,218	0,062	1,512	0,306
360	0,010	0,000	0,000	0,114	0,018	1,000	0,002	0,368	0,140	0,059	1,510	0,294

Ek-3.18. OÜP 7,5 ton 50-63 mikron arası

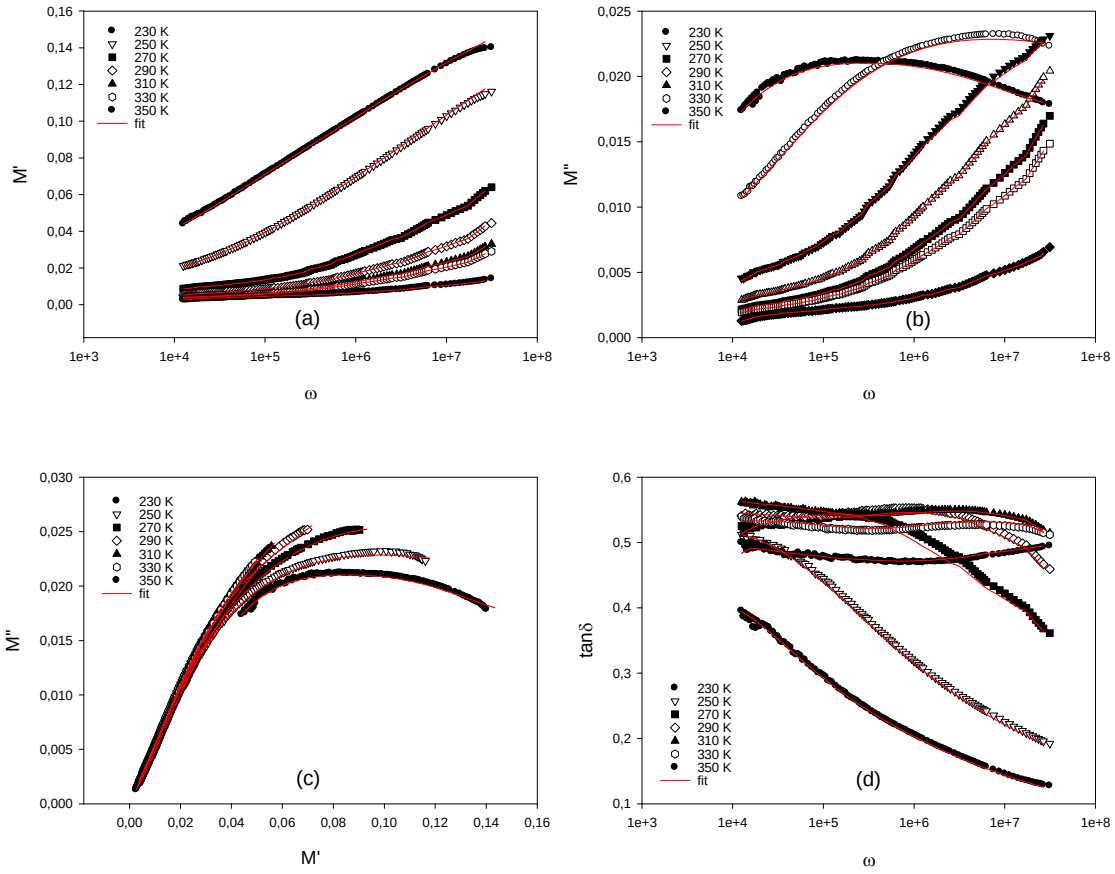


Şekil Ek-3.18 OÜP 7,5 ton 50-63 μ numunesinin a) $M' - \log \omega$, b) $M'' - \log \omega$, c) $M' - M''$ ve d) $\tan \delta - \log \omega$ grafikleri

Çizelge Ek-3.18 OÜP 7,5 ton 50-63 μ numunesinin fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-4}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-3}(s)	A_σ(x10^{-6}) $\left(\frac{S}{m} \times s^n\right)$	n
230	0,038	0,005	0,784	0,371	9,370	0,168	0,005	0,931	0,667	5,268	0,159	0,165
240	0,036	0,004	0,750	0,357	6,018	0,173	0,004	0,905	0,655	5,812	0,156	0,226
250	0,033	0,003	0,544	0,107	5,431	0,179	0,004	0,893	0,646	3,216	0,281	0,124
260	0,029	0,002	0,730	0,299	2,261	0,182	0,003	0,913	0,640	2,112	0,459	0,144
270	0,034	0,002	0,523	0,043	1,150	0,232	0,003	0,875	0,656	1,463	0,521	0,190
280	0,032	0,002	0,615	0,152	0,753	0,282	0,003	0,877	0,655	1,371	0,924	0,167
290	0,018	0,001	0,998	0,392	0,423	0,248	0,003	0,740	0,580	0,960	0,250	0,315
300	0,020	0,001	0,879	0,367	0,212	0,229	0,002	0,853	0,610	0,675	0,812	0,224
310	0,024	0,001	0,786	0,283	0,193	0,321	0,003	0,854	0,638	0,656	0,629	0,273
320	0,030	0,001	0,868	0,363	0,137	1,000	0,003	0,285	0,001	0,487	4,805	0,040
330	0,026	0,002	0,966	0,413	0,077	0,973	0,003	0,292	0,003	0,512	6,034	0,013
340	0,032	0,001	0,663	0,203	0,085	1,000	0,003	0,291	0,063	0,685	2,802	0,082
350	0,038	0,001	0,539	0,003	0,101	1,000	0,003	0,266	0,054	0,710	1,072	0,161
360	0,110	0,002	0,981	0,490	0,181	0,034	0,002	0,733	0,547	1,300	5,249	0,010

Ek-3.19. OÜP 7,5 ton 63-125 mikron arası

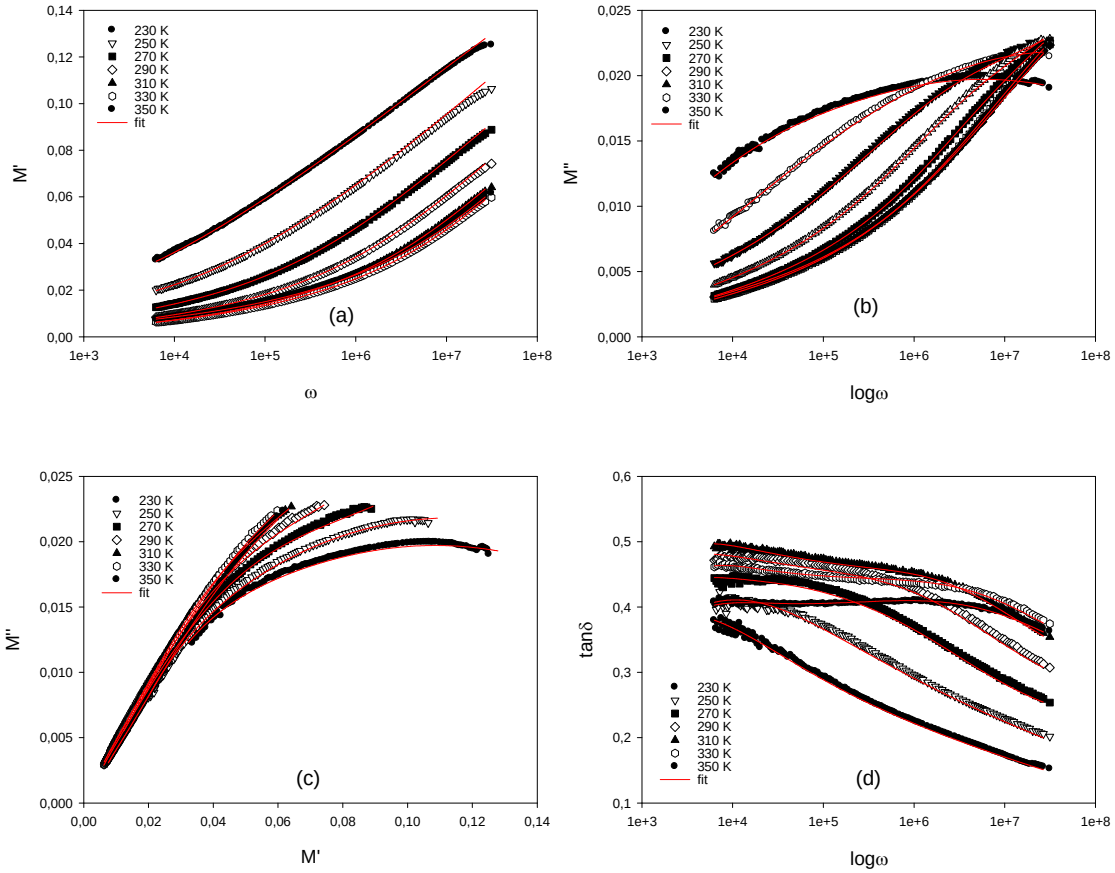


Şekil Ek-3.19 OÜP 7,5 ton 63-125 μ numunesinin a) $M'-\log\omega$, b) $M''-\log\omega$, c) $M'-M''$ ve d) $\tan\delta-\log\omega$ grafikleri

Çizelge Ek-3.19 OÜP 7,5 ton 63-125 μ numunesinin fit parametreleri

T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-4}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-3}(s)	$A_\sigma(x10^{-6})\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	0,102	0,022	0,408	0,000	8,531	0,393	0,010	0,292	0,503	7,605	1,068	0,387
240	0,089	0,017	0,441	0,000	4,983	0,587	0,009	0,312	0,475	4,313	4,487	0,295
250	0,019	0,003	1,000	0,477	2,026	0,367	0,043	0,118	0,000	2,327	0,020	0,582
260	0,056	0,002	0,997	0,772	1,510	0,529	0,041	0,112	0,084	2,193	0,052	0,531
270	0,019	0,002	1,000	0,746	1,532	0,401	0,038	0,123	0,005	1,160	0,067	0,544
280	0,036	0,002	0,570	0,023	0,423	0,969	0,004	0,246	0,001	1,286	0,605	0,194
290	0,028	0,002	0,587	0,000	0,198	0,888	0,004	0,258	0,001	0,954	0,659	0,218
300	0,018	0,001	0,634	0,002	0,086	0,425	0,004	0,327	0,119	0,524	0,965	0,191
310	0,019	0,001	0,631	0,001	0,088	1,000	0,004	0,302	0,091	0,488	0,880	0,221
320	0,011	0,001	0,686	0,001	0,046	1,000	0,003	0,348	0,183	0,398	0,675	0,252
330	0,013	0,002	0,997	0,359	0,026	0,648	0,003	0,308	0,001	0,436	5,630	0,040
340	0,072	0,002	0,653	0,196	0,033	0,082	0,002	0,440	0,227	0,491	9,866	0,001
350	0,020	0,001	0,987	0,431	0,062	0,957	0,003	0,562	0,498	0,680	0,765	0,241
360	0,023	0,002	0,993	0,420	0,062	0,934	0,003	0,528	0,481	0,680	0,561	0,248

Ek-3.20. OÜP 7,5 ton 125-250 mikron arası



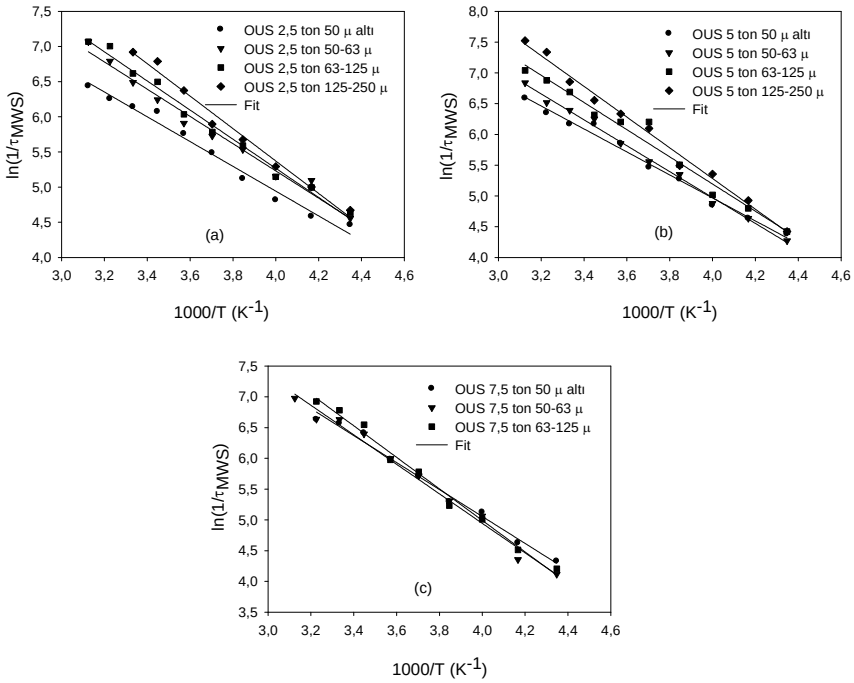
Şekil Ek-3.20 OÜP 7,5 ton 125-250 μ numunesinin a) $M' - \log\omega$, b) $M'' - \log\omega$, c) $M' - M''$ ve d) $\tan\delta - \log\omega$ grafikleri

Çizelge Ek-3.20 OÜP 7,5 ton 125-250 μ numunesinin fit parametreleri

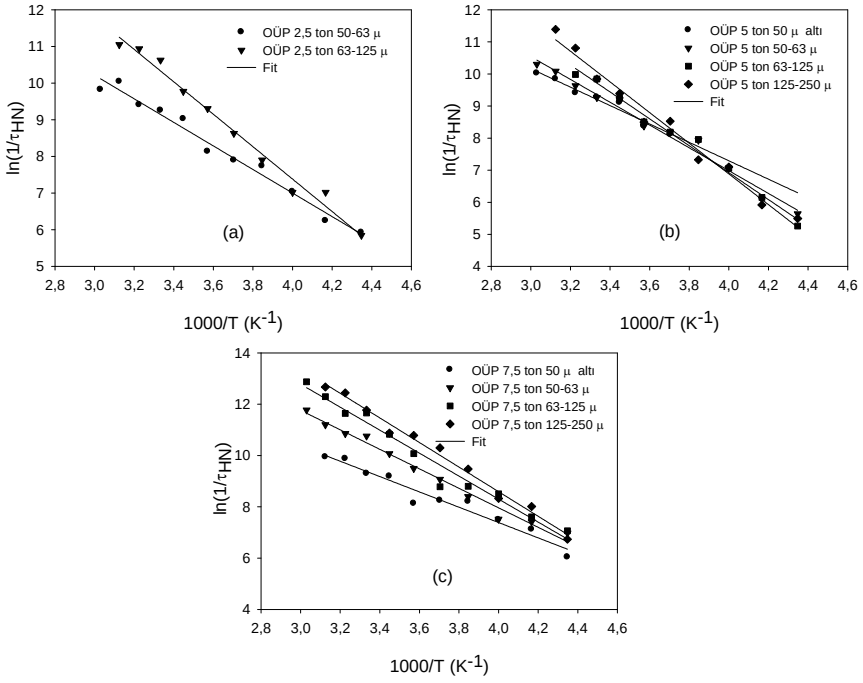
T(K)	$M_{\infty HN}$	M_{sHN}	α_{HN}	γ_{HN}	τ_{HN} x10^{-3}(s)	$M_{\infty MWS}$	M_{sMWS}	α_{MWS}	γ_{MWS}	τ_{MWS} x10^{-3}(s)	$A_\sigma(x10^{-7})\left(\frac{S}{m}\times s^n\right)$	n
230	0,116	0,010	0,453	0,409	1,189	0,331	0,024	0,093	0,031	3,208	0,244	0,481
240	0,069	0,007	0,543	0,408	0,332	0,881	0,025	0,107	0,000	1,673	0,189	0,504
250	0,093	0,007	0,508	0,409	0,243	0,740	0,021	0,104	0,000	1,973	0,335	0,517
260	0,062	0,005	0,610	0,414	0,077	1,000	0,020	0,125	0,006	0,875	0,367	0,512
270	0,021	0,002	0,532	0,001	0,034	0,929	0,016	0,168	0,000	0,726	0,263	0,503
280	0,027	0,002	0,999	0,450	0,021	0,913	0,007	0,224	0,004	0,598	2,081	0,308
290	0,032	0,003	1,000	0,487	0,019	0,730	0,007	0,360	0,374	0,332	3,228	0,313
300	0,022	0,002	1,000	0,443	0,008	0,418	0,007	0,371	0,343	0,315	3,074	0,318
310	0,020	0,002	0,999	0,411	0,004	0,807	0,007	0,369	0,357	0,216	4,224	0,315
320	0,023	0,003	0,967	0,419	0,003	0,983	0,007	0,369	0,357	0,159	5,320	0,308
330	0,029	0,003	0,966	0,463	0,004	1,000	0,007	0,367	0,361	0,138	5,221	0,313
340	0,036	0,003	0,984	0,487	0,003	1,000	0,007	0,353	0,364	0,150	4,573	0,327
350	0,047	0,004	0,926	0,518	0,006	0,950	0,006	0,366	0,383	0,250	6,139	0,280
360	0,063	0,004	0,998	0,559	0,009	0,573	0,006	0,354	0,397	0,280	3,792	0,317

Ek-4. Arrhenius grafikleri

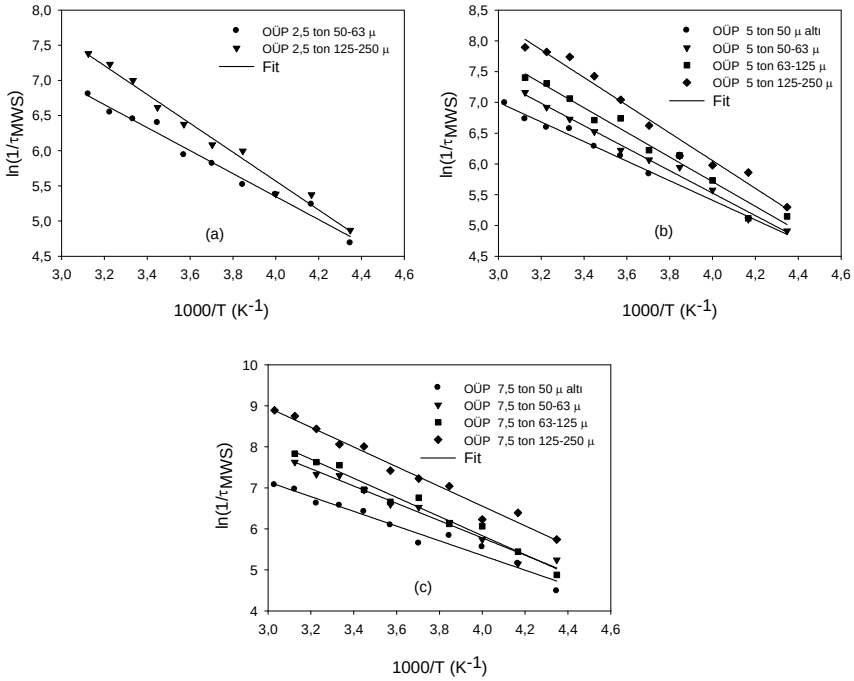
Ek-4.1. Parçacık büyüklüğüne göre Arrhenius grafikleri



Şekil Ek-4.1 Sabit basınçta MWS süreci için OUS grubunun Arrhenius grafikleri

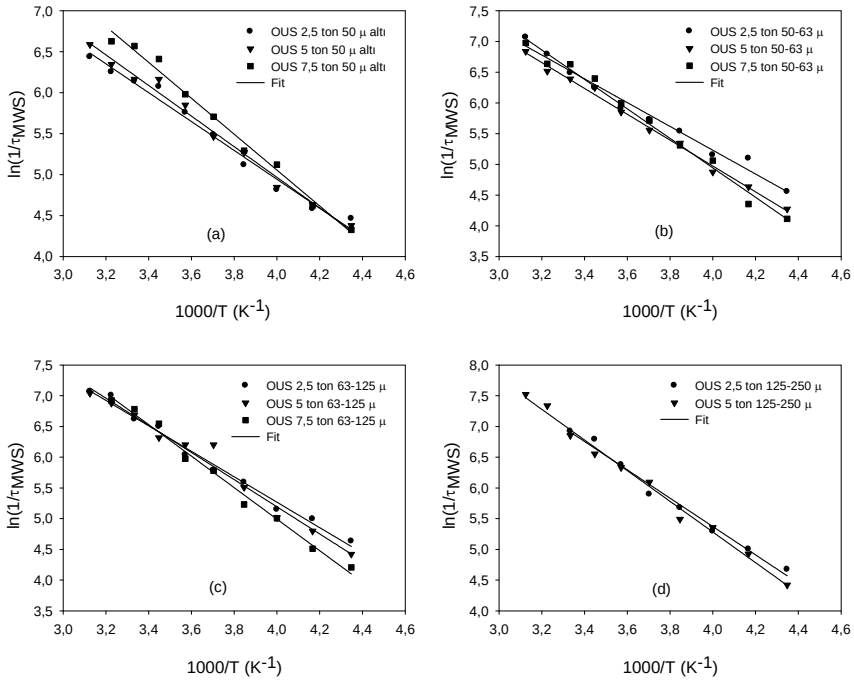


Şekil Ek-4.2 Sabit basınçta HN süreci için OÜP grubunun Arrhenius grafikleri

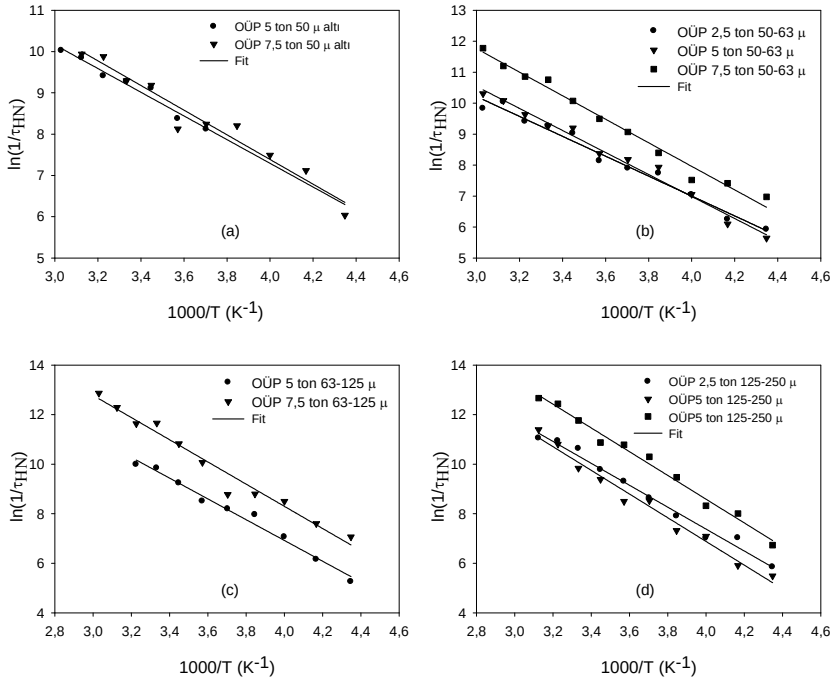


Şekil Ek-4.3 Sabit basınçta MWS süreci için OÜP grubunun Arrhenius grafikleri

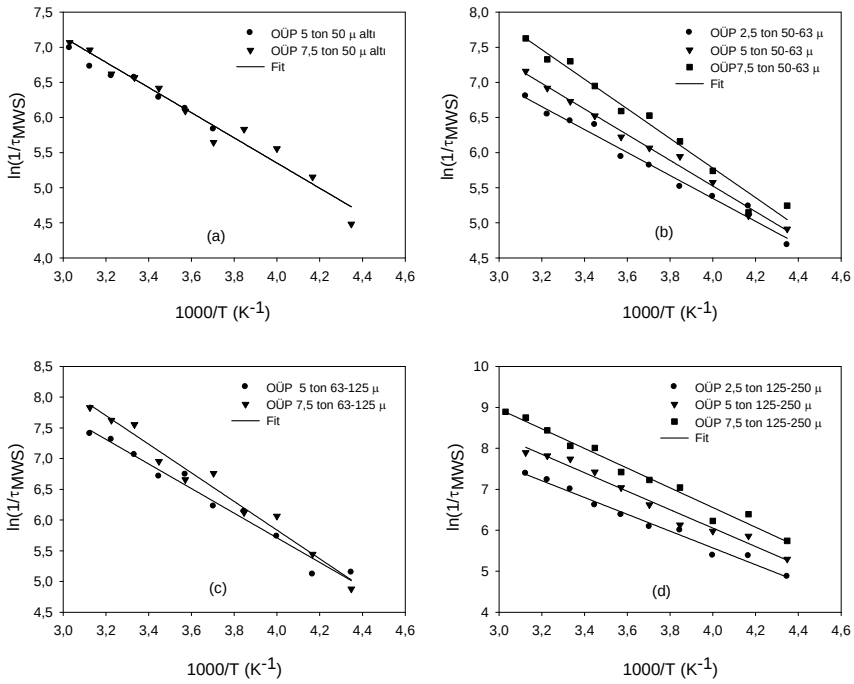
Ek-4.2. Basınca göre Arrhenius grafikleri



Şekil Ek-4.4 Sabit parçacık büyüklüğünde MWS süreci için OUS grubunun Arrhenius grafikleri



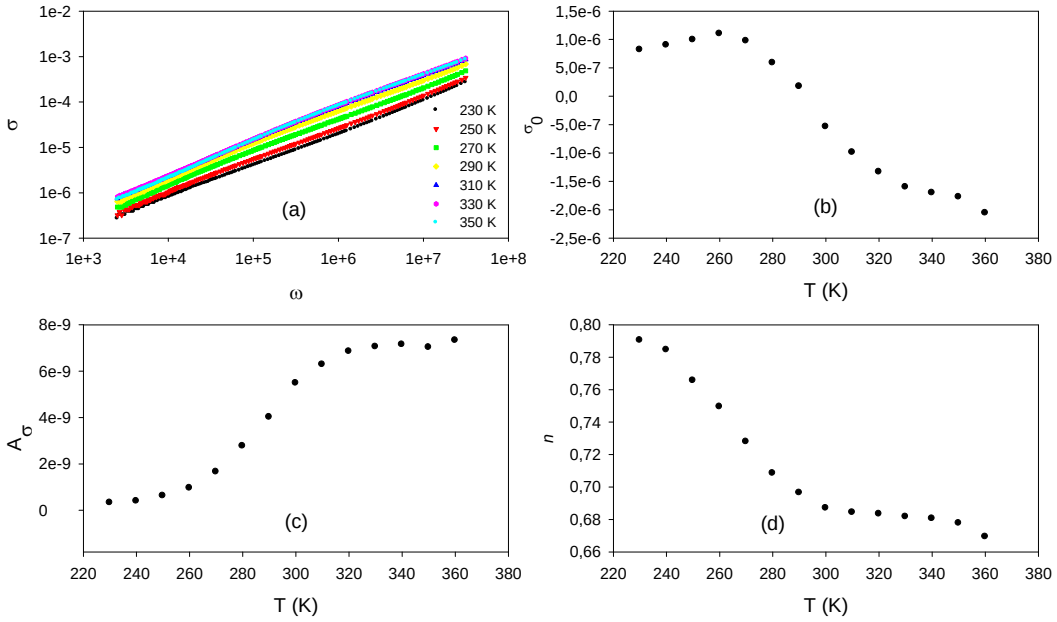
Şekil Ek-4.5 Sabit parçacık büyüklüğünde HN süreci için OÜP grubunun Arrhenius grafikleri



Şekil Ek-4.6 Sabit parçacık büyüklüğünde MWS süreci için OÜP grubunun Arrhenius grafikleri

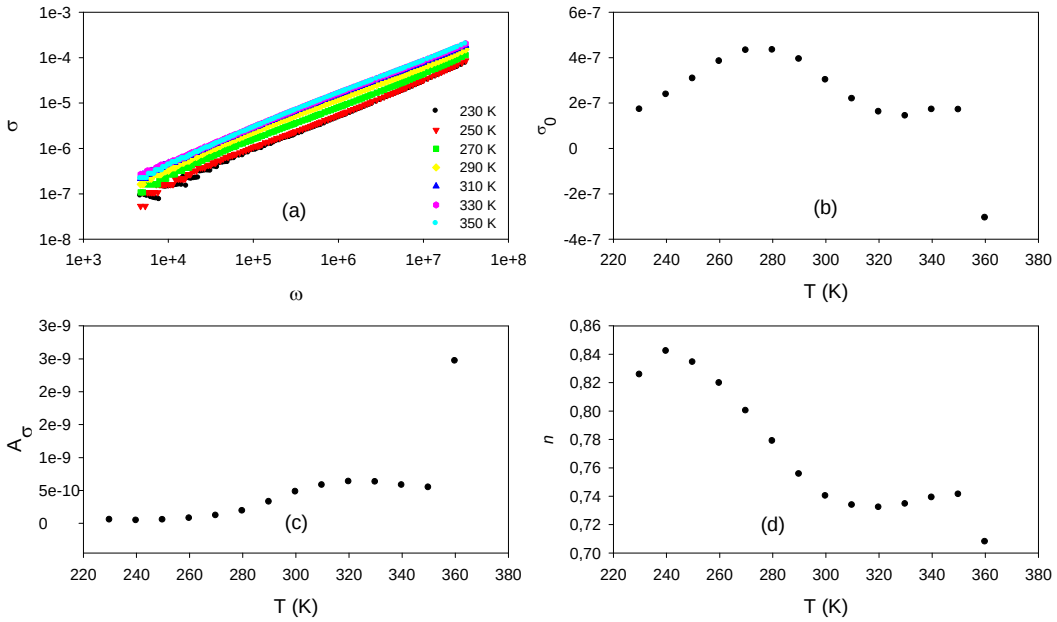
Ek-5. İletkenlik grafikleri ve fit parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OUS 2,5 ton 50 μ



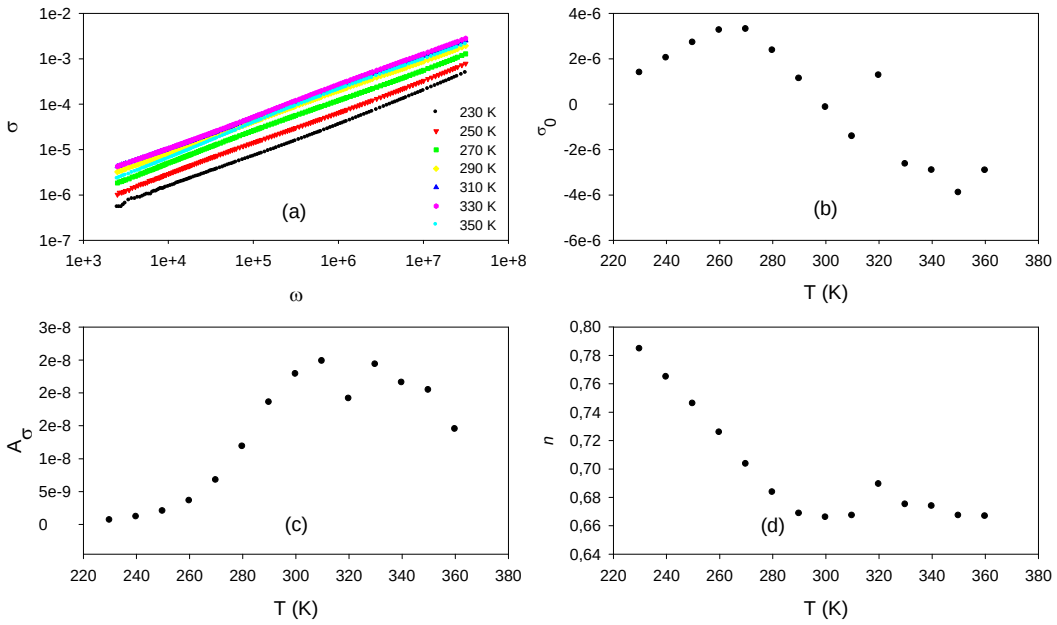
Şekil Ek-5.1 OUS 2,5 ton 50 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OUS 2,5 ton 50-63 μ



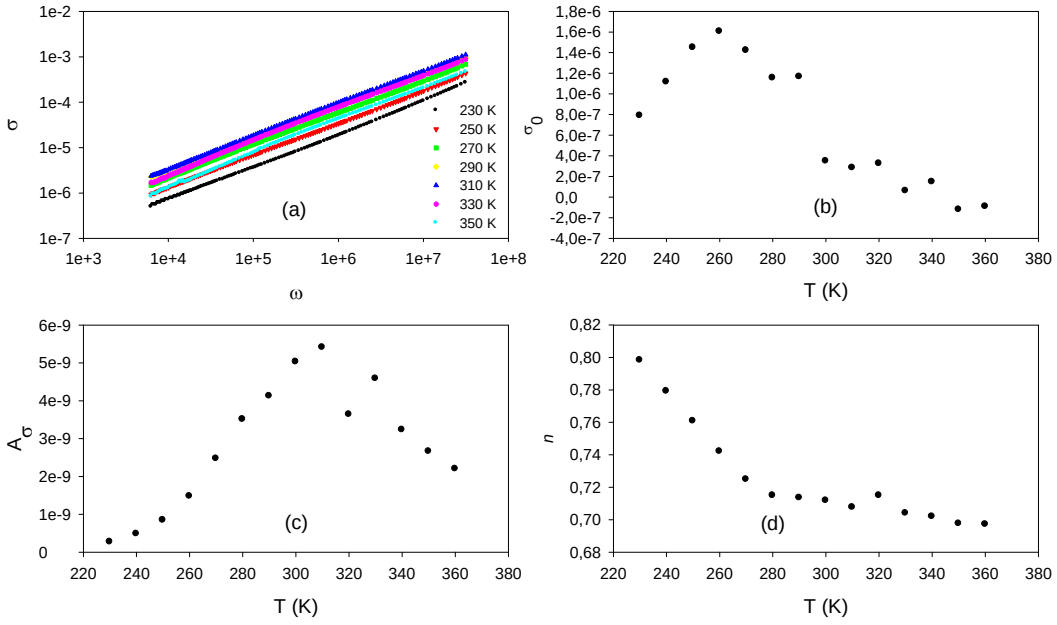
Şekil Ek-5.2 OUS 2,5 ton 50-63 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OUS 2,5 ton 63-125 μ



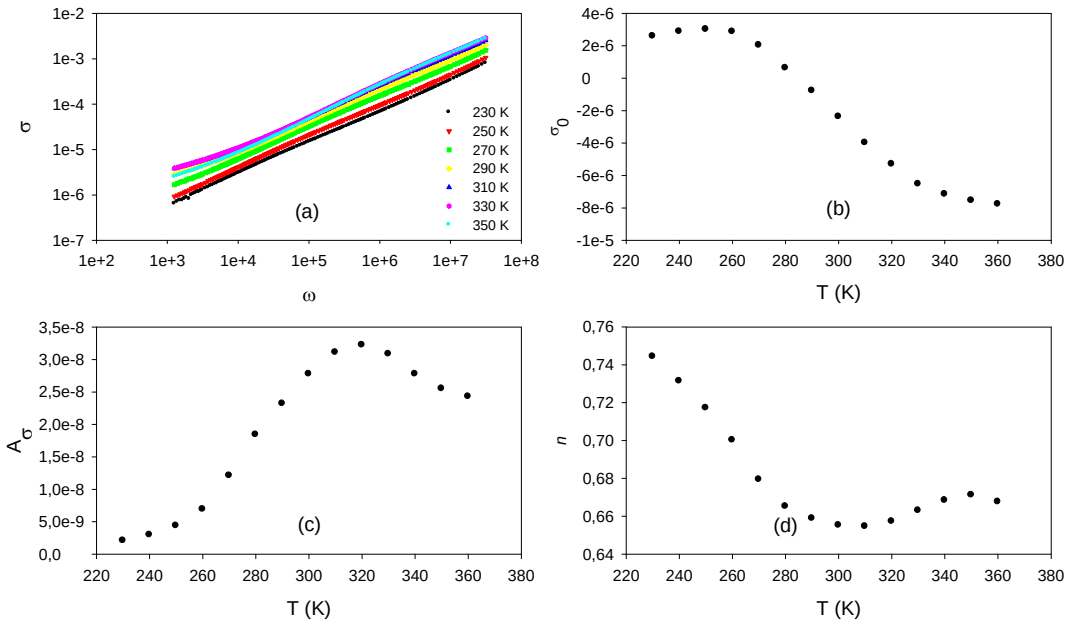
Şekil Ek-5.3 OUS 2,5 ton 63-125 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OUS 2,5 ton 125-250 μ



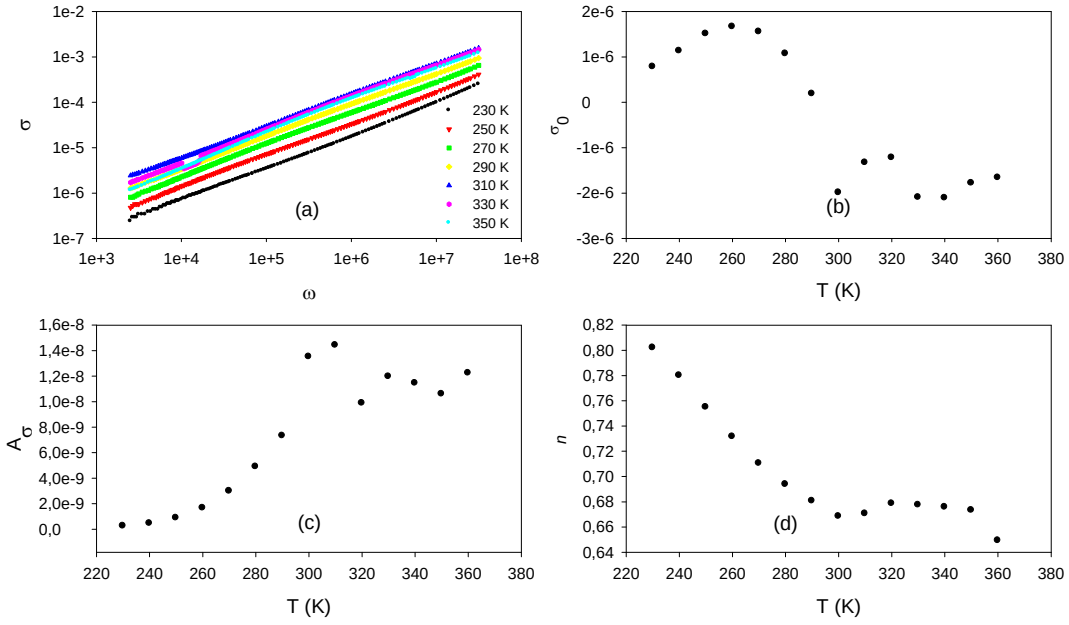
Şekil Ek-5.4 OUS 2,5 ton 125-250 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OUS 5 ton 50-63 μ



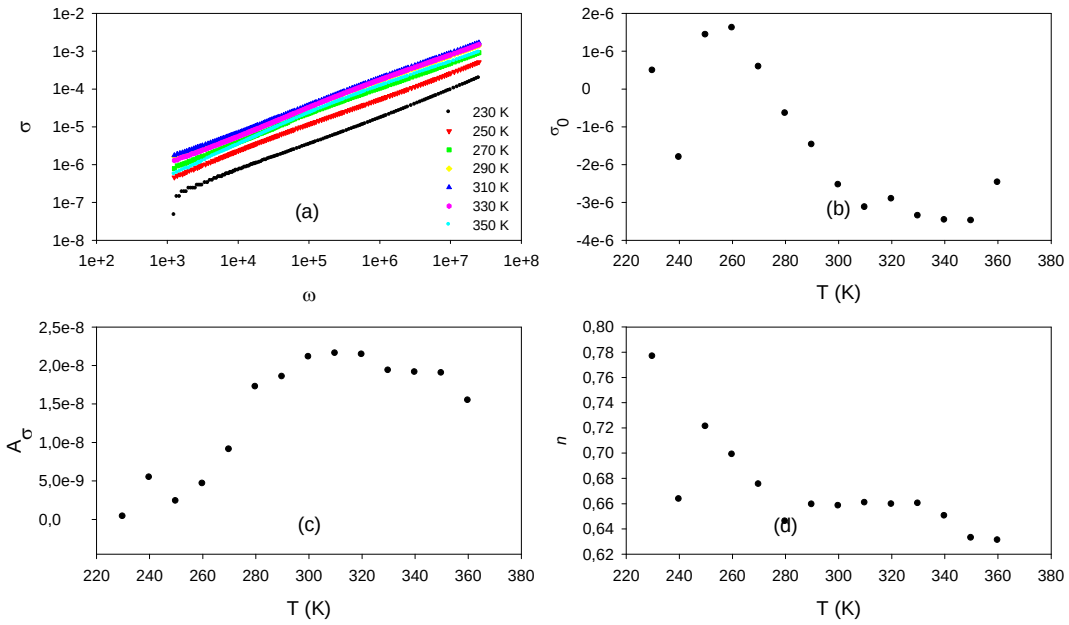
Şekil Ek-5.5 OUS 5 ton 50-63 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OUS 5 ton 63-125 μ



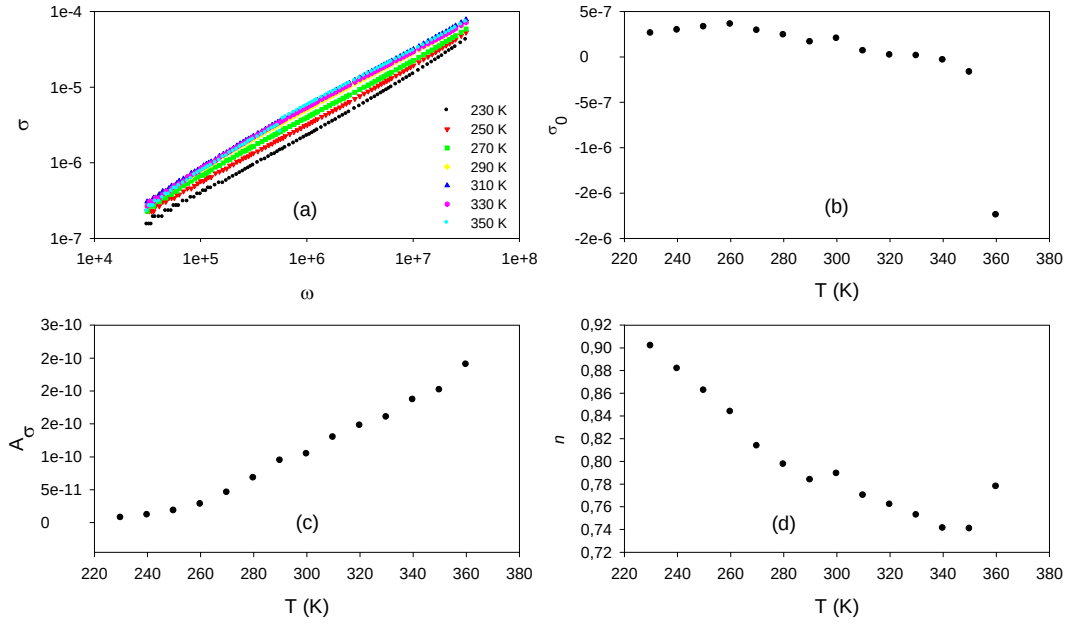
Şekil Ek-5.6 OUS 5 ton 63-125 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OUS 5 ton 125-250 μ



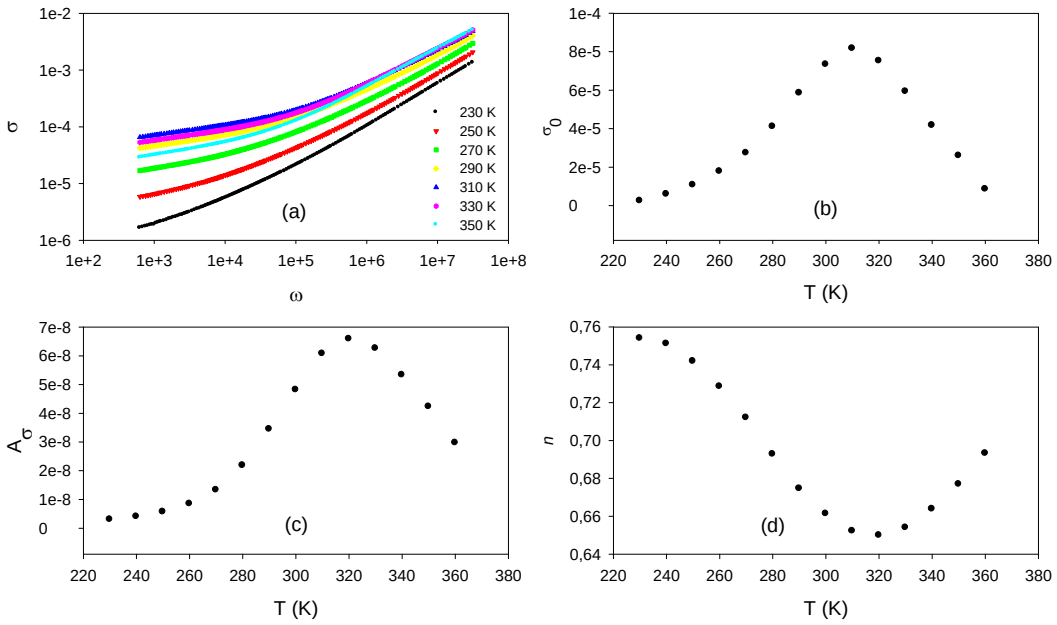
Şekil Ek-5.7 OUS 5 ton 125-250 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OUS 7,5 ton 50 μ



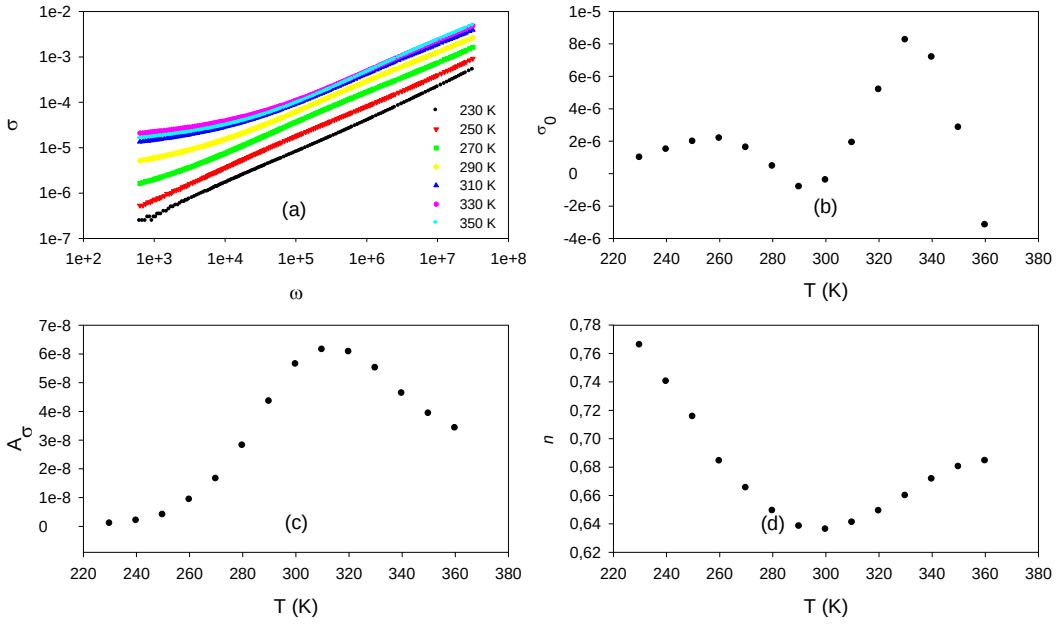
Şekil Ek-5.8 OUS 7,5 ton 50 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OUS 7,5 ton 50-63 μ



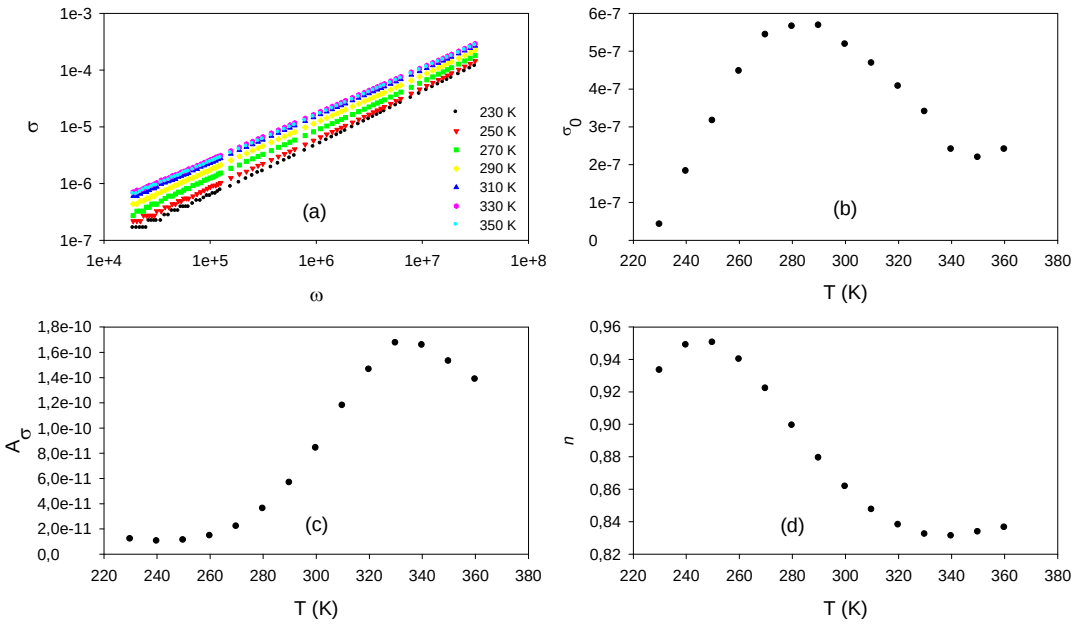
Şekil Ek-5.9 OUS 7,5 ton 50-63 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OUS 7,5 ton 63-125 μ



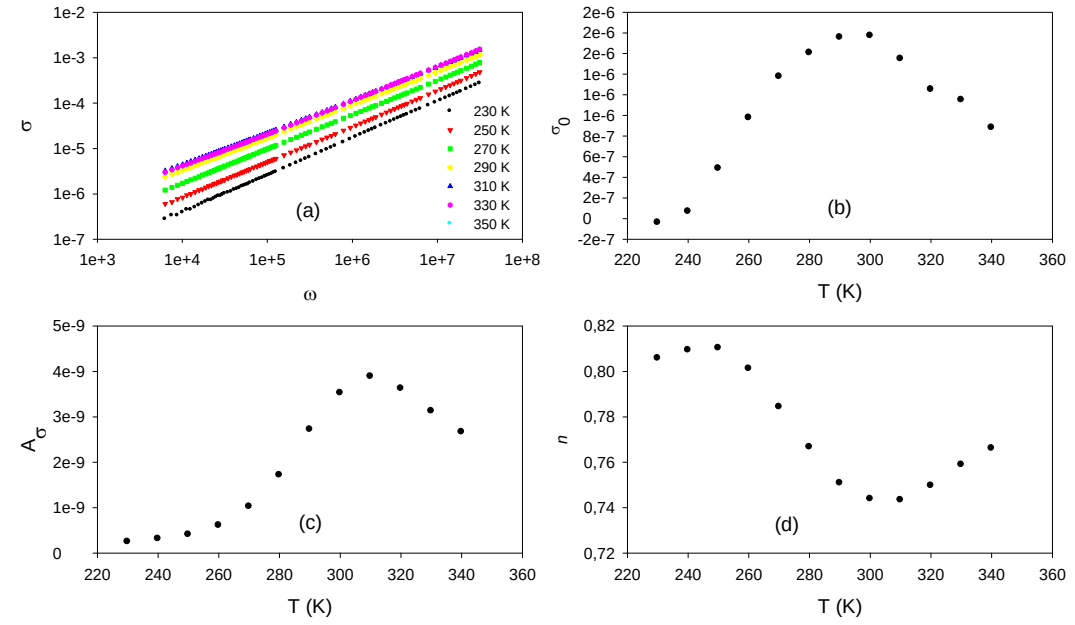
Şekil Ek-5.10 OUS 7,5 ton 63-125 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OÜP 2,5 ton 50-63 μ



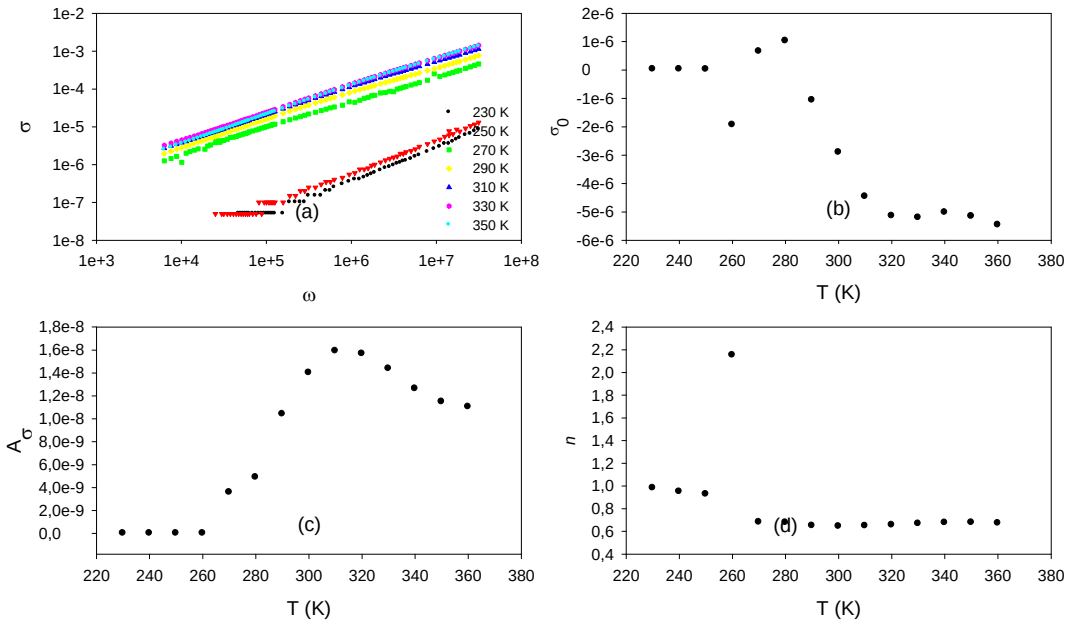
Şekil Ek-5.11 OÜP 2,5 ton 50-63 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OÜP 2,5 ton 125-250 μ



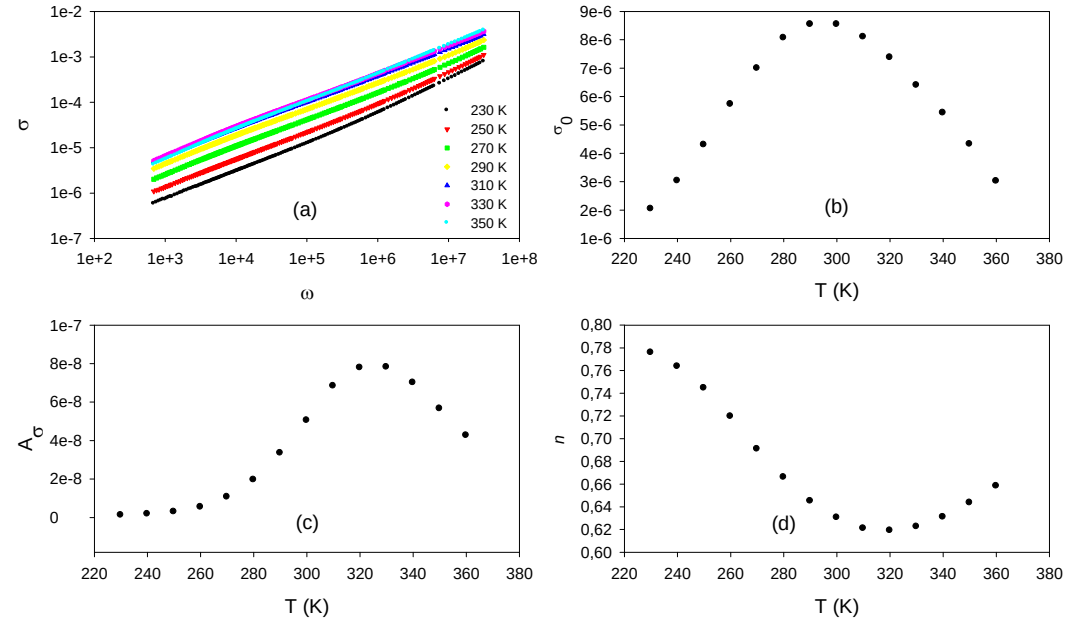
Şekil Ek-5.12 OÜP 2,5 ton 125-250 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OÜP 5 ton 50 μ



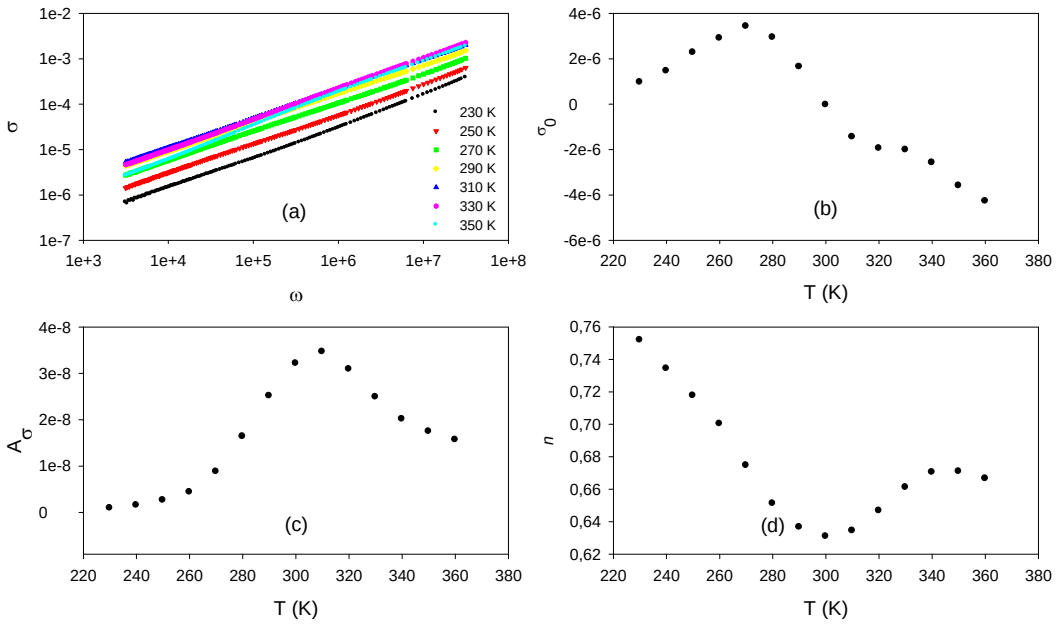
Şekil Ek-5.13 OÜP 5 ton 50 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OÜP 5 ton 50-63 μ



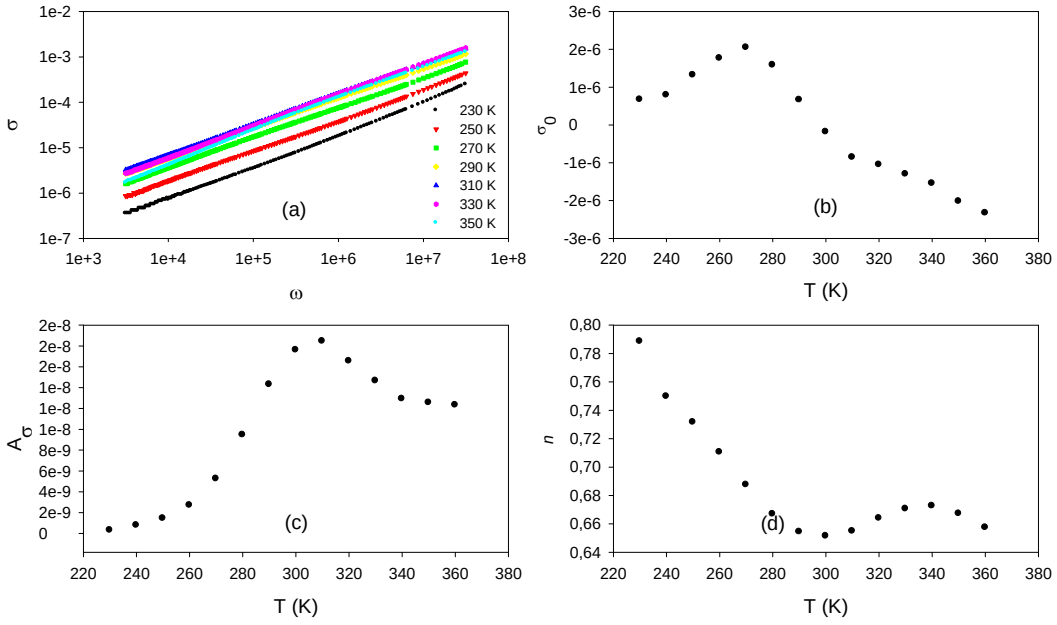
Şekil Ek-5.14 OÜP 5 ton 50-63 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OÜP 5 ton 63-125 μ



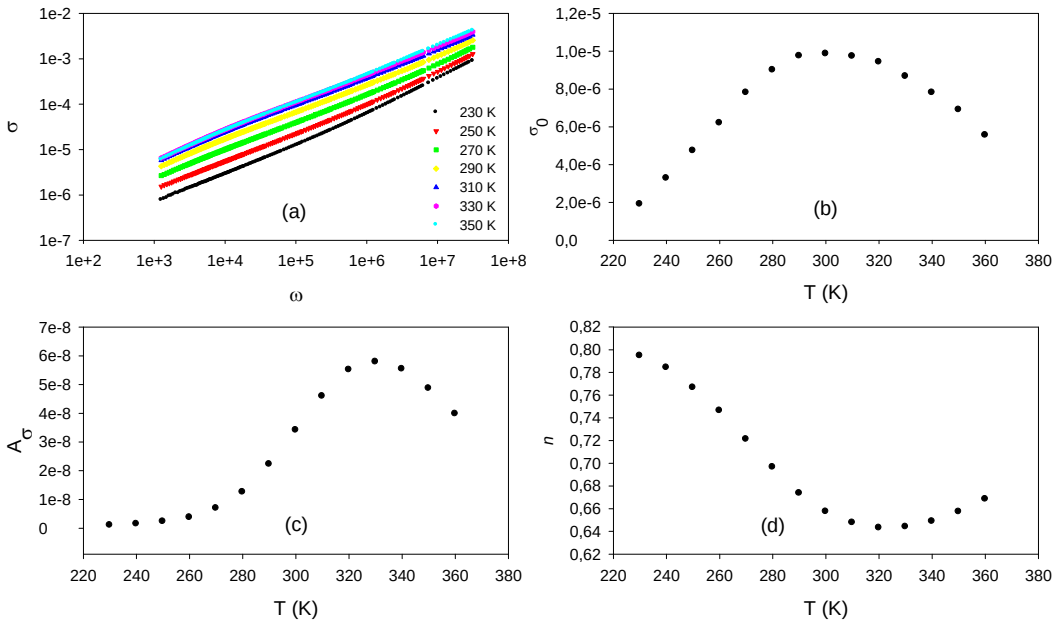
Şekil Ek-5.15 OÜP 5 ton 63-125 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OÜP 5 ton 125-250 μ



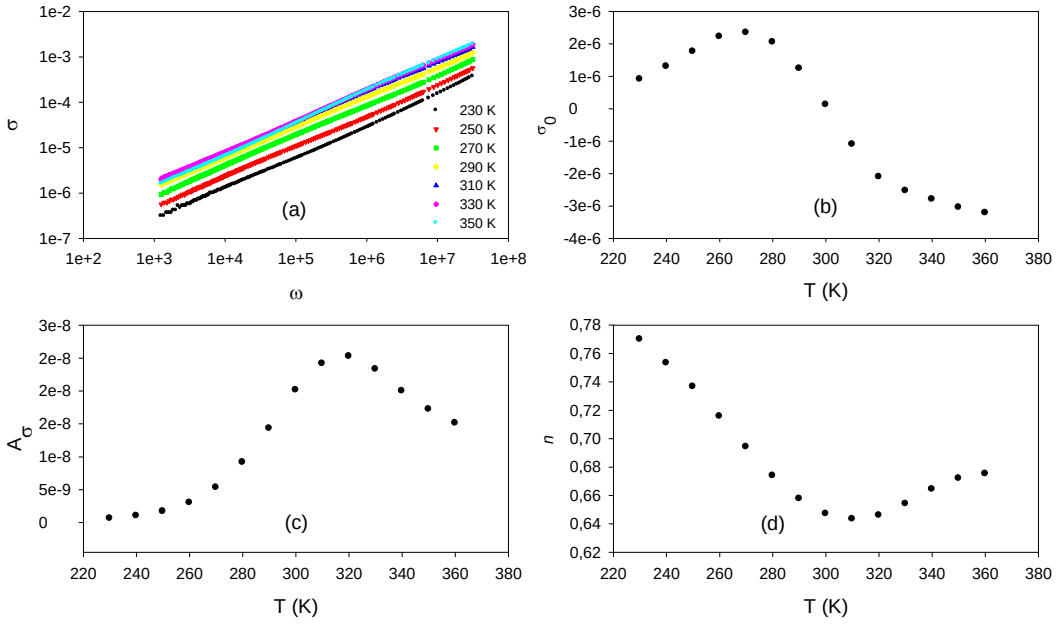
Şekil Ek-5.16 OÜP 5 ton 125-250 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OÜP 7,5 ton 50 μ



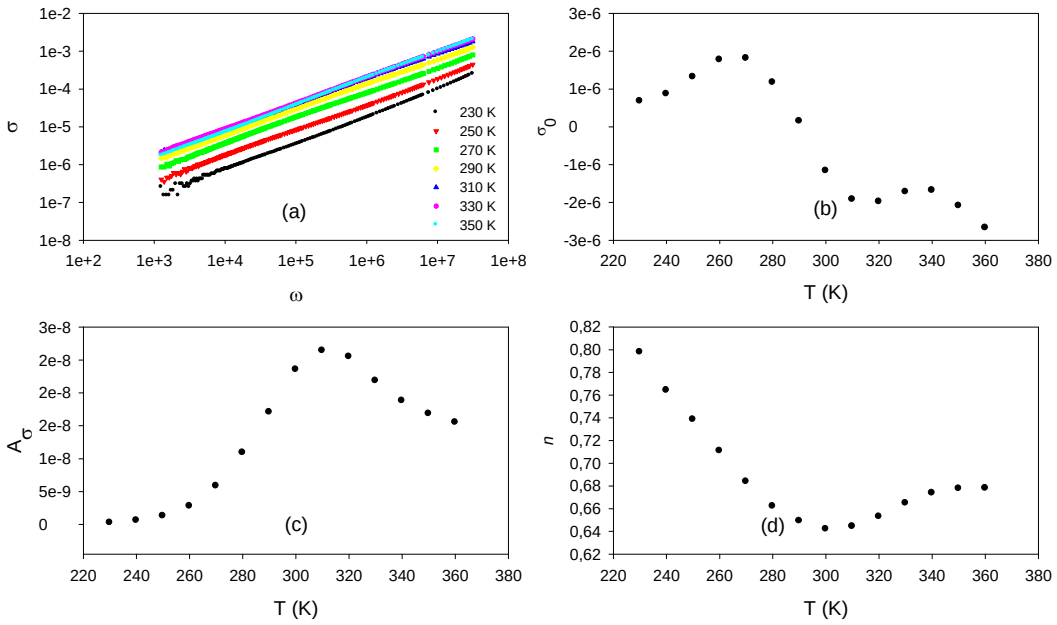
Şekil Ek-5.17 OÜP 7,5 ton 50 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OÜP 7,5 ton 50-63 μ



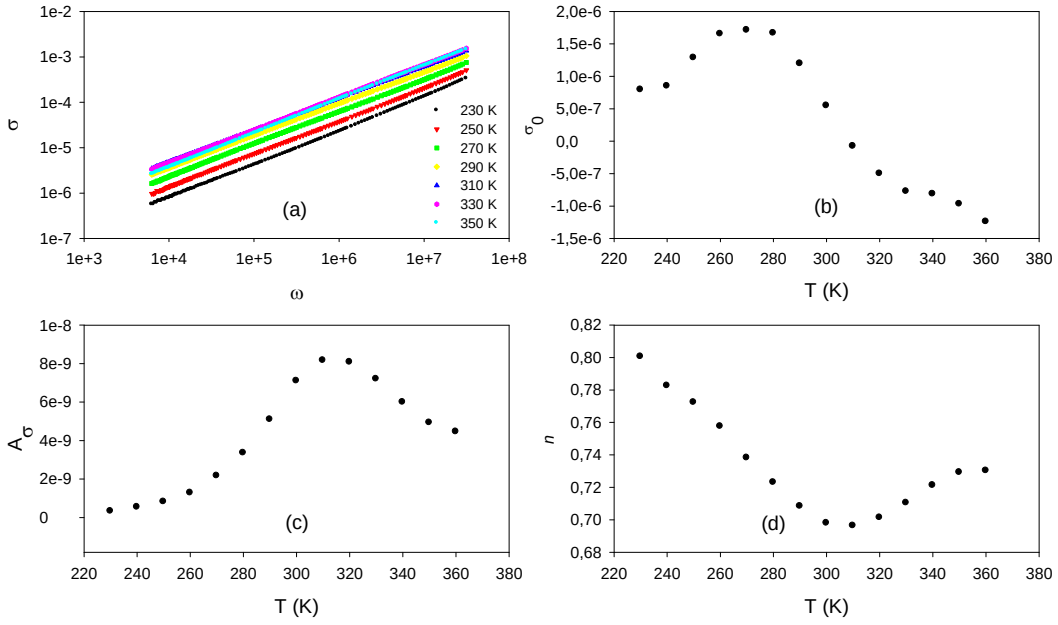
Şekil Ek-5.18 OÜP 7,5 ton 50-63 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OÜP 7,5 ton 63-125 μ



Şekil Ek-5.19 OÜP 7,5 ton 63-125 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

OÜP 7,5 ton 125-250 μ



Şekil Ek-5.20 OÜP 7,5 ton 125-250 μ numunesinin a) $\log\sigma - \log\omega$ grafiği, b) σ_0, c) A_σ ve d) n parametrelerinin sıcaklıkla değişimi

ÖZGEÇMİŞ

KİŞİSEL BİLGİLER

Adı Soyadı	**:**	Abdullah DERYAL
Uyruğu	**:**	T.C.
Doğum Yeri ve Tarihi	**:**	Köln, 16.04.1978
Telefon	**:**	05325540293-05055942078
Faks	**:**	
e-mail	**:**	abdullahderyal@gmail.com, aderyal@meb.gov.tr

EĞİTİM

Derece		**Adı, İlçe, İl**	**Bitirme Yılı**
Doktora	:	**Selçuk Üniversitesi, KONYA**	**2011**
Yüksek Lisans	:	**Selçuk Üniversitesi, KONYA**	**2004**
Üniversite	:	**Selçuk Üniversitesi, KONYA**	**2000**
Lise	:	**Ilgın Lisesi, Ilgın, KONYA**	**1995**

İŞ DENEYİMLERİ

Yıl	**Kurum**	**Görevi**
2008-...	**Milli Eğitim Bakanlığı**	**Eğitici Formatörlük**
2002-2008	**Milli Eğitim Bakanlığı**	**Fizik Öğretmenliği**
2000-2002	**Milli Eğitim Bakanlığı**	**Sınıf Öğretmenliği**

UZMANLIK ALANI

Dielektrik ölçüm teknikleri, Çağdaş fizik öğretim teknikleri, LabView, Maple, SigmaPlot, Prism, SolidWorks, AutoCad, Adobe Master Collection Programları

YABANCI DİLLER

İngilizce

YAYINLAR

1) Montmorillonitin Radyofrekans ve Mikrodalga Bölgesindeki Dielektrik Özellikleri ve Aktivasyon Enerjisi, XII. Ulusal Kil Sempozyumu, 2004. (Yüksek lisans tezinden yapılmıştır)
2) Montmorillonit Türü Kil Minerallerinde Nemin ve Sıcaklığın Dielektrik Durulma Süreçlerine Etkisi, S. Ü. Fen-Ed. Fak. Fen Derg, Sayı 32 (2008) 71-80, KONYA.