

**153759**

T.C.

**SELÇUK ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**MONTMORİLLONİT KİLİNİN  
DİELEKTRİK ÖZELLİKLERİİNİN  
5Hz-13MHz FREKANS ARALIĞINDA  
İNCELENMESİ**

**Abdullah DERYAL  
YÜKSEK LİSANS TEZİ  
FİZİK ANABİLİM DALI  
Konya, 2004**

T.C.  
SELÇUK ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

MONTMORİLLONİT KİLİNİN DİELEKTRİK ÖZELLİKLERİİNİN  
5Hz-13MHz FREKANS ARALIĞINDA İNCELENMESİ

Abdullah DERYAL

YÜKSEK LİSANS TEZİ

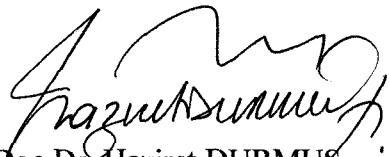
FİZİK ANABİLİM DALI

Konya- 2004

Bu tez 23/07/ 2004 tarihinde oybirliği/oğluklu ile kabul edilmiştir.

  
Prof.Dr. Muazzez Çelik KARAKAYA  
Başkan

  
Yrd.Doç.Dr. Hayrettin KÜÇÜKÇELEBİ  
Üye (Danışman)

  
Yrd.Doç.Dr. Haziret DURMUŞ  
Üye

## ÖZET

### Yüksek Lisans Tezi

# MONTMORİLLONİT KİLİNİN DİELEKTRİK ÖZELLİKLERİİNİN 5Hz-13MHz FREKANS ARALIĞINDA İNCELENMESİ

Abdullah DERYAL

Selçuk Üniversitesi  
Fen-Edebiyat Fakültesi  
Fizik Bölümü

Danışman: Yrd. Doç. Dr. Hayrettin KÜÇÜKÇELEBİ  
2004, 80 sayfa

Jüri: Prof.Dr. Muazzez Çelik KARAKAYA  
Yrd.Doç.Dr. Hayrettin KÜÇÜKÇELEBİ  
Yrd.Doç.Dr. Haziret DURMUŞ

Bu çalışmada, kalsiyum-montmorillonit türü kil numunesinin dielektrik özelliklerinin ölçülmesindeki kutuplanma mekanizmaları incelenmiştir. Numunenin dielektrik ölçümleri, 5Hz-13Mhz frekans aralığında ve  $23^{\circ}\text{C}$ ,  $42^{\circ}\text{C}$ ,  $60^{\circ}\text{C}$ ,  $80^{\circ}\text{C}$  ile  $100^{\circ}\text{C}$  sıcaklıklarında alınmıştır. Numune önce düzgün yüzeyli diskler haline getirilmiştir. Sonra belirtilen sıcaklıkların sağlanması için Elektro-mag Sıcaklık Kontrolcüsü ve HP4192A LF Empedans Analizörü kullanılarak numunenin empedansı ölçülmüştür. Bu değerlere göre kil numunesinin geçirgenlik ve iletkenlik değerleri ve buna bağlı olarak Kompleks Elektrik Formalizmi ile Elektrik Modülü hesaplanmıştır.

Bulunan bu deneysel modüle, teorik işlemler sonucu elde edilen modül fit edilmiş ve bu fit işleminden elde edilen parametrelerle birlikte durulma zamanı ve durulma frekansı bulunmuştur.

Her sıcaklık için elde edilen durulma frekansı Arrhenius Çizimiyle grafikleştirilmiş ve bu grafiğin eğiminin yardımıyla numunenin Aktivasyon Enerjisi saptanmıştır.

**Anahtar kelimeler:** Ca-montmorillonit, dielektrik ölçüler, kutuplanma mekanizmaları, Hawriliak-Negami, arayüzeysel kutuplanma, Kuvvet Yasası, Arrhenius eğrisi, aktivasyon enerjisi

**ABSTRACT****M. S. Thesis****THE INVESTIGATION OF DIELECTRIC PROPERTIES OF  
MONMORILLONITE CLAY IN THE 5HZ-13MHZ FREQUENCY REGION**

Abdullah DERYAL

**Selçuk University  
Graduate School of Natural and Applied Sciences  
Department of Physics**

**Supervisor: Assist. Prof. Dr. Hayrettin KÜÇÜKÇELEBİ**

**2004, 80 Pages**

**Jury: Prof.Dr. Muazzez Çelik KARAKAYA  
Assist.Prof.Dr. Hayrettin KÜÇÜKÇELEBİ  
Assist.Prof.Dr.Haziret DURMUŞ**

In this work, polarization mechanisms in measurement of dielectric properties of calcium-montmorillonite clay have been examined. Dielectric measurements of the sample were carried out in the 5 Hz – 13 MHz frequency region, and at temperatures of  $23^{\circ}\text{C}$ ,  $42^{\circ}\text{C}$ ,  $60^{\circ}\text{C}$ ,  $80^{\circ}\text{C}$  and  $100^{\circ}\text{C}$ . First, sample was prepared as a disk with a smooth surface. Then, at the specified temperatures, the temperature was held constant by Elektro-mag Temperature Controller, impedances of the sample were measured by using a HP 4192A LF Impedance Analyzer. Corresponding to these values, permittivity and conductivity values of clay sample and Complex Electric Formalism and Electric Modulus were calculated.

The modulus obtained from theoretical works was fitted to the experimental modulus mentioned above, and the relaxation times and relaxation frequencies were determined using the parameters obtained from these fit operations.

Relaxation frequencies for each temperatures step were displayed on an Arrhenius plot, and by the help of slope of this graphic, Activation energy of the sample was determined.

**Key Words:** Ca-montmorillonite, dielectric measurements, polarization mechanisms, Power law, interfacial polarization, Hawriliak-Negami, Arrhenius plot, activation energy

## ÖNSÖZ

Montmorillonit türü kil numunesinin dielektrik özellikleri ve aktivasyon enerjisi, 5Hz-13MHz frekans aralığına sahip HP 4192 A LF Empedans Analizörü ve Elektro-mag Sıcaklık Kontrolcüsü kullanılarak, 20<sup>0</sup>C – 100<sup>0</sup>C arası sıcaklık bölgesinde elde edilmeye çalışılmış ve bu kil numunesinin düşük frekans bölgesinde kutuplanma mekanizmaları ile buna bağlı olan aktivasyon enerjisi incelenmiştir.

Bu çalışma Selçuk Üniversitesi, Fen-Edebiyat Fakültesi, Fizik Bölümü öğretim üyesi **Yrd.Dç.Dr.Hayrettin KÜÇÜKÇELEBİ** yönetiminde tamamlanarak, S.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü'ne Yüksek Lisans Tezi olarak sunulmuştur.

Tez konusunun seçimi ve tezin hazırlanması konusunda her zaman bana yol gösteren, hiçbir yardımı benden esirgemeyen, Danışman Hocam, **Yrd.Doç.Dr.Hayrettin KÜÇÜKÇELEBİ**'ye; çalışmalarımın her aşamasında bana destek olan, Değerli Hocam, **Yrd. Doç. Dr. Haziret DURMUŞ**'a, sonsuz saygı ve şükranları sunarım. Ayrıca, karşılaştığım problemleri çözmeme her zaman bana yardımcı olan **Doç.Dr.Ülfet ATAV**'a, **Yrd.Doç.Dr.Mehmet TAŞER**'e, verdiği teorik destekten dolayı **Prof.Dr.Stephen BIALKOWSKI**'ye, Eşim **Esem DERYAL**'a ve Selçuk Üniversitesi, Fen Edebiyat Fakültesi, Fizik Bölümünün tüm diğer elemanlarına da teşekkür ederim.

Abdullah DERYAL  
KONYA-2004

## İÇİNDEKİLER

ÖZET.....	iii
ABSTRACT .....	iv
ÖNSÖZ.....	v
İÇİNDEKİLER .....	vi
<b>1. GİRİŞ.....</b>	<b>1</b>
1.1. Dielektrikler .....	1
1.2. Kil Mineralleri ve Montmorillonit.....	3
1.3. Elektriksel İletkenlik ve Dielektrik Sabiti.....	7
<b>2. MATERİYAL VE METOT .....</b>	<b>14</b>
2.1. Dielektriklerde Kutuplanma ve Çeşitleri .....	15
2.1.1. Debye denklemi:.....	22
2.1.2. Cole-Cole denklemi: .....	23
2.1.3. Cole-Davidson denklemi:.....	26
2.1.4. Havriliak-Negami denklemi:.....	27
2.2. Arayüzeysel Kutuplanma .....	28
2.3. Kutuplanma .....	31
2.4. Frekansın Geçirgenliğine Bağlılığı.....	34
2.5. Elektrik Modülü Formalizmi.....	36
2.5.1. Debye denklemi: .....	37
2.5.2. Cole-Cole denklemi: .....	38
2.5.3. Cole-Davidson denklemi:.....	38
2.5.4. Havriliak-Negami denklemi: .....	39
2.5.5. MWS eşitlikleri:.....	39
2.6. Aktivasyon Enerjisi .....	42
<b>3. ARAŞTIRMA SONUÇLARI .....</b>	<b>44</b>
<b>4. TARTIŞMA .....</b>	<b>65</b>
<b>5. SONUÇ VE ÖNERİLER.....</b>	<b>65</b>
KAYNAKLAR.....	66
EK-1 .....	68
EK-2 .....	77
EK-3 .....	79

# 1. GİRİŞ

## 1.1. Dielektrikler

Dielektrik malzemeler veya elektriksel yalıtkan malzemeler, elektrostatik alanlara uzun süre karşı koyabilen malzemelerdir. Bu malzemeler uygulanan doğrudakım (dc) geriliminin etkisi altında elektrik akımının geçmesine karşı çok büyük direnç gösterir ve bu yüzden temel elektriksel özelliklerini bakımından iletken malzemelerden oldukça farklıdır. Teorik olarak elektriksel yalıtkan malzemeler dc geriliminin etkisi altında hiçbir akım taşımamalıdır, yani iletken olmamalıdır. Başka bir deyişle, elektriksel yalıtkan malzemelerin özdirenci (spesifik direnci) çok büyük olmalıdır. Fakat uygulamada kullanılan elektriksel yalıtkan malzemelerin hepsi doğru bir gerilim uygulandığında genellikle çok zayıf olan belli bir akım (sızıntı akımı) taşırlar. Bu yüzden elektriksel yalıtkan malzemelerin özdirenci çok büyük olsa da sonlu bir değerdedir. Elektriksel yalıtkan bir malzemenin özdirenci ne kadar büyük olursa, malzemenin kalitesi de o kadar iyi olur.

Belli bir malzeme için yalıtım özellikleri dielektrik şiddet cinsinden tanımlanabilir. Dielektrik şiddet, maddenin içinden geçen veya iki ucu arasında akan kontrolsüz bir akıma neden olan alan şeklinde ifade edilir. Eğer bir malzeme bir dış elektrik alanı içine konulduğunda yük veya enerji depolama yeteneğine sahip ise dielektrik malzeme olarak sınıflandırılır. Dielektrik şiddeti gibi malzemenin bu yük depolama özelliği de dielektrik sabiti veya geçirgenlik olarak tanımlanan parametreyi belirleyen makroskopik bir özelliktir.

Özel bir uygulama alanında, yeni bir malzemenin araştırılmasının başarılı olması için, bu malzemenin özelliklerinde söz konusu olan dielektrik şiddet ve geçirgenlik gibi temel mekanizmaların bilinmesi gereklidir. Maddenin makroskopik

davranışını, atomik ve moleküler yapısı cinsinden ele alarak, bu bilgiyi elde etme işi ise dielektrik teoriyle yapılır.

Dielektriklerin en önemli özelliği, dış bir elektrik alanın etkisi altında kutuplanma yetenekleridir. Dielektriklerin kutuplanması fikri ilk olarak 1830'lu yıllarda Faraday tarafından ileri sürülmüştür. Bugünkü kavamlara göre kutuplanma olayı, bir dielektriğin elektriksel olarak yüklü parçacıklarının uzay içindeki düzenlemelerinin değişimini özetler. Yani, dielektrik bu özelliğle bir elektrik momenti kazanır, (Taraev 1975).

Bütün madde sınıflarının dielektrik davranışını ele alan tam bir teori elde etmek çok zor bir iş olup, asla mümkün gözükmemektedir. Bununla birlikte, dielektrikler için basit kabuller ve teorik modeller oluşturulmuştur. Bu modeller kullanılarak, teori, deneysel olarak test edilebilen parametrelerin belli özelliklerini veya değişimlerini tahmin eder. Deneysel sonuçların, tahminlere olan yakınlık derecesi, modelin başarısının bir ölçüsüdür. Malzemenin moleküler ve atomik yapısına dayalı teorik model bir kere başarılı olduktan sonra, yeni malzemeler için hangi araştırmancının yapılabileceği ve aynı zamanda dielektriğin farklı elektriksel koşullar altındaki olası davranışını belirlemekte hangi araştırmancının kullanılabileceği bilgisi elde edilmiş olur.

Özet olarak, dielektrik davranışın anlaşılması için, pratik uygulamaların tartışımasına, yeni gelişmelerin değerlendirilmesine ve bir malzeme içindeki anormal özelliklerin açıklanmasına öncü olacak yeterli bir teorik temel gereklidir.

Teorik modellerin tartışılmamasında, gerekli olan temeli sağlamak için bir taraftan temel elektrostatik bilgisi gerekirken, diğer taraftan makroskopik parametrelerin ölçümü ve önemi bilgisine ihtiyaç vardır. Bu yüzden bu çalışmanın ikinci bölümünde, elektrostatik teorinin temellerini ele alacağız.

## 1.2. Kil Mineralleri ve Montmorillonit

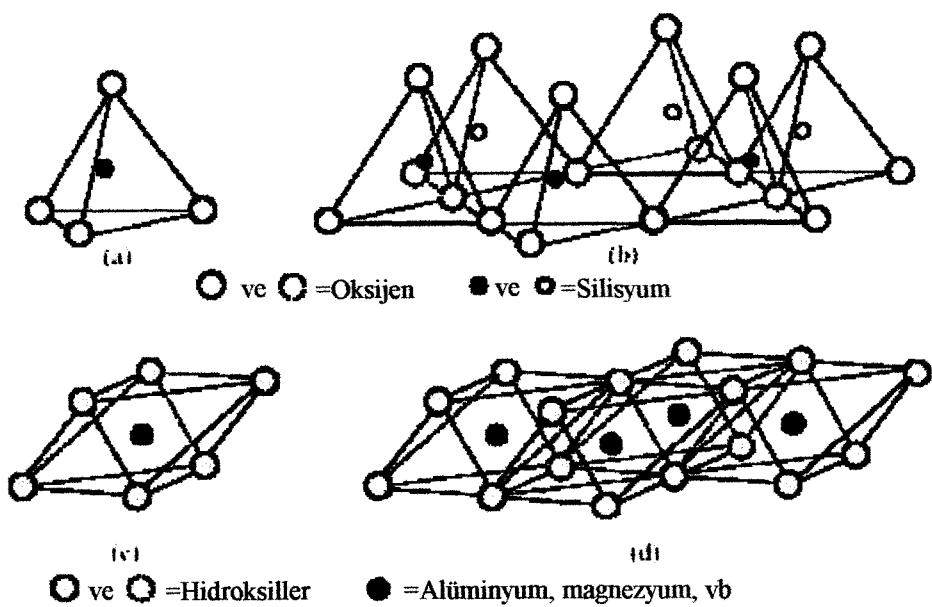
Tanım olarak killer, ince taneli ( $0,2\text{--}2\mu\text{m}$ ) katılar olup birçok özelliği bundan kaynaklanmaktadır. Sulu silikat olan killerden katman yapıları olanlar, bildiğimiz mikanın üyesi bulunduğu daha büyük filosilikatlar grubuna dahildirler. Katman silikatlar, atom veya iyonlardan oluşan paralel düzlem takımlarının katman oluşturacak biçimde birbirlerine sıkıca bağlanmalarından dolayı bu ismi alırlar.

Kil mineralleri filosilikat ailesine ait olup  $\text{T}_2\text{O}_5$  ( $\text{T}=\text{Si}, \text{Al}, \text{Fe}^{+3}, \dots$ ) bileşiminde iki boyutlu sürekli tetrahedral tabakaları içerirler. Tetrahedronlar (Şekil 1.1a) paylaşılmayan köşeleri tabaka dışına yönelik üzere üç köşesini kendi aralarında paylaşarak tetrahedral tabakaları (Şekil 1.1b) oluştururlar. Tetrahedral tabakalar birim yapı içerisinde oktahedronların (Şekil 1.1c) oluşturduğu oktaedral tabakalara (Şekil 1.1d) ve katyonlara bağlıdır (Şekil 1.2).

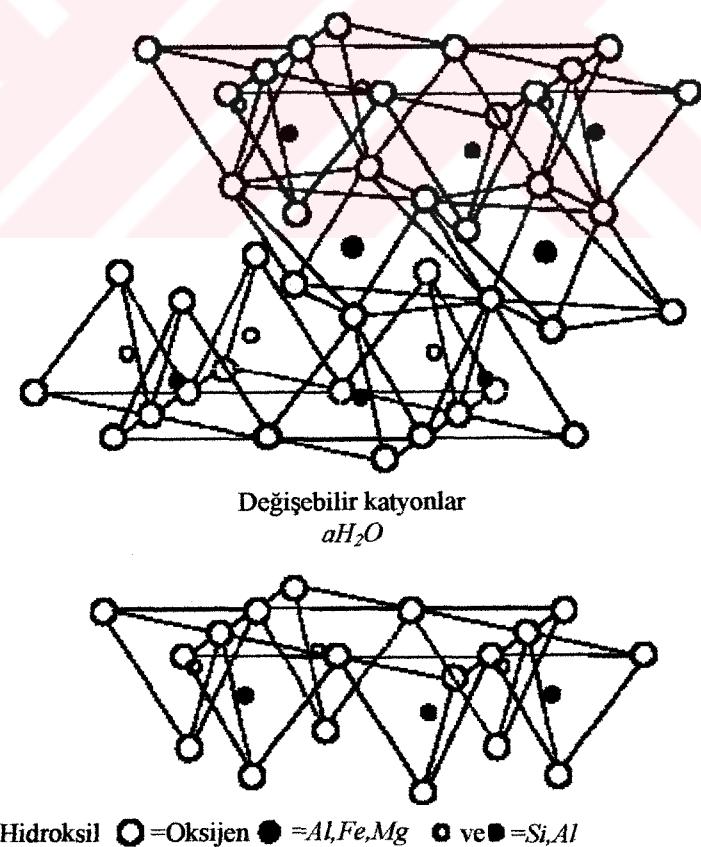
Filosilikat yapılarının temel özelliği, tetrahedronların taban oksijenlerinin heptagonal bir örgü oluşturmasıdır. Tetrahedronun dördüncü köşesindeki tepe oksijeni, tetrahedral tabakaya dik doğrultuda yönelik olup oktahedronların kenarlarının paylaşılmasıyla oluşan oktaedral tabakanın bir elemanını meydana getirir. Filosilikatlar, katman tipine (2:1 veya 1:1), katman yüküne ve katmanlar arasında neyin bulunduğuna göre sınıflandırılabilirler. Böyle bir sınıflandırma Çizelge 1.1'de verilmiştir.

Çizelge 1.1: Kil mineralleri ve ilgili filosilikatların sınıflandırılması

Yapı Tipi	Grup	Yük
1:1 katmanı	Serpentin-Kaolinit	0
2:1 katmanı	Talk-pyrophyllit	0
	Smektit	0,2 – 0,6
	Vermikülit	0,6 – 0,9
	Mika	1,0
	Ufalanın mika	2,0
	Klorit	Değişken
2:1 Ters dönmüş şeritler	Sepiolit-paligorskit	Değişken



Şekil 1.1 (a) Tetrahedron, (b) Tetrahedral Tabaka (c) Oktahedron (d) OktaHederal Tabaka



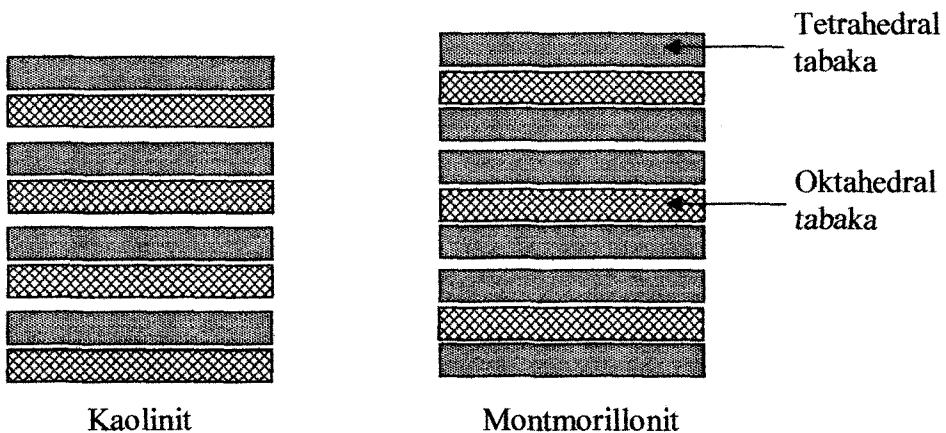
Şekil 1.2: Tetrahedral ve Oktehedral tabakalardan oluşan 2:1 katmanı (Smektit)

Dielektrik özelliklerini incelemekte olduğumuz kil numunesi, 2:1 katman yapısına (Şekil 1.3) sahip smektit grubunun bir üyesi olan montmorillonittir. Genel olarak smektitler,  $O_{10}(OH)_2$  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.

Smektitlerin suda şısmeleri, katmanlar arası katyona su bağlanmasıından (hidratasyon) ileri gelir. Şişme miktarı esas olarak, bağıl nem ile katmanlar arası katyonun türüne bağlı olmaktadır. Katmanlar arası 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. Katmanlar arası katyon Ca ise, katmanlar arası uzaklığın 9Å olduğu üç-su katmanlıya kadar şışme sınırlı olmaktadır. İki-su katmanlı hidratasyon oldukça geniş bağıl nem bölgesinde kararlıdır. Tek-su katmanlı hidratasyona düşük bağıl nemde rastlanır. (Küçükçelebi 1988)

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 aldığı 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. Bu ve buna benzer özellikleri killerin doğal kullanışlarına örnek olarak verilebilir.

Killerin adsorplama özelliklerinden dolayı çok değişik kullanım alanları bulunmaktadır. Kağıt ve kozmetik sanayiinde 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 kullanılması bunlardan bazılıdır.



Şekil1.3: Kaolinitin (1:1 katmanlı) ve Montmorillonitin (2:1 katmanlı) katmalarını gösteren şematik şekli.

Smektit grubunun bir üyesi olan Montmorillonitler Mont Saint-Hilaire'de çok yoğundur. Bu çalışmada dielektrik özellikleri incelenen numune, Edirne-Enez bölgesinden temin edilerek saflaştırılan Ca-Montmorillonit kildir.

Bu kil türünün fiziksel özelliklerinden bazıları şunlardır:

- Rengi hafif bronzlaşmış beyazdır.
- Opağa yakın yarı şeffaftır.
- Yapısı toprak gibidir.
- Kristal sistemi monokliniktir; C2/m.
- Sertliği 1-2'dir.
- Özgül ağırlığı yaklaşık olarak  $2,7 \text{ gr/cm}^3$  tür.
- Orjin: 1847'de, Fransa'da bulunan Limoges'in kuzeybatısındaki Montmorillonit'te keşfinin ardından bu ismi almıştır.

Montmorillonit suyu kolayca absorbe eder ve jel benzeri bir kütle olarak şişer. Bu özellik onu ekonomik olarak kullanışlı kılar. Tekstil, kimyasal gibi çoğu endüstriyel faaliyetlerde kirliliği rafine etmek için bir absorban olarak kullanılır.

### 1.3. Elektriksel İletkenlik ve Dielektrik Sabiti

Maddenin elektriksel davranışını temelde üç fiziksel özellikle kontrol edilir: elektriksel iletkenlik, magnetik geçirgenlik ve dielektrik sabiti.

Dielektrik sabiti alışılmış fiziksel kelime anlamıyla tam bir sabit değildir. Sıcaklık, basınç ve alternatif gerilim frekansı gibi değişkenlere bağlı olan bir özellikleştir.

Paralel plakalı bir kapasitöre göre tanımlanan dielektrik sabitini bulmak genel bir çalışmadr. Bu tanıma göre, bir materyalin dielektrik sabiti tabakalar arasındaki materyal bulunan kapasitörün  $C$  kapasitansıyla ve boşluktaki benzer bir  $C_0$  kapasitansıyla orantılıdır:

$$\varepsilon = \frac{C}{C_0} = \frac{q/V}{q_0/V_0} \quad (1.1)$$

Birbirlerine göre verilen bir potansiyelde tutulan bir tabaka çiftinde var olacak olan yüklerin miktarı tabakalar arasındaki maddenin doğasına bağlıdır. Bir maddenin dielektrik sabiti tabakaları arasında madde bulunan yükün boşluktaki yüke oranına eşittir. Yani, var olacak yük ne kadar büyükse dielektrik sabiti de o kadar büyük olacaktır. (Howell Jr., Licastro 1961)

Elektriksel iletkenlik ölçümlerinin doğasında bulunan belirsizliği ortadan kaldırmak için, sistemin elektriksel iletkenliğiyle birlikte dielektrik sabitinin de ölçülmesi önerilmiştir.

Daha önce bahsedilen faktörler nedeniyle, maddenin dielektrik sabiti, değişkendir. Çünkü dielektrik sabiti, kutuplanmanın bir fonksiyonudur. Kutuplanma ise, frekans, sıcaklık, yerel alanlar, uygulanan alan şiddeti, dielektrikler içerisinde yük taşıyıcılarının bulunması ve bunların serbestliği ve de yerel alan bozulmaları gibi nedenlere bağlıdır. (Kaya ve Fang 1997)

Paralel plakalı bir kapasitörün iki ucu arasına bir dc gerilim kaynağı yerleştirilirse plakalar arasında dielektrik bir madde olduğu durumda, plakalar arasında hiçbir madde olmadığı durumdanın (vakum) daha fazla yük depolanır. Dielektrik maddeli durumdaki kapasitans, dielektrik sabitine bağlıdır:

$$C = C_0 \varepsilon, \quad \varepsilon = \frac{C}{C_0} \quad (1.2)$$

Burada;  $\varepsilon$  : Maddenin dielektrik sabiti

$C$  : Maddeli kapasitans =  $q_d/V$

$C_0$  : Maddesiz (vakum) kapasitans =  $A/t$

Bir maddenin geçirgenliği  $\varepsilon$  ile tanımlanır. Bu geçirgenlik maddenin bir elektrik alanı ile etkileşmesini tanımlar. Bağlı geçirgenlik ise  $\varepsilon_r = \varepsilon/\varepsilon_0$  şeklindedir. Kondansatörün iki ucu arasına alternatif bir elektromotor kuvveti ( $v$ ) uygulandığında, alternatif bir akım ( $i$ ) oluşacaktır ve bu akımın değeri, dielektriğin mükemmel olması koşuluyla ;

$$i = i \omega \varepsilon_r C_0 v \quad (1.3)$$

olacaktır. Burada  $i = \sqrt{-1}$  şeklinde tanımlıdır. Bununla birlikte, genelde, kondansatör plakaları arasındaki resistif bir akıma karşılık gelen eş fazlı bir akım bileşeni oluşur. Bu tür bir akım tamamen dielektrik ortam sebebiyle oluşmuştur ve ortamın bir özelliğidir. Bağlı geçirgenlik teriminin yanı sıra bir de kompleks bağlı geçirgenlik tanımlanmıştır. Kompleks bağlı geçirgenlik  $\varepsilon_r^*$  ile gösterilir. Bu yüzden biraz önce bahsettiğimiz akım, bağlı geçirgenliğin aşağıdaki gibi tanımlandığı bir geçirgenlik bileşeni ile ifade edilir. Kompleks geçirgenlik real ve sanal kısımlardan oluşur.

$$\varepsilon_r^* = \varepsilon'_r - i \varepsilon''_r \quad (1.4)$$

burada  $\varepsilon'_r$ , kompleks geçirgenliğin real kısmı olup bir malzeme içerisinde dış bir elektrik alanından ne kadar enerji depolandığının bir ölçüsü olup, bütün katı ve sıvılar için  $\varepsilon'_r > 1$  dir.  $\varepsilon''_r$  ise kompleks geçirgenliğin sanal kısmıdır ve kayıp faktörü adını alır. Bu nicelik malzemedenki enerji kayıplarını sembolize eder.  $\varepsilon''_r$  daima sıfırdan büyük ve genellikle  $\varepsilon'_r$  'den çok daha küçüktür. Buradan kondansatör içindeki akım;

$$i = i\omega(\varepsilon' - i\varepsilon'')C_0v \quad (1.5)$$

veya

$$i = \omega\varepsilon''C_0v + i\omega\varepsilon'C_0v \quad (1.6)$$

haline gelir ve akım reel bir elemana sahip olur. Bazen “dielektrik iletkenlik” kavramını kullanmak daha uygun olur. Hava ile doldurulmuş paralel plakalı bir kondansatörün siğası, kenar etkileri ihmali edilerek;

$$C_0 = \frac{A}{d}\varepsilon_0 \quad (\text{Farad}) \quad (1.7)$$

olarak verilir. Bu ifadede  $A$  kondansatörün alanı ve  $d$  plakalar arası uzaklıktır. Plakalar arasında bir dielektrik bulunduğuunda, uygulanan alternatif elektromotor kuvveti ( $v$ ) ile akım;

$$i = i\omega(\varepsilon' - i\varepsilon'')\frac{A}{d}\varepsilon_0v \quad (1.8)$$

olacaktır. Plakalar arasındaki alan şiddeti  $E = V/d$  (Volt/metre) ve akım yoğunluğu  $J = i/A$  (amper/metre<sup>2</sup>) olduğundan,

$$J = i\omega\varepsilon_0\varepsilon'E + \omega\varepsilon_0\varepsilon''E \quad (1.9)$$

elde edilir. Böylece iletkenlik  $J/E$  oranından;

$$\frac{J}{E} = i\omega\epsilon_0\epsilon' + \omega\epsilon_0\epsilon'' \quad (1.10)$$

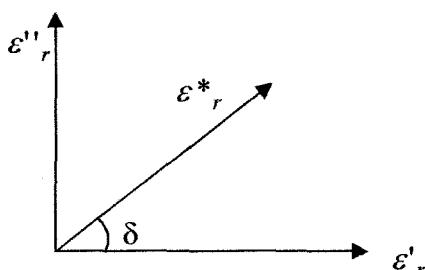
bulunabilir. Dielektrik içinde, sanal terim, sıgadan kaynaklanır. Sığada da bağıl geçirgenliğin reel kısmı ( $\epsilon'$ ) vardır. Bundan dolayı, dielektrik iletkenlik  $J/E$  oranının reel kısmından belirlenebilir:

$$\sigma_d = \omega\epsilon_0\epsilon'' \quad (1.11)$$

Dielektrik iletkenlik, madde içindeki bütün kayıp mekanizmaların toplamını ve bir yalıtkan gibi bir dielektriğin performansının ölçümünü ifade eder.

Kutuplanmanın ani olduğu  $C_0$  kapasitanslı ideal bir kondansatörde,  $E\omega\epsilon'C_0$  yükleme veya kapasitif akımı alternatif potansiyelle  $90^0$ 'lık bir faz açısı yapar. Absorptif kutuplanmanın meydana geldiği bir kondansatörde akım da potansiyelli fazda bir  $E\omega\epsilon''C_0$  bileşenine sahiptir ve Ohm Kanunu ile belirlenir. Absorpsiyonu ölçen bu ohmik yada kayıp akım, alan enerjisinin kayıp kısmından kaynaklanır. Vektör notasyonunda toplam akım, yükleme akımı ve kayıp akımın toplamıdır. Toplam akımın genliği için olan vektör ile yükleme akımının genliği için olan vektör arasındaki  $\delta$  açısı kayıp açıdır ve bu açının tanjantı kayıp tanjanttır.

Bir malzemenin bağıl kayıplılığı, kaybedilen enerjinin depolanan enerjiye oranıdır ve aşağıdaki gibi grafikleştirilebilir:



Şekil 1.4: Kayıp tanjant vektör diyagramı

Bu grafiğe kayıp tanjant vektör diyagramı denir. Üzerinde çalışılan tüm numunelerden elde edilen frekansa karşı çizilen tan $\delta$ 'larda maksimumlar gözlenir. Bu maksimumlar montmorillonit kılinde yer alan bir durulma olayından kaynaklanır (Keymeulen ve Dekeyser 1957). Yapılacak bir deneyde,  $\epsilon'$  reel ve  $\epsilon''$  sanal geçirgenlikleri, çoğunlukla aşağıdaki gibi tanımlanan  $Y^*$  admitansından ölçülür:

$$|Y^*| = G + iB = \omega\epsilon''C_0 + i\omega\epsilon'C_0 \quad (1.12)$$

$$\epsilon' = \frac{B}{\omega C_0}; \quad \epsilon'' = \frac{G}{\omega C_0} \quad (1.13)$$

Burada  $|Y^*|$  admitansın mutlak değeri,  $G$  kondüktans ve  $B$  ise suseptanstır. Bu niceliklerin boyutu Siemens ( $S$ ) olup,

$$1S = 1(\text{ohm})^{-1} = 1\text{mho}$$

ile verilir.  $C_0 = \epsilon_0 A/d$ , sistemin geometrik kapasitansı olup,  $\epsilon_0$  boşluğun geçirgenliği ve  $\omega$  uygulanan elektrik alanın açısal frekansıdır.  $A$  diskin yüzey alanı,  $d$  ise kalınlığıdır.

Elektriksel yük geçisi Ohm Kanunu denen difüzyon denkleminin bir versiyonundan elektriksel iletkenliğe göre tanımlanır:

$$J = \sigma E \quad (1.14)$$

Burada  $E$ , uygulanan elektrik alan (kuvvet) [volt/m]  
 $\sigma$ , elektriksel iletkenlik [siemens/m]  
 $J$ , akım yoğunluğu (akı) [amper/m<sup>2</sup>].

Genelde  $E$  ve  $J$  vektördür, ve  $\sigma$  anizotropik veya bir tensör olabilir. Elektriksel yük depolaması bir kutuplanma sürecine göre tanımlanabilir.

$$D = \epsilon E \quad (1.15)$$

Burada  $\epsilon$  dielektrik geçirgenliği [Farad/m] ve D elektrik akı yoğunluğuudur [Coulomb/m<sup>2</sup>] ve bazen dielektrik yerdeğiştirme diye adlandırılır. Genelde, E ve D vektördür, ve  $\epsilon$  anizotropik veya bir kompleks tensör olabilir. Bazen yukarıda tanımlandığı gibi, boşluğun dielektrik geçirgenliğine ( $\epsilon_0=8,854 \times 10^{-12}$ ) bölünmüş, bir materyalin dielektrik geçirgenliğine eşit olan bağıl dielektrik geçirgenlik kullanılır. Bir materyale bir dış elektrik alan uygulandığında, gerekli miktardaki yük, uygulanan dış alanı dengeleyen bir iç elektrik alan oluşturmak için aralarında yeterli mesafe bulununcaya kadar birbirlerinden ayrılır. Sonra yükler hareket etmeyi durdurur. Bu yük ayrılması kutuplanma diye anılır ve enerji depolar. Yükler, dış elektrik alana tepki olarak hareket ederlerken ve iç-dış elektrik alanı dengesi kurulmadan önce enerji, yük miktarı ve taşınan mesafeyle orantılı olarak harcanır. Yük hareketinden kaynaklanan bu harcama süreci elektriksel iletkenlikle benzerdir. Bu yük geçişini ve depolamasını tanımlamak, gerçek ve sanal kısımlı kompleks bir nicelik olan dielektrik geçirgenliği gerektirir. Dielektrik geçirgenliğin gerçek kısmı maddenin enerji depolama yeteneğini gösterir. Sanal kısmı ise; yükler, enerjiyi depolayan yeni kuvvet dengesine doğru hareket ederken ki enerji kayıplarını ifade eder. Dış alan kaldırıldığında, yüklerin çekiciliği onları orijinal konumlarına geri götürmek için, depolanan enerji serbest bırakılır.

Kompleks dielektrik geçirgenlik hem enerji depolama hem de harcama terimlerini içerdiğinden, elektriksel iletkenlik parametreleri gerekli değildir.

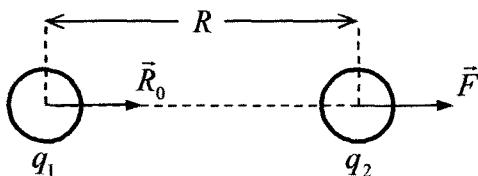
Yükler hareket ederlerken sonlu hızlarla hareket ederler. Hareketin sonlu hızı frekansa bağlı davranışla sonuçlanır. Zıt kutuplu iki yüze bir elektrik alan uygulandığında, iç alan dış alanı dengeleyene kadar, dış alana tepki olarak zıt doğrultularda hareket edeceklerdir. Yükler hareket ederlerken, enerji harcarlar. Ayrıldıklarında enerji depolarlar. Dış alanla denge kurulduğunda hareket sona erer. Bu durumda hala enerji depolanır ama artık enerji harcaması olmaz. Yükler, harekete başlamak ve durmak için hızlanırlar ve yavaşırlar, ve elektromagnetik enerji yayarlar.

İki yüke bir alternatif alan uygulandığında doğrultuları periyodik olarak değişir. Düşük frekansta, yükler dış alanı dengelemek amacıyla gerekli olan mesafeye hareket etmek için yeterli zamana sahiptir. Yüksek frekansta, dış alan tersine dönmeden önce, yükler alanı dengelemek için tüm mesafeyi kat edemezler. Bu, bölünmüş mesafeyle orantılı olan bir depolamayla sonuçlanır, ve benzer olarak, hareket edilen mesafeyle orantılı olan küçük bir kayıpla sonuçlanır. Biraz daha ara frekans bölgesinde, yükler, alternatif dış alanın periyoduyla tam olarak aynı zamanda alanı dengelemek için gerekli olan maksimum mesafeyi kat edecektir. Bu frekans maksimum kaybı ve yüksek ile düşük frekans limitlerinin ortalaması olan bir depolamayı sağlayacaktır. İşte bahsedilen bu frekans, incelenen numunenin durulma frekansıdır.

Dielektrik geçirgenliğin gerçek ve sanal kısımlarının toplamı, bir birim çember başına sistemdeki enerjinin tümünü temsil eder. Düşük frekanslarda, tüm enerji asimptotik bir şekilde depolamaya gider.

## 2. MATERİYAL VE METOT

Üzerine bir elektrik alan etki eden bir dielektriğin durumu, iki vektörel nicelikle tanımlanır:  $\vec{E}$  elektrik alanı ve  $\vec{P}$  kutuplanması.



Şekil 2.1: Coulomb Yasası

Elektrostatığın temel yasası olan Coulomb Yasasına göre, homojen bir dielektrik ortam içinde bulunan, aralarındaki uzaklık  $R$  olan  $q_1$  ve  $q_2$  iki nokta yük (Şekil 2.1) arasındaki kuvvet,

$$\vec{F} = \frac{q_1 q_2}{\epsilon 4\pi R^2} \hat{R}_0 \quad (2.1)$$

ile verilir. Burada  $\hat{R}_0$ , nokta yükleri birleştiren doğru boyunca yönelmiş birim vektördür. (Her iki yük aynı işarete sahip ise birbirini iter, farklı işarete sahipler ise birbirini çeker.)  $\epsilon$  ise mutlak geçirgenlik veya mutlak dielektrik sabitidir ve  $\epsilon = \epsilon_r \epsilon_0$  ifadesi ile verilir. Dielektriği karakterize eden  $\epsilon_r$ , boyutsuz bir parametre olup, bağıl geçirgenlik veya kısaca geçirgenlik olarak adlandırılır. Dielektrik sabiti, dielektrik katsayısı gibi tanımları da vardır. Bu parametre, bir dielektriğin veya elektriksel yalıtkan malzemenin çok önemli bir parametresidir.  $\epsilon_0$  ise elektrik sabiti veya boş uzayın geçirgenliği adı verilen bir nicelik olup, maddeyle etkileşmeyen bir elektrik alanı tasvir eder. Bu nicelik, boş uzaydaki belli bir kapalı yüzeyin içindeki toplam elektrik yükünün bu yüzeyden geçen elektrik alan vektörünün akısına olan oranına eşittir. Buradan gerekli hesaplamalar yapılarak;

$$\varepsilon_0 = \frac{1}{36\pi} \times 10^{-9} \text{ Farad/metre}$$

M.K.S. birim sisteminde ise,  $\varepsilon_0 = 8,854 \cdot 10^{-12}$  Farad/metre olarak bulunur. Yine Coulomb Yasasından,  $q$  büyüklüklü bir nokta yükten  $R$  uzaklığında bulunan bir noktadaki elektrik alan için;

$$\vec{E} = \frac{q}{\varepsilon_r \varepsilon_0 4\pi R^2} \hat{R}_0 \quad (\text{Volt/Metre}) \quad (2.2)$$

ifadesi elde edilebilir. Bu elektrik alanının büyüklüğü, bir dielektriğin yükten bir  $R$  uzaklığında bulunan bütün noktalarda aynıdır; yani, merkezi  $q$  yükünün bulunduğu yer olan kürenin bütün noktalarda aynı olup,  $q$  yükünün, dielektriğin  $\varepsilon_r \varepsilon_0$  mutlak dielektrik sabiti ile kürenin  $4\pi R^2$  yüzey alanına bölümüne eşittir (Tareev 1975).

## 2.1. Dielektriklerde Kutuplanma ve Çeşitleri

Bir malzeme toplam geçirgenliğe katkısı olan çeşitli dielektrik mekanizmalara veya kutuplanma olaylarına sahip olabilir. Bir dielektrik malzeme, bir elektrik alanı ile yer değiştirebilen bir elektrik yükü taşıyıcıları düzenine sahiptir. Uygulanan alanın etkisi altında pozitif ve negatif yükler kutuplu hale gelir.

Frekans artarken depolamaya katkısı olan ( $\varepsilon'_r$ ,) görece yavaş mekanizmalar ortadan kalkarken daha hızlı mekanizmalar katkıya katılır. Her kritik frekansta kayıp faktörü ( $\varepsilon''_r$ ), karşılık gelen pik oluşturur. Rezonans etkisi genellikle elektronik veya atomik kutuplanma ile ilgiliyken durulma etkisi ise genellikle yönelimli kutuplanma ile ilgilidir.

Bir dış alternatif elektrik alanı, kapasitör plakalı bir aygit karşısında uygulandığında uygulanan alternatif elektrik alanı ile aygitin elektrik dipol momentleri etkileşir. Aşağıdaki eşitlik, uygulanan elektrik alanı ile aygitin kutuplanmasını ilişkilendirmiştir. (Carrier ve Soga 1999)

$$\vec{P} = \chi_e \vec{E} \quad (2.3)$$

Burada  $\chi_e$  maddenin elektrik alinganlığıdır ve değeri

$$\chi_e = \frac{\epsilon - 1}{4\pi} \quad (2.4)$$

Şeklinde verilir.

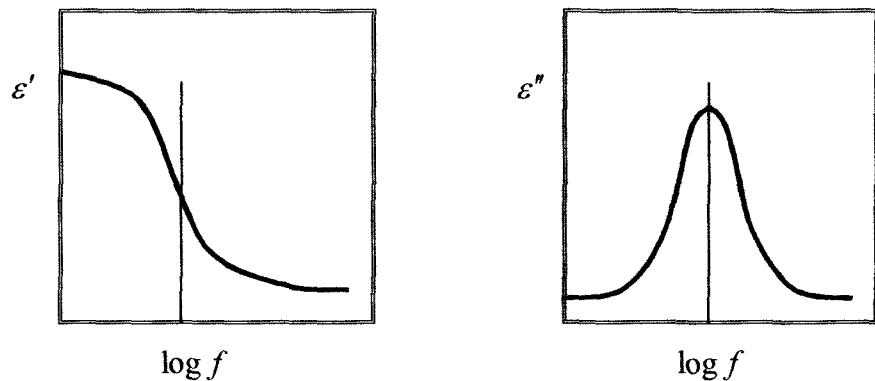
Dielektrik malzemelerde bahsedilen bir özellik de durulma zamanıdır. Dielektriklere verilen durulma terimi, değişen dış alanlara maruz kalan bir sistemin bunun yeni denge durumuna yaklaşığındaki orana işaret eder. Bu, makroskopik bir elektrik alana göre verilir. Dielektrik durulma uygulanan dış alan kaldırıldığında kutuplanma zamanıyla üstel olarak azalır. Durulma zamanı, bu kutuplanma zamanının  $1/e$ 'sına düşmesi için geçen zamandır. Dielektrik durulma artan frekansla azalan dielektrik sabitindeki anormal dağılımin sonucudur. Bu yapısal görüntüsünden, en ilginç dielektrik durulma, moleküllerin iç yapısına ve moleküller düzenlenmeye yada dielektriğin yapısına bağlı olan yönelimli kutuplanmanın işin içine katılmasıdır. Debye'nin (1929) ileri südüğü gibi, bu olayın teorisi ile ilgili olarak, dielektrik durulma alternatif bir elektrik alanın ardından dipol yöneliminde geri kalınmasıdır. Böyle bir alanın etkisi altında, bir sistemin kutuplu molekülleri uygun bir dielektrik kutuplanmayla moleküller yönelimdeki bir denge dağılımına doğru dönerler. Kutuplu moleküller çok büyük olduğunda yada alternatif alanın frekansı çok yüksek olduğunda, moleküllerin dönme hareketi elektrik alanı ile denge kurmak için yeterince hızlı değildir. Kutuplanma o zaman bu alanla, faz dışı bir bileşen elde eder ve yerdeğiştirme akımı, termal enerji kaybıyla sonuçlanan, fazda bir kondüktans bileşen elde eder. Durulma zamanı  $\tau$  simbolü ile gösterilir ve bu, bir madde içinde

bulunan moleküllerin hareketliliğinin bir ölçümüdür. Çarpışmalar, molekülleri sabit  $\tau$  durulma zamanlı yönelimli kutuplanmanın son durumuna yavaşça ve üstel olarak yaklaşacak biçimde iç sürtünmeye neden olur. Alan kapatıldığında süreç ters döner ve aynı zaman sabitiyle rasgele dağılıma yeniden geri dönülür.

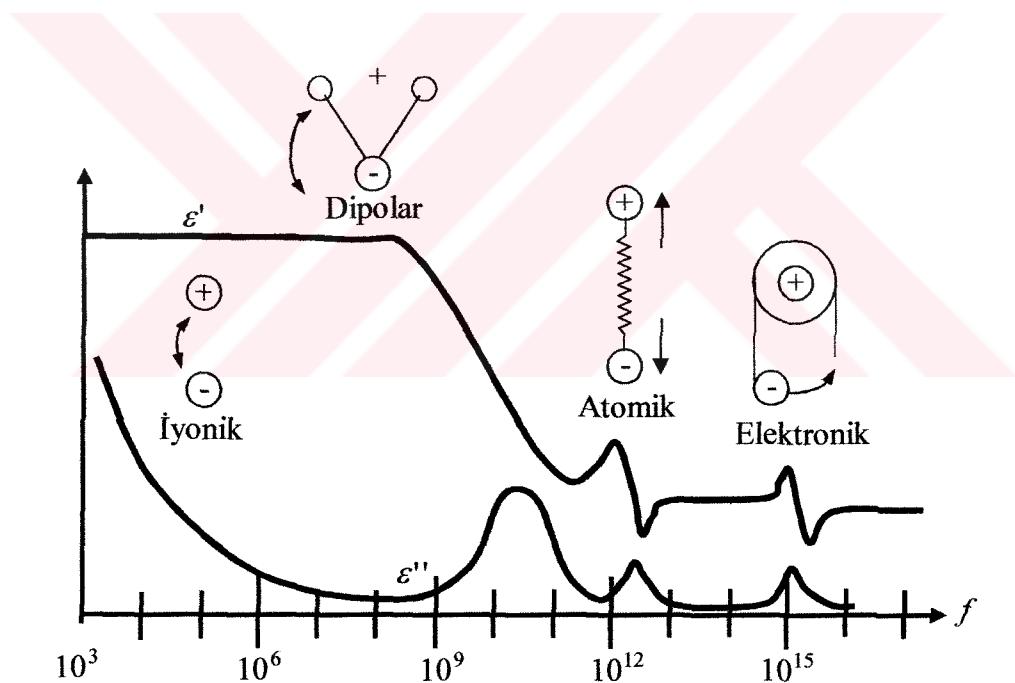
Durulma frekansı, durulma zamanıyla ters orantılıdır; ( $\omega_{dur} \propto 1/\tau$ ). Durulmanın altındaki freksnlarda alternatif elektrik alanı, dipollerin alan değişimlerine adım uydurmasını sağlayacak kadar yeterince yavaştır. Kutuplanmanın tam olarak olması nedeniyle  $\varepsilon''$ , kaybı frekansla doğru orantılıdır. Frekans artarken,  $\varepsilon''$ , artmaya devam eder fakat  $\varepsilon'$ , depolaması, dipol yönelimi ile elektrik alanı arasında bir faz gecikmesi olduğundan azalmaya başlar. Durulma frekansının üzerindeki bölgede ise elektrik alanı dipol dönmesini etkilemeye çok fazla hızlı olduğundan hem  $\varepsilon'$ , hem de  $\varepsilon''$ , azalır ve yönelimli kutuplanma ortadan kalkar, (Şekil 2.2).

Tek bir durulma zamanı sabitine sahip olan maddeler, geçirgenliğin frekansa karşı karakteristik tepkisinin yukarıdaki şekilde olduğu gibi olduğu Debye ilişkisi ile modellenebilir. Durulma frekansının yakınlarında oluşan geçişe sahip durulmanın yukarısında ve altında  $\varepsilon'$ , sabittir.  $\varepsilon''$ , ise durulmanın yukarısında ve altında küçük olup, geçiş bölgesinde (durulma frekansında) pik oluşturur.

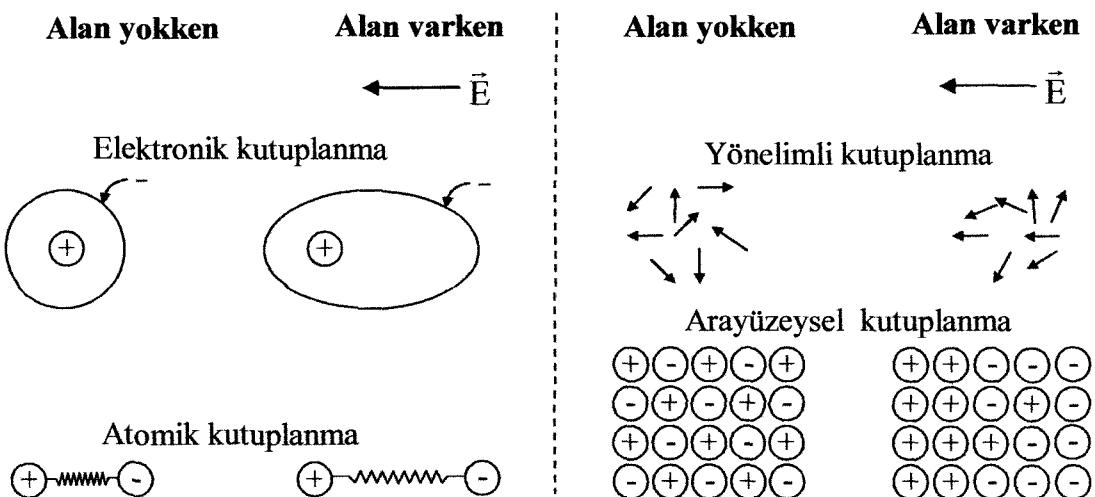
Denklem (1.4) ile verilen genel kutuplanma, dört farklı dielektrik mekanizmasından oluşur. Bunlar: elektronik, atomik, yönelimli veya dipolar ve iyonik kutuplanmadır. Şekil 2.3'te bu kutuplanma mekanizmalarının olduğu frekans aralıklarının, Şekil 2.4'te ise bu mekanizmaların şematik gösterimi sunulmuştur.



Şekil 2.2: Dielektrik durulma spektrumu



Şekil 2.3: Dielektrik mekanizmalarının frekans karşılıkları



Şekil 2.4: Kutuplanma mekanizmaları

a) Elektronik kutuplanma: Çekirdeğin etrafındaki elektronlarla ilgili olarak bir elektrik alanının yer değiştirmesiyle nötr atomlardan meydana gelir. Elektriksel söylemde madde, negatif elektron bulutlarıyla çevrilen pozitif atomik çekirdeklerden oluşur. Bir dış elektrik alanının uygulanmasıyla, indüklenmiş dipol momentler sonucu ve materyallerin elektronik kutuplanması diye adlandırılan nedenden elektronlar çekirdeklere göre yer değiştirir. Elektronik kutuplanma bir atom çekirdeğini çevreleyen elektron bulutlarının yerdeğiştirmesi ile meydana gelir. Böyle yerdeğiştirmeler mor ötesi ve görünür bölge frekansında oluşur.

b) Atomik kutuplanma: Uygulanan bir elektrik alanının altında birbirine yakın olan pozitif ve negatif iyonların yayılması ile meydana gelir. Farklı tipteki moleküller oluştururan atomlar olduğu zaman, elektron bulutları güçlü bağları olan atomlara doğru dış merkezli olarak yer değiştireceği için, bunların elektronları normal olarak küresel olmayacağıdır. 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 yerdeğiştirmesi ile indüklenmiş dipol momentin ikinci bir tipi oluşur. Bu, dielektriğin atomik kutuplanmasını temsil eder. Elektronik ve atomik kutuplanmanın her ikisi de atom veya moleküllerin kutuplanabilirliğine bağlı olarak momentler oluştururlar. Bir diğer kutuplanma nedeni bir kristal örgüdeki atomların hareketidir. Bir elektrik alanda pozitif ve

negatif yüklü atomlar kendi normal konumlarından çok küçük miktarda yerdeğiştirirler. Böylece yerdeğiştirmeler düşük frekanslarda elektronik kutuplanma için olandan daha önemli hale gelirler. Rezonans tipik olarak kırmızı ötesi veya ona yakın frekans bölgesinde meydana gelir.

c) Yönelimli kutuplanma: Bir molekülün atomlarının elektronları dengesiz paylaşımı, sürekli bir dipol momente sebep olur. Dış elektrik alanın yokluğunda bu momentler rasgele bir dizi şeklinde yerleştirilirler. Hatta net kutuplanma mevcut değildir. Dış elektrik alan varken elektrik alanın etrafında bir sıra şeklinde dönen dipoller, yönelimli kutuplanma meydana getirirler. Bir molekülün benzer olmayan partnerleri arasındaki asimetrik yük dağılımı bir dış alanın yokluğunda da var olan sürekli dipol momentlere sebep olur. Böyle momentler, uygulanan bir alanda onları alan doğrultusunda yönelmeye zorlayan bir tork oluştururlar. Sonuç olarak bir yönelim (veya dipol) kutuplanması ortaya çıkar. Kutuplanmanın bu tipi, radyo frekans bölgesinde önemli hale gelir. Debye (1929), içinde simetrik olarak düzenlenmemiş yükler olan maddedeki moleküllerin, molekülün karakteristiği olan bir elektrik momentine sahip olacağını bildirmiştir. Bir elektrik alan uygulandığında bu moleküller, alan doğrultusunda olmaya zorlanan dipol momentleriyle kendilerini sıralamak için yerleştirilirler. Buna dipol kutuplanması denir. Bu, bir katıdaki kusur ve yerlerin düzenlenmesinden de kaynaklanır.

d) İyonik kutuplanma: Arayüzeysel kutuplanma veya diğer adıyla uzay yükü kutuplanması iyonik kutuplanmayı oluşturur. Düşük frekanslarda iyonik iletim en etkili mekanizmadır. İyonik iletim sadece bir sistemin içerisindeki kayıpları ifade eder. Uzay yükü kutuplanması ise bir madde elemanından daha fazlası olduğunda veya birbirine zıt kimyasal diziler içeren bir maddede farklı oluşumlar olduğunda ve bu heterojen sistemlerin arayüzeylerinde yük taşıyıcıları engellendiğinde meydana gelir. Bu yüklerin artışının neden olduğu birikmeden dolayı elektrik alanın bozulması maddenin tüm sığasının artmasına neden olur.

Dielektrik durulma sonuç olarak,  $10^2 - 10^{10}$  Hz frekans aralığında değişen elektrik alandan kaynaklanan elektrik yüklerinin veya dipollerin bir hareketidir. Bu

mekanizma  $10^{12}$  Hz'den büyük frekanslara sahip moleküller titreşimler veya elektronik geçişler ile karşılaşıldığında nispeten yavaş bir süreçtir. Denge eldesinde, yönelim için uygulanan elektrik alandan sonra yeterince zaman verilirse, sadece maksimum kutuplanma veya bir maddede gerçekleşen ve en yüksek görülebilecek dielektrik sabiti elde edilecektir. Eğer zaman verilirse gözlenen dielektrik sabiti durgun dielektrik sabitidir ( $\epsilon_s$ ). Eğer alan uygulanmasından sonra dipol yönelimi için zaman verilmeden hemen kutuplanma ölçülür ise, anlık dielektrik sabiti ( $\epsilon_{inf}$ ) gözlenir. Durulma zamanı bu iki uç arasında herhangi bir yerde meydana gelir.

Göz önüne alınan ilk üç kutuplanma türü, homojen maddelerde beklenir. Heterojen maddelerde ise ilave olarak dördüncü kutuplanma türü de meydana gelebilir. Çoğu maddede yüklerin bir kısmı maddenin içinde hareket etmekte bağlı olarak serbesttir. Bu serbestliğin derecesi maddeye bağlıdır. Bakır ve alüminyumda yüksek iletkenlik sağlayan bazı elektronlar, bu maddeler için serbesttir. Elektrolitlerde hem pozitif hem de negatif iyonlar hareket etmekte serbesttir. İyi bir yalıticıda bile sınırlı mesafeleri alabilen yükler vardır. Yükleri hareket etmekte serbest olan iki bitişik madde farklısa, bir elektrik alanın varlığında arayüzeylerde yük birikmesi olacaktır. Bu olaya arayüzeysel kutuplanma denir. Arayüzeysel kutuplanma genelde diğer kutuplanma tiplerinden daha uzun zaman alır. Bu nedenle, çoğunlukla radyo frekans üstü bölgede yer alır. Arayüzeysel kutuplanmanın etkilerinden dolayı, bir madde karışımının dielektrik sabitinin her bir maddenin tek başına olduğu durumdaki dielektrik sabitinden fazla olduğu açıktır.

Bu dört farklı kutuplanma mekanizmasının bir sonucu olarak, dielektrik sabiti genelde, düşük frekanslarda yüksek frekanslarda olduğundan daha büyük olacaktır. Elektronik ve atomik kutuplanma durumunda, rezonanslar genelde keskindir, yani eğrilerde pikler ve çukurlar olabilmektedir. Keskin çalkantılara dipol ve arayüzeysel kutuplanmalarda daha az rastlanır. İdeal olarak kutuplanma, asimptotik olarak merkezlenmiş, durulma frekansı olarak bilinen bir frekansta etki eder. Kaya benzeri bir homojen madde için, çeşitli taneler ve içine aldığı sıvılar arasında arayüzey

çeşitlemesi var olduğu için, çoğu türde arayüzeysel kutuplanma biçiminin olacağı beklenmelidir.

Atomlar, elektronlarından bir veya daha fazlasını paylaşacak biçimde birleştiğinde bir molekül oluşur. Elektronların bu yeniden düzenlenimi yük dağılımında sürekli bir dipol momenti oluşturacak şekilde bir dengesizliğe neden olabilir. Bu momentler, bir elektrik alanının bulunmaması durumunda, hiçbir kutuplanma olmayacağı şekilde rasgele bir tarzda yönelir. Bir elektrik alanın etkisi altında, yönelimli kutuplanmanın oluşmasına neden olan elektrik alanı doğrultusunda yönelecek biçimde dipoller döner. Dipol dönmesi hem  $\epsilon'$ , hem de  $\epsilon''$ , de genellikle mikrodalga bölgesinde oluşan durulma frekansında bir değişmeye neden olur.

### 2.1.1. Debye denklemi:

Maksimum hareket frekansı sistemin zaman sabitini tanımlar. Bu sistemler aşırı bastırılmış harmonik osilatörlerdir, üstelik difüzyon limitli durulma süreçleri olarak bilinirler. Böyle homojen sistemlerin frekans bağımlılıklarını tanımlayan modelin genel biçimi Debye denklemidir (Debye 1929). Tek durulma zamanlı bir dielektrik için kompleks geçirgenlik, Debye eşitliği ile;

$$\epsilon^*(\omega) = \epsilon_\infty + \frac{\epsilon_s - \epsilon_\infty}{1 + i\omega\tau} \quad (2.5)$$

şeklinde ifade edilir. Bu eşitlik reel ve sanal kısımlarına ayrılsa;

$$\epsilon'(\omega) = \epsilon_\infty + \frac{\epsilon_s - \epsilon_\infty}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (2.6a)$$

$$\epsilon''(\omega) = (\epsilon_s - \epsilon_\infty) + \frac{\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (2.6b)$$

elde edilir. Burada  $\omega \rightarrow 0$  iken  $\varepsilon_s$  ve  $\omega \rightarrow \infty$  iken  $\varepsilon_\infty$  değerleri reel geçirgenliğin limit değerleridir.

### 2.1.2. Cole-Cole denklemi:

Dielektrik ölçümler sıcaklık ve frekansın bir fonksiyonu olarak geçirgenlik ve dielektrik kayıplar üzerine veriler sağlar. Bu veriler geleneksel olarak,  $\log_{10} \omega$ 'nın bir fonksiyonu olarak geçirgenliğin gerçek ve sanal kısımları için grafikler biçiminde gösterilir. Temelde, böyle grafikler  $y(\tau)$  dağılım fonksiyonunun sayısal hesaplamaları için kullanılabilir.

En kullanışlı metodlardan biri, aynı frekansta kartezyen koordinatlarda veya kompleks düzlemede  $\varepsilon'(\omega)$ 'ya karşı  $\varepsilon''(\omega)$  çiziminden oluşur. Bu diyagram kompleks yer diyagramı veya Argand diyagramı olarak bilinir ve Cole-Cole tarafından dielektriklere uygulanmıştır. Bu yüzden Cole-Cole çizimi veya arc çizimi diye de anılır.

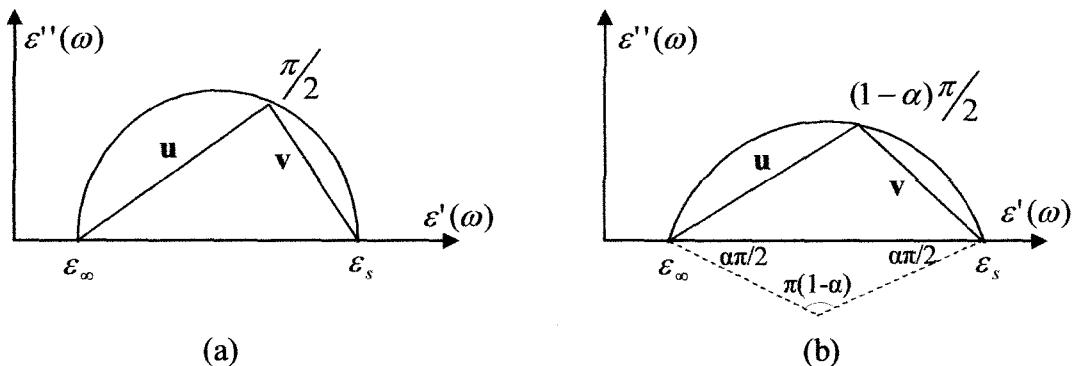
Tek durulma zamanlı bir dielektrik için, Cole-Cole çizimi tam bir yarımdairedir. Debye denklemlerinin basit bir türetimi dielektrik sabitinin gerçek ve sanal kısımları arasında bağıntısının bir çember denklemi olduğunu göstermektedir.

$$\left( \varepsilon'(\omega) - \frac{\varepsilon_s + \varepsilon_\infty}{2} \right)^2 + (\varepsilon''(\omega))^2 = \frac{1}{4} (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)^2 \quad (2.7)$$

Cole-Cole çizimi, bir sistemin tek bir durulma zamanına sahip olup olmadığıının bulunması için özel bir metot sağlar. Bu metot, dağılım fonksiyonunun farklı tiplerini karakterize etmek için de kullanılmıştır. (Daniel 1967)

Tek durulma zamanlı bir dielektrik için arc çizimi aşağıda gösterilmiştir. Yarım daire üzerinde verilen bir nokta, tepe noktası  $\omega\tau = 1$  iken verilen bir frekansa

uygun olur. Çizimde  $\omega$ 'nın görünmeyişi çizim için bir dezavantajdır.  $\varepsilon_s$  ve  $\varepsilon_\infty$  ile karakterize edilen tek durulma zamanlı herhangi bir madde aynı arc çizimini verir.



Şekil 2.5: (a) Bir Debye dielektriği için arc çizimi; (b)  $\alpha$  parametrel Cole-Cole dağılımlı bir dielektrik için arc çizimi

Yarım daire üzerindeki bir nokta yukarıda gösterildiği gibi **u** ve **v** vektörleri ile tanımlanır. Tanıma göre:

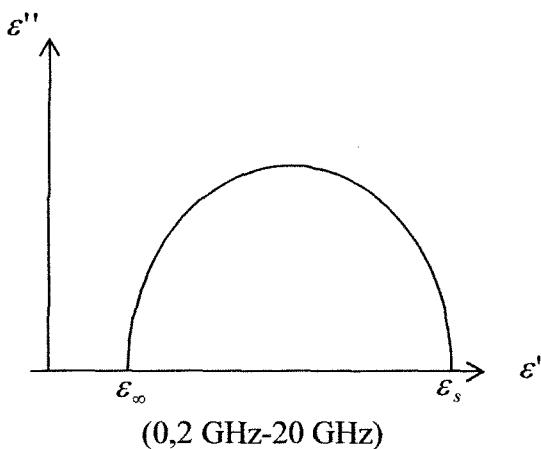
$$\mathbf{u} = \varepsilon'(\omega) - \varepsilon_s + i\varepsilon''(\omega) \quad (2.8a)$$

iken

$$\mathbf{u} - \mathbf{v} = \varepsilon_s - \varepsilon_\infty \quad (2.8b)$$

yazılabilir.

Durulma frekansının yakınlarında oluşan geçişe sahip durulmanın yukarısında ve altında küçük olup durulma frekansında pik oluşturur. Debye ilişkisini gösteren tek bir durulma frekansına sahip bir madde için, merkezi yatay  $\varepsilon'=0$  ekseni üzerinde olan ve kayıp faktörü pikinin ise  $1/\tau$  da olduğu bir yarı daire meydana getirir.



Şekil 2.6: İspropil alkolün ölçümünün Cole-Cole diyagramı

Tek durulma zamanlı bir dielektrik için (Örneğin Şekil 2.6) bu şekillenim  $\varepsilon' = (\varepsilon_s + \varepsilon_\infty)/2$  ‘de  $\varepsilon'$  ekseni üzerinde merkezi olan ve yarıçapı  $\varepsilon' = (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)/2$  olan bir yarım daire şeklindedir.  $\omega\tau = 1$  iken  $\varepsilon' = (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)/2$  değerinde  $\varepsilon''$  en yüksek değerini alır.

Cole-Cole kompleks düzlemde yay şekli ile Debye dielektrik ifadesini genelleştirmiş, hatta bunu, durulma zamanı dağılımlarının belirli bir tipine uygulamıştır. Bu ifadedeki kompleks geçirgenlik;

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + (i\omega\tau)^{1-\alpha}}, \quad 0 \leq \alpha < 1 \quad (2.9)$$

şeklinde yazılabilir. Bu eşitlik durulma zamanı dağılım fonksiyonunun simetrik genişlemesini niteler. Bu eşitlik reel ve sanal kısımlarına ayrılsa;

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_\infty + (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \cos \phi / A = \varepsilon_\infty + (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \cos \phi A^{-1} \quad (2.10a)$$

$$\varepsilon''(\omega) = (\varepsilon_\infty - \varepsilon_s) \sin \phi / A = (\varepsilon_\infty - \varepsilon_s) A^{-1} \sin \phi \quad (2.10b)$$

elde edilir. Buradaki  $A$  ve  $\phi$  sayıları aşağıdaki gibi belirlenmiştir (Tsangaris 1998):

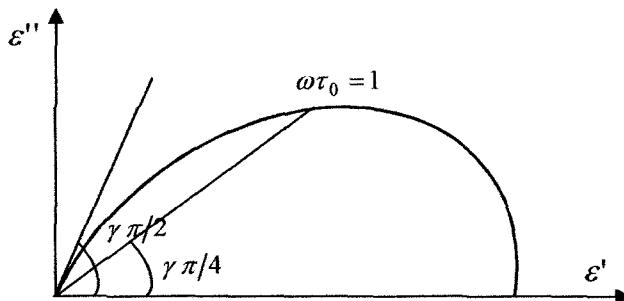
$$A = \left[ 1 + 2(\omega\tau)^{1-\alpha} \sin \frac{\alpha\pi}{2} + (\omega\tau)^{2(1-\alpha)} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (2.10c)$$

$$\phi = \arctan \left[ (\omega\tau)^{1-\alpha} \cos \frac{\alpha\pi}{2} \Big/ 1 + (\omega\tau)^{1-\alpha} \sin \frac{\alpha\pi}{2} \right] \quad (2.10d)$$

Bu durumda yarım dairenin merkezi yatay  $\varepsilon'$  ekseninden aşağı doğru uzanır. Şekil,  $[2\pi\tau(1+2\sin\pi\alpha)]^{-1}$  frekansında  $\varepsilon''$  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  $\varepsilon'$  eksenini keser.  $\alpha = 0$  için (2.5) eşitliğine (Debye Denklemine) indirgenir. (HP 1217-1)

### 2.1.3. Cole-Davidson denklemi:

Bu eşitlik, durulma zamanlı dağılım fonksiyonunun asimetrik genişlemesini niteler (Şekil 2.7). Yay, düşük frekanslarda daireseldir fakat yüksek frekanslarda, düz bir çizgi boyunca yatay eksene ( $\epsilon'$ ) yaklaşır. Bu çizgi ile  $\epsilon'$  ekseni arasındaki açı  $\gamma\pi/2$  dir.



Şekil 2.7: Cole-Davidson modelinin şematik çizimi

Bu ifadedeki kompleks geçirgenlik ise;

$$\epsilon^*(\omega) = \epsilon_\infty + \frac{\epsilon_s - \epsilon_\infty}{(1 + (i\omega\tau))^\gamma}, \quad 0 < \gamma \leq 1 \quad (2.11)$$

Şeklinde verilir. Şekil 2.7' deki gibi çarpık bir yay meydana getiren bu eşitlik, Cole-Davidson tarafından ortaya atılmıştır. Eşitlik, reel ve sanal kısımlarına ayrılsa;

$$\epsilon'(\omega) = \epsilon_\infty + (\epsilon_s - \epsilon_\infty) (\cos\phi)^\gamma \cos(\gamma\phi) \quad (2.12a)$$

$$\epsilon''(\omega) = (\epsilon_s - \epsilon_\infty) (\cos\phi)^\gamma \sin(\gamma\phi) \quad (2.12b)$$

elde edilir. Burada;

$$\tan\phi = \omega\tau \quad (2.12c)$$

ifadesi ile verilir. Maksimum kayıpta ( $\varepsilon''$ ),  $\omega\tau \neq 1$  dir. Fakat,

$$\omega_{\max} \tau = \tan\left(\frac{1}{\gamma+1} \frac{\pi}{2}\right) \quad (2.12d)$$

ile kullanılır. Burada  $\omega_{\max}$ , maksimum kaybın açısal frekansıdır. (Davidson ve Cole 1950)

#### 2.1.4. Havriliak-Negami denklemi:

Bu denklem, Cole-Cole ve Cole-Davidson eşitliklerinin bir kombinasyonunu ortaya koyar;

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{(1 + (i\omega\tau)^{1-\alpha})^\gamma} \quad (2.13)$$

Havriliak-Negami denklemi, dielektrik durulma süreçlerinde Cole-Cole, Cole-Davidson yada her ikisinin de birden etkili olup olmadığını belirler. Bir başka deyişle,  $\alpha \neq 0, \gamma = 1$  için Cole-Cole tipi süreci,  $\alpha = 0, \gamma \neq 1$  için Cole-Davidson tipi süreci,  $\alpha \neq 0, \gamma \neq 1$  ise her iki tip sürecin de etkili olduğunu gösterir. (2.13) eşitliği reel ve sanal kısımlarına ayrılrsa;

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_\infty + (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \cos(\gamma\phi) A^{-\gamma} \quad (2.14a)$$

$$\varepsilon''(\omega) = (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \sin(\gamma\phi) A^{-\gamma} \quad (2.14b)$$

bulunur. Buradaki  $A$  ve  $\phi$  değerleri ise şu şekildedir.;

$$A = \left[ 1 + 2(\omega\tau)^{1-\alpha} \sin \frac{\alpha\pi}{2} + (\omega\tau)^{2(1-\alpha)^{-\frac{1}{2}}} \right] \quad (2.14c)$$

$$\phi = \arctan \left[ \frac{(\omega\tau)^{1-\alpha} \cos \frac{\alpha\pi}{2}}{1 + (\omega\tau)^{1-\alpha} \sin \frac{\alpha\pi}{2}} \right] \quad (2.14d)$$

$\alpha = 0$  ve  $\gamma = 1$  için bu eşitlikler, tam bir Debye sürecine varır, (Havriliak ve Negami 1966).

## 2.2. Arayüzeysel Kutuplanma

Durulma süreçlerini belirleyen yukarıdaki denklemlerin (Debye, Cole-Cole, Cole-Davidson, Havriliak-Negami) hepsi, dipol yöneliminden kaynaklanan süreçleri tasvir etmekte olup, sistemin  $\sigma$  iletkenliği sıfır kabul edilmektedir. Dielektrik materyallerde, özellikle de kil ve polimerlerde, bir alternatif elektrik alana maruz kaldıkları zaman durulma olayları görülebilir. Elektronik ve atomik durulmalar zayıf dipollerin çok hızlı titresimiyle ilgilidir ve sadece yüksek frekanslarda ( $>10^{10}$  Hz) ölçülebilirler. Heterojen sistemler için dielektrik materyalde ilave bir durulma mevcut olabilir. Bu durulma, belli bir işleme tabi tutulan safhalarda var olan ve artık maddede hareketsiz olan serbest yüklerin bulunmasından kaynaklanır. Ortamın bir takım iletkenliğinin belirlenmesinde yeterince yüksek sıcaklıklar için bu yükler uygulanan elektrik alanda hareket edebilirler. Bu yükler farklı iletkenlik ve geçirgenlikli iki ortam arasındaki arayüzye bloklanmıştır. Uygulanan dış gerilimin frekansına bağlı olarak bir arayüzeysel yada Maxwell-Wagner-Sillars (MWS) durulması meydana gelebilir. Bu, çok katmanlı sistemlerin sonucu olabilir. MWS durulmasının ortaya çıktığı frekans, kılın iletken ve yalıtkan kısımlarının iletkenliklerinin ve geçirgenliklerinin değerleriyle bağlantılıdır.

MWS etkisi adı verilen arayüzeysel kutuplanma, iki veya daha çok fazdan oluşan heterojen sistemlerde gözlenir. Bileşenlerin iletkenlikleri ve geçirgenliklerindeki farkın bir sonucu olarak, makroskopik arayüzeylerde uzay-yükü birikmesi meydana gelir. Yüklerin birikmesi, bağlı yük taşıyıcılarının yer değiştirmesi veya yönelim alması ile oluşan diğer kutuplanma türlerinin (atomik, elektronik, yönelimli) tersine elektrik alanını değiştirir.

Bu çalışmada ele almış olduğumuz montmorillonit türü kil numunesinin dielektrik özellikleri hesaplanırken, Bona ve arkadaşları tarafından ileri sürülen, Havriliak-Negami denklemine, iletkenliği açısal frekansa bağlayan kuvvet yasası etkisi eklenerek elde edilen aşağıdaki geçirgenlik ifadesi kullanıldı (Bona ve ark 2001):

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{(1 + (i\omega\tau)^{1-\alpha})^\gamma} - \frac{\sigma(i\omega)^{n-1}}{\varepsilon_0} \quad (2.15)$$

Gördüğü gibi, denklemde eşitliğin sağ tarafındaki ilk iki terim Havriliak-Negami denklemidir. Ancak son terim, iletkenliği frekansa bağlayan kuvvet yasasıdır. Denklemde kullanılan  $\sigma$  ifadesi numunenin dc-iletkenlik değeridir.

Kil minerallerinin rijit katmanları arasındaki bölgede su ve değişebilir katyonlar bulunur. Bu yüzden killer heterojen özellik gösterirler. Rijit katmanlar ile katmanlar arası bölge iki farklı faz bölgesini oluşturur. Ancak bu iki faza karşılık gelen iletkenlik ve geçirgenlik değerlerinin ölçülmesi kolay değildir. Bunun nedeni, kilin katmanlar arası bölgesinin rijit katman kısmından ayrılmamasıdır. Killerin ölçülen iletkenlik ve geçirgenlik değerleri, rijit katmanların ve katmanlar arası bölgenin ortak iletkenlik ve geçirgenlik değerleridir. Yani, arayüzeysel kutuplanmayı tanımlayan denklemde, killer tek bileşenli heterojen maddeler olarak ele alınmalıdır.

Kaolinit (1:1 katmanlı) ve montmorillonit (2:1 katmanlı) kilinin gözlenen dielektrik durulmalarının sayı ve tipi aynıdır, ama gözlenen durulmaların büyülüğu, durulma zamanının sıcaklığa ve su miktarına bağlılığı oldukça farklıdır. Verileri fit etmek için dört durulma süreci gereklidir.

Killerin iletkenlik ve dielektrik özellikleri, kil parçacıklarının iletkenliğinden ve arayüzeysel bölgelerdeki iyonların oluşumuyla sonuçlanan elektrolitik su çözeltisindeki farklılıklardan kaynaklanan iki MWS durulmasıyla ve iyonik iletkenlikle belirlenir, (Iben, Edelstein ve Roemer 1996).

Birbirleriyle temas halinde olmayan (iletken olmayan bölgelerin birbirinden ayrı olduğu) elektriksel olarak iletken bölgelere sahip olan maddelerin karışımı, düşük frekanslarda MWS etkisini gösterir. Yük tabakaları ince ve parçacık boyutlarından çok daha küçük ise bir yük, yakın parçacıklar üzerindeki yükten bağımsız olarak tepki gösterir. Düşük frekanslarda yüklerin,  $\epsilon_r'$  nün artmasına neden olan iletken bölgelerin sınırlarında toplanması için yeterli zamanı vardır. Daha yüksek frekanslarda, yüklerin birikmeye zamanı yoktur ve yük yer değiştirmesi, iletken bölgenin boyutlarına göre küçük olduğundan kutuplanma oluşmaz. Frekans artarken,  $\epsilon_r'$  de azalır ve kayıplar, normal iyonik iletimdeki gibi aynı  $1/f$  eğimini gösterir.

Geçirgenlikte önemli bir değişmeye neden olan bu düşük frekans bölgesinde birçok başka dielektrik mekanizma oluşabilir. Örneğin, yük tabakası, parçacık boyutlarıyla aynı kalınlık mertebesinde veya daha büyüğse, kolloidal süspansiyon oluşur. Bu durumda Maxwell-Wagner-Sillars etki artık önemsiz hale gelir. Çünkü tepki artık, komşu parçacıkların yük dağılımından etkilenmez.

### 2.3. Kutuplanma

Hava dolu bir kondansatör, bir bataryaya bağlandığında, her bir plaka üzerinde bulunan serbest yükler, batarya gerilimine zit ve eşit bir potansiyel fark meydana getirinceye kadar yüklenecektir. Bir dielektrik konulduğunda ise, batarya gerilimine zit potansiyel farka katkıda bulunacak olan serbest yükler nötrleşerek, kondansatörün yük depolama kapasitesini artıracaktır. Böylece, kondansatörde daha fazla yükün olması sonucu yük depolama kapasitesinin artması  $\epsilon_r C_0$  ile verilecektir. Burada  $C_0$ , hava dolu kondansatörün ilk sıgasıdır.

Göz önüne aldığımız bu etki, aslında, kondansatör plakaları arasındaki alanın etkisi altında bulunan, dielektrikteki dipollerin yönelmesinden meydana gelir. Dipoller, bir ucunda pozitif bir yük, diğer ucunda negatif bir yük bulunan uzun zincirlerdir. Bu pozitif yük negatif kondansatör plakasının çok yakınında olacak ve bu plaka üzerindeki yüklerin bir kısmını nötrleştirecektir. Benzer şekilde negatif yükte pozitif kondansatör plakasının çok yakınında olacak ve bu plaka üzerindeki yüklerin bir kısmını nötrleştirecektir.

Uygulanan bir batarya gerilimi ( $V$ ) için, hava dolu kondansatör tarafından taşınan yük,  $Q_0 = C_0 V$ , dielektriğin konulduğu durumda ise taşınan yük,  $Q_0 = \epsilon_r C_0 V$  olacaktır. Burada kayıp mekanizmaları ele almadığımızdan,  $\epsilon_r$  yerine  $\epsilon'$  alınabilir. ( $\epsilon'' = 0$  varsayılarak) böylece;

$$\frac{Q}{\epsilon'} = C_0 V \quad (2.16)$$

veya

$$V \propto \frac{Q}{\epsilon'} \quad (2.17)$$

yazılabilir. Buradan, toplam  $Q$  yükünün, uygulanan gerilimin nötrleştirilmesine sadece  $Q/\epsilon'$  kadar bir katkısı olduğu görülür. Geriye kalan  $Q[1 - (1/\epsilon')]$  yükü ise, dielektriğin kutuplanması ile nötrleşen bağlı yükleri oluşturur.

Kondansatörün plakaları üzerine dağılmış toplam yük  $Q$  ve birim alan başına düşen yüzey yükü  $q_a$  olsun. Kondansatör plakasının sonsuz küçük bir  $dA$  için, Gauss Kanunu;

$$q_a \cdot dA = \vec{D} \cdot d\vec{S} \quad (2.18)$$

şeklinde yazılabilir. Burada  $d\vec{S}$ ,  $dA$ 'yı kapsayan bir yüzeyin alanıdır. Dielektriğin olmadığı durumda yük;

$$\frac{q_a}{\epsilon'} dA = \vec{D}_a \cdot d\vec{S} = \epsilon_0 \vec{E} \cdot d\vec{S} \quad (2.19)$$

olur. Şimdi,  $q_a[1 - (1/\epsilon')]$  bağlı yük yoğunluğunu hesaba katmak için, bir  $\vec{P}$  kutuplanma vektörünü,

$$q_a \left(1 - \frac{1}{\epsilon'}\right) dA = \vec{P} \cdot d\vec{S} \quad (2.20)$$

şeklinde tanımlayalım.

$$q_a = \frac{q_a}{\epsilon'} + q_a \left(1 - \frac{1}{\epsilon'}\right) \quad (2.21)$$

şeklinde yazılabildiğinden ve denklem (2.19) ve (2.20) kullanılarak;

$$q_a dA = \epsilon_0 \vec{E} \cdot d\vec{S} + \vec{P} \cdot d\vec{S} = \vec{D} \cdot d\vec{S} \quad (2.22)$$

elde edilir veya daha genel olarak;

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \quad (2.23)$$

bulunur. Dielektrikli durum için;

$$\vec{D} = \epsilon' \epsilon_0 \vec{E} \quad (2.24)$$

olduğundan;

$$\vec{P} = \epsilon_0 (\epsilon' - 1) \vec{E} = \chi \epsilon_0 \vec{E} \quad (2.25)$$

yazılır. Burada  $\chi = (\epsilon' - 1)$  niceliğine, ortamın dielektrik alınganlığı adı verilir ve dielektrik alınganlık;

$$\frac{\text{Bağlı yük yoğunluğu}}{\text{Serbest yük yoğunluğu}}$$

olarak tanımlanır. Bir dielektriğin kutuplanması, magnetik bir maddenin magnetizasyonuna benzemektedir. Ferromagnetik bir madde için, eşitlik (2.24)'e benzeyen bağıntı,

$$\vec{M} = \chi_m \vec{H}$$

şeklindedir. Burada,  $\chi_m$ , magnetik alınganlık ve  $\vec{M}$  maddenin kendiliğinden magnetizasyonudur. Benzer şekilde, bazı dielektrik maddelerde kendiliğinden kutuplanma gösterirler. Bu tür maddelere, ferromagnetik maddelere benzer şekilde “ferroelektrik” maddeler adı verilir. Küçük ve pozitif bir magnetik alınganlığa sahip maddeler, paramagnetik maddeler olarak isimlendirilir. Bu tür maddelerde, magnetizasyon, uygulanan bir alan etkisiyle oluşur ve alan ortadan kalktığında magnetizasyon yok olur. Bir dielektrik alanı içerisinde bir kutuplanma gösteren benzer dielektrik maddelere ise, paraelektrik maddeler denir. Bu tür maddelerin küçük bir pozitif elektriksel alınganlığı vardır. Bütün dielektrik maddeler, vakum hariç, paraelektriktir. Negatif bir magnetik alınganlığa sahip diamagnetik maddelerin eşdeğeri olan hiçbir dielektrik madde yoktur.

Bir maddenin kutuplanmasıının ölçülmesi, eşitlik (2.25)'e bağlı olup,  $\chi$ 'nın veya  $\epsilon'$ 'nın ölçülmesinden oluşur.

## 2.4. Frekansın Geçirgenliği Bağlığı

Sığası  $C_0$  olan vakumlu bir kondansatörün kayıpsız olduğunu ve batarya ile bilinen bir  $V_0$  gerilimine kadar yüklediğini varsayalım.  $t = 0$  anında kondansatöre büyük bir  $R$  direnci bağladığımızı düşünelim ve  $t_1$  anında bu  $R$  direnci üzerindeki gerilim  $V_1$  olsun. Bu  $V_1$  gerilimi,  $R$  üzerine paralel bağlanan yüksek empedanslı bir voltmetre ile ölçülebilir.  $R$ 'nin değeri voltmetrenin direnci ile kendi direncinin paralel kombinasyonundan bulunur.  $t_1 - t = \tau_0$  yazılırsa,  $C_0$  bilindiğinden;

$$\log \frac{V_0}{V_1} = \frac{\tau_0}{C_0 R} \quad (2.26)$$

olur. Şimdi, bir  $\tau$  anında, gerilim uygun bir  $V$  gerilimine düşürülerek, dielektrik konulursa;

$$\log \frac{V_0}{V} = \frac{\tau}{CR_p} \quad (2.27)$$

bulunur. Burada  $C$  kondansatörün yeni sığası,  $R_p$  ise devrenin toplam eşdeğer direncidir. Aynı zamanda,  $R_p$  dielektrikteki kayıp etkilerini de içerecektir. Böylece  $R_p$ 'nin değeri,  $\epsilon''$ 'ne bağlı olarak,  $1/\omega\epsilon''C_0$  olarak verilir.

Kenar etkilerinin ihmal edildiği durumu göz önüne alırsak, direncin değeri, frekansın bir fonksiyonu gibi sabit kalmalıdır. Yani,  $\epsilon'$ , frekans değişimi ile ters orantılı olmalıdır. Buradan,

$$\varepsilon'' = \frac{1}{\omega R_p C_0} \propto \frac{1}{f} \quad (2.28)$$

yazılabilir. Burada  $R_p$ 'nin değeri sabittir. Eş fazlı akım elemanına bağlı olarak  $\varepsilon'$ 'nın bu belirleme metodunda, dielektrikteki kayıp mekanizmalar için hiçbir varsayıma gerek yoktur. Burada sadece belli bir frekans değerinin göz önüne alınması,  $\varepsilon''$ 'nın belli bir değişimini gösterecektir.

Pratikte,  $\varepsilon'$  ve  $\varepsilon''$ 'nın her ikisi de, dielektrik kutuplanmanın çeşidine bağlı olarak frekansla değişebilir. Geçirgenlik frekansla değiştiğinde, bu değişme mekanizması, "durulma" veya "rezonans" olarak karakterize edilebilir. Bir durulma spektrumu genelde, frekansın küçük değerlerle arttığı ve  $\varepsilon'$ 'nın küçük değerlerle azaldığı bir sabit değer bölgesinden tanımlanır. Burada  $\varepsilon'$  geniş bir pik yapar. Bir rezonans spektrumunda ise,  $\varepsilon'$  sabit değerden hızlı bir düşüş gösterir ve  $\varepsilon'$  keskin bir pik yapar.

Durulma süreçleri veya rezonansları olarak belirlenen bu spektrumları açıklamak için, kutuplanmanın moleküler ve atomik işlemleri ile tanımlanacak olan modeller ileri sürmek gereklidir. Bir elektrik dipolden küçük bir uzaklıkta bir çift zit yük olduğunu varsayalım. Burada, dipolün dönmesinin alanın etkisinden bağımsız olduğu düşünülebilir. Alternatif bir alan uygulandığında ise, dipol alanın etkisi ile dönmeye devam edecektir. Yani, dipolün doğal dönme frekansına eşit frekanslı bir alan uygulandığında, bir rezonans meydana gelecektir. Eğer dipolün dönmesini engelleyen ağır sürtünmeli bir ortam içinde olduğu göz önüne alınırsa, bir durulma tipi oluşacak ve alandan daha geç bir fazda dönmesi azalacaktır.

Dönme, sadece dipol için hayal edilebilen bir titreşim modunda olabilir. Uygulanan bir alanın etkisi altında değişen yükler arasındaki uzaklıkta salınan bir doğrusal harmonik salınıcı gibi davranışabilir. Tekrar durulma ve rezonans davranışının sonumun olmasına bağlıdır.

## 2.5. Elektrik Modülü Formalizmi

Kompleks geçirgenlik  $\varepsilon^*(\omega)$ , kompleks elektrik modülü  $M^*(\omega)$ , kompleks empedans  $Z^*$  gibi farklı formalizmler dielektrik spektrumu yorumlamak için keşfedilmiştir.  $M^*(\omega)$  formalizminin en önemli avantajı elektrot etkisinin ortadan kaldırılabilmesidir.

$\varepsilon''(\omega)$ 'nın  $\sigma$  (iletkenlik) ile orantılı olduğu basit dc-iletkenliğinin etkilerinin  $M''(\omega)$ 'daki Debye tipi pike çevrildiği  $M^* = \frac{1}{\varepsilon^*}$  dielektrik modülünü üretmek pratik hale gelmektedir.  $\varepsilon''(\omega)$ 'dan  $M''(\omega)$ 'ya geçerken ortaya çıkan beklenmedik olası değişimler basitçe  $M^* \cdot \varepsilon^* = 1$  bağıntısına giren hem gerçek hem de sanal kısımdan oluşan bir durumdur. (Ranko ve Hermann 1998)

Saf maddelerin çok düşük frekansta dielektrik geçirgenlikleri bulunur. Bu geçirgenlikler, orta ve yüksek frekanslarda ölçülen Cole-Cole şeklinin ekstrapolasyonundan elde edilen dipol geçirgenliklerinden daha yüksektir. Killar, polimerler ve komposit polimerik malzemelerde, bu sistemleri heterojen hale getiren katkıların, dolguların ve hatta safsızlıkların bulunması nedeniyle arayüzeysel kutuplanma daima vardır. Genel olarak iletken katkılı sistemlerde, arayüzeysel kutuplanma, iletkenlikten dolayı belirsizleşir. Yüksek olabilen dielektrik geçirgenlik ve iletkenlik yüzünden arayüzeysel durulma görülmeyebilir. Mc Crum ve arkadaşları tarafından ortaya atılan “elektrik modülü” formalizmi ile bu zorluğun üstesinden gelinebilmektedir. Elektrik modülü kullanımının diğer bir avantajı da düşük frekanslardaki iletkenlik ve geçirgenliğin büyük değerlerindeki değişiklikleri en aza indirmesidir.

Kompleks modüler elektrik modülü veya ters kompleks geçirgenlik, ( $M^*$ ), aşağıdaki eşitlikle belirlenir:

$$M^* = \frac{1}{\varepsilon^*} = \frac{1}{\varepsilon' - i\varepsilon''} = \frac{\varepsilon'}{\varepsilon'^2 + \varepsilon''^2} + i \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'^2 + \varepsilon''^2} = M' + iM'' \quad (2.29)$$

Burada  $M'$  reel ve  $M''$  sanal elektrik modülleridir. Bu ifadede  $\omega \rightarrow 0$  iken  $M'$  'nın değeri  $M_s$ ,  $\omega \rightarrow \infty$  iken  $M_\infty$  olarak alınırsa bu ifade

$$M_s = \frac{1}{\varepsilon_s} \quad , \quad M_\infty = \frac{1}{\varepsilon_\infty} \quad (2.30)$$

şeklinde yazılabilir. Elektrik modülü formalizmine göre durulma süreçlerini (Debye, Cole-Cole, Cole-Davidson, Havriliak-Negami ve MWS (arayüzeysel)) tek tek yazabilirliz:

### 2.5.1. Debye denklemi:

Geçirgenlik moduna göre tanımlanmış denklem (2.5)'in tersi alınarak ( $M^* = \frac{1}{\varepsilon^*}$ ), Debye eşitliğinin elektrik modülü formalizmi şu şekilde yazılabilir:

$$M^* = M_\infty M_s \frac{1 + i\omega\tau}{M_\infty + M_s(i\omega\tau)} \quad (2.31a)$$

Bu kompleks ifade reel ve sanal kısımlarına şu şekilde ayrılabilir:

$$M' = M_\infty M_s \frac{M_\infty + M_s \omega^2 \tau^2}{M_\infty^2 + M_s^2 \omega^2 \tau^2} \quad (2.31b)$$

$$M'' = M_\infty M_s \frac{(M_\infty - M_s) \omega \tau}{M_\infty^2 + M_s^2 \omega^2 \tau^2} \quad (2.31c)$$

### 2.5.2. Cole-Cole denklemi:

Yukarıdakine benzer olarak, geçirgenlik modunda yazılmış olan denklem (2.9)'daki Cole-Cole denkleminin tersi alınarak kompleks modül türetilebilir:

$$M^* = M_\infty M_s \frac{1 + (i\omega\tau)^{1-\alpha}}{M_\infty + M_s (i\omega\tau)^{1-\alpha}} \quad (2.32a)$$

$$M' = M_\infty M_s \frac{[M_s A + (M_\infty - M_s) \cos\phi]A}{M_s^2 A^2 + 2A(M_\infty - M_s)M_s \cos\phi + (M_\infty - M_s)^2} \quad (2.32b)$$

$$M'' = M_\infty M_s \frac{[(M_\infty - M_s) \sin\phi]A}{M_s^2 A^2 + 2A(M_\infty - M_s)M_s \cos\phi + (M_\infty - M_s)^2} \quad (2.32c)$$

Buradaki  $A$  ve  $\phi$  terimleri, denklem (2.10c) ve denklem (2.10d)'de tanımlanmıştır.

### 2.5.3. Cole-Davidson denklemi:

Yine yukarıdakilere benzer olarak, denklem (2.11)'in tersi alınarak, kompleks modül şu şekilde bulunur:

$$M^* = M_\infty M_s \frac{1 + (i\omega\tau)^\gamma}{(M_\infty - M_s) + M_s (1 + i\omega\tau)^\gamma} \quad (2.33a)$$

$$M' = \frac{M_\infty M_s [M_s + (M_\infty - M_s)(\cos\phi)^\gamma (\cos(\gamma\phi))]}{M_s^2 + (M_\infty - M_s)(\cos\phi)^\gamma [2M_s \cos(\gamma\phi) + (M_\infty - M_s)(\cos\phi)^\gamma]} \quad (2.33b)$$

$$M'' = \frac{M_\infty M_s (M_\infty - M_s)(\cos\phi)^\gamma \sin(\gamma\phi)}{M_s^2 + (M_\infty - M_s)(\cos\phi)^\gamma [2M_s \cos(\gamma\phi) + (M_\infty - M_s)(\cos\phi)^\gamma]} \quad (2.33c)$$

Yine buradaki  $A$  ve  $\phi$  terimleri, denklem (2.10c) ve (2.10d)'de tanımlanmıştır.

#### 2.5.4. Havriliak-Negami denklemi:

Denklem (2.13)'te tanımlanan ifadenin tersi alınarak, kompleks elektrik modülü şu şekilde gösterilebilir:

$$M^* = M_\infty M_s \frac{[1 + (i\omega\tau)^{1-\alpha}]^\gamma}{(M_\infty - M_s) + M_s [1 + (i\omega\tau)^{1-\alpha}]^\gamma} \quad (2.34a)$$

$$M' = \frac{M_\infty M_s [M_s A^\gamma + (M_\infty - M_s) \cos(\phi\gamma)] A^\gamma}{M_s^2 A^{2\gamma} + 2A^\gamma (M_\infty - M_s) M_s \cos(\phi\gamma) + (M_\infty - M_s)^2} \quad (2.34b)$$

$$M'' = \frac{M_\infty M_s [(M_\infty - M_s) \sin(\phi\gamma)] A^\gamma}{M_s^2 A^{2\gamma} + 2A^\gamma (M_\infty - M_s) M_s \cos(\phi\gamma) + (M_\infty - M_s)^2} \quad (2.34c)$$

#### 2.5.5. MWS eşitlikleri:

Geçirgenlik modunda tanımlanmış olan denklem (2.15)'in tersi alınarak, kompleks elektrik modülü ve onun reel ve sanal kısımları bulunabilir. Basitlik açısından burada bu ifadenin sadeleştirilmiş alınımıştır. Denklemin tam gösterimi ve sadeleştirme işlemi EK-1'de ayrıntılarıyla sunulmuştur.

$$M^* = \frac{M_\infty M_s \left(1 + (i\omega\tau)^{1-\alpha}\right)^\gamma \varepsilon_0 \omega}{M_s \left(1 + (i\omega\tau)^{1-\alpha}\right)^\gamma \varepsilon_0 \omega + \varepsilon_0 M_\infty \omega - \varepsilon_0 M_s \omega + i\sigma(i\omega)^n M_s M_\infty \left(1 + (i\omega\tau)^{1-\alpha}\right)^\gamma} \quad (2.35a)$$

$$M^* = \frac{M_\infty M_s}{M_s + (M_\infty - M_s) \left(1 + (i\omega\tau)^{1-\alpha}\right)^{-\gamma} - \frac{\sigma}{\varepsilon_0} (i\omega)^{n-1} M_s M_\infty} \quad (2.35b)$$

$$M' = M_s M_\infty \frac{(M_\infty - M_s) \cos(\gamma\phi) + M_s A^\gamma - M_s M_\infty \left(\frac{\sigma}{\varepsilon_0}\right) A^\gamma \omega^{n-1} \cos\left(\frac{\pi}{2}(n-1)\right)}{Payda} \quad (2.35c)$$

$$M'' = M_s M_\infty \frac{(M_\infty - M_s) \sin(\gamma\phi) + M_s M_\infty \left(\frac{\sigma}{\varepsilon_0}\right) A^\gamma \omega^{n-1} \sin\left(\frac{\pi}{2}(n-1)\right)}{Payda} \quad (2.35d)$$

$$\begin{aligned} Payda &= 2M_s(M_\infty - M_s) \cos(\gamma\phi) + (M_\infty - M_s)^2 A^{-\gamma} + M_s^2 A^\gamma \\ &\quad + M_s^2 M_\infty^2 \left(\frac{\sigma}{\varepsilon_0}\right)^2 A^\gamma \omega^{2(n-1)} - 2M_s M_\infty (M_\infty - M_s) \left(\frac{\sigma}{\varepsilon_0}\right) \omega^{n-1} \cos\left(\gamma\phi + \frac{\pi}{2}(n-1)\right) \\ &\quad - 2M_s^2 M_\infty \left(\frac{\sigma}{\varepsilon_0}\right) \omega^{n-1} A^\gamma \cos\left(\frac{\pi}{2}(n-1)\right) \end{aligned} \quad (2.35e)$$

şeklinde yazılabilir. Elektrik Modülü Formalizmine göre tanımlanan (2.35a-e) denklemeleri, ilk kez Selçuk Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü Öğretim Üyeleri Yrd.Doç.Dr.Hayrettin Küçükçelebi ve Yrd.Doç.Dr.Haziret Durmuş tarafından ortaya atılmıştır. Bu denklemelerde geçen  $A$  ve  $\phi$  terimleri ise şu şekilde tanımlanmıştır (Tsangaris ve ark., 1998):

$$A = \left[ 1 + 2(\omega\tau)^{1-\alpha} \sin \frac{\pi\alpha}{2} + (\omega\tau)^{2(1-\alpha)} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (2.35f)$$

$$\phi = \arctan \left[ (\omega\tau)^{1-\alpha} \cos \frac{\alpha\pi}{2} / 1 + (\omega\tau)^{1-\alpha} \sin \frac{\alpha\pi}{2} \right] \quad (2.35g)$$

Yaptığımız çalışmada geçirgenlik modunda elde ettiğimiz değerler, bu denklem kullanılarak fit edilmiştir. Tsangaris ve arkadaşları ise, kendi deneysel verilerine denklem (2.9)'daki Cole-Cole denkleminin elektrik modülü formalizmine yapılan dönüşümünü kullanmışlardır. Bir başka deyişle, ne simetrik ve asimetrik kayma durumlarını ne de iletkenliğin frekansla değiştiği gerektiğini göz önüne almamışlardır, (Tsangaris ve ark 1998).

Kıl minerallerinin rijid katmanları (1:1 veya 2:1 katmanları) arasındaki bölgede su ve değişimlilik katyonlar bulunur. Bu yüzden killer heterojen özellik gösterirler. Rigid katmanlar ile katmanlar arası bölge iki farklı faz bölgesini oluşturur. Ancak bu iki faza karşılık gelen iletkenlik ve geçirgenlik değerlerinin ölçülmesi, örneğin polimerik kompositlerde olduğu gibi kolay değildir ve hatta hemen hemen imkansızdır. Bunun nedeni kılın katmanlar arası bölgesinin rijid katman kısmından ayrılamamasıdır. Kil minerallerinin  $100^{\circ}\text{C}$ 'ye kadar ısıtılp, katmanlar arasındaki bölgedeki su atılarak rijid katmanlara karşılık gelen iletkenlik ve geçirgenlik değerleri ölçülebilir. Fakat katmanlar arası bölge fazının tek başına bu değerleri ölçülemez. Bu yüzden killerin ölçülen iletkenlik ve geçirgenlik değerleri, rijid katmanların ve katmanlar arası bölgenin ortak iletkenlik ve geçirgenlik değerleridir. Yani, arayüzeysel kutuplanmayı tanımlayan denklemde, killer tek bileşenli heterojen maddeler olarak ele alınmalıdır. Yüksek geçirgenlik kapasitesine bağlı olarak, heterojen sistemlerin (Örneğin: su) MWS kutuplanması, kHz mertebesinde heterojenliğin büyüklüğüne ve biçimine bağlıdır. Eğer toplam geçirgenlik azalırsa, MWS kutuplanması aralığı küçük frekanslara doğru değişir. Heterojen sistemde Cole-Cole eğrisi, dipol yönelimi ve MWS kutuplanması birlikte bulunur. Hiçbir saf madde

homojen değildir. Çok düşük frekanslarda dielektrik geçirgenlikleri bulunur ve böyle olması beklenir. Bu geçirgenlikler, orta ve yüksek frekanslarda ölçülen Cole-Cole şeklärinin ekstrapolasyonundan elde edilen dipol geçirgenliklerinden daha yüksektir. Bir iletken elemanlı sistemlerde, düşük frekanslarda  $10^5$  kadar (örneğin: toprak) yüksek olabilen dielektrik geçirgenlik ve iletkenlik yüzünden arayüzeysel durulma görülmeyebilir. McCrum ve arkadaşları tarafından ortaya atılan “elektrik modülü” formalizmi ile bu zorluğun üstesinden gelinebilir (McCrum ve ark. 1967). Elektrik modülü formalizmi, iyonik iletkenler, polimerler gibi maddelerdeki iletim durulma davranışını incelenmesinde kullanılmıştır.

## 2.6. Aktivasyon Enerjisi

Aktivasyon enerjisi kimyasal olarak, bir reaksiyonda, reaksiyona giren maddelerin aktif bir duruma gelmesi için bu maddelerin kazanması gereken enerji şeklinde tanımlanır. Bir başka deyişle  $E_A$  aktivasyon enerjisi, bir reaksiyonun hız süreci üzerine sıcaklık etkisinin bir ölçüsü olmaktadır. Bir hız süreci üzerine sıcaklık etkisi genellikle Arrhenius sıcaklık fonksiyonu ile tanımlanabilir. Bu fonksiyon s reaksiyon hızının sıcaklıkla değişimini verir ve aktivasyon enerjisine

$$s = A \exp\left(-\frac{E_A}{kT}\right) \quad (2.36)$$

şeklinde bağlıdır. Burada  $k$ , Boltzmann sabiti ve  $A$  yüksek sıcaklıklı reaksiyon hızıdır.

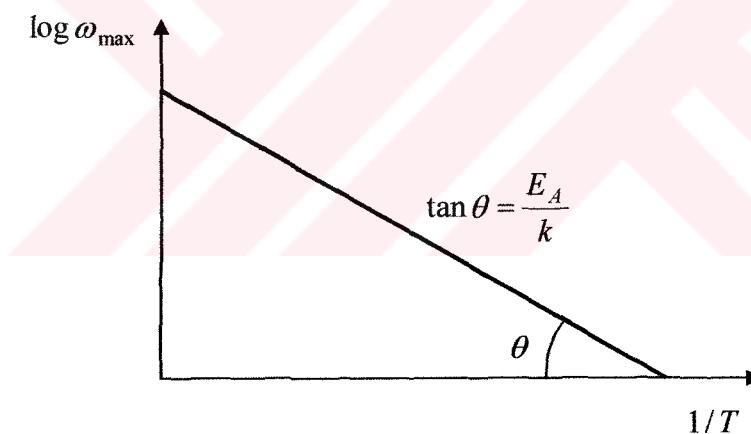
Dielektrik kutuplanma mekanizmaları için Arrhenius denklemi şu şekilde verilir:

$$f_{\max} = \frac{1}{\tau} = V_{\infty} \exp\left(-\frac{E_A}{kT}\right) \quad (2.37)$$

Burada  $f_{\max}$ , maksimum kayba karşılık gelen frekans,  $\tau$  durulma zamanı ve  $V_{\infty}$  ise yüksek sıcaklıktaki durulma hızıdır. Bu ifadeyi  $2\pi$  ile çarpıp logaritmasını aldığımızda

$$\log \omega_{\max} = V_{\infty} - \frac{E_A}{kT} \quad (2.38)$$

elde edilir. Burada  $\omega_{\max} = 2\pi f_{\max}$  olup açısal frekanstır. (2.38) ifadesinden  $\log \omega_{\max}$ 'in  $1/T$ ye göre grafiğini çizdiğimizde grafiğin eğimi  $E_A/k$ 'yı verir. Dolayısıyla bu grafikten  $E_A$  aktivasyon enerjisi bulunabilir.



Şekil 2.8:  $\log \omega_{\max} - 1/T$  bağılılığı

### 3. ARAŞTIRMA SONUÇLARI

Bu çalışmada kullanılan Ca-Montmorillonit türü kil numunesinin kimyasal analizi Çizelge 3.1'de verilmiştir.

Çizelge 3.1: Ca-Montmorillonitin kimyasal analiz sonuçları

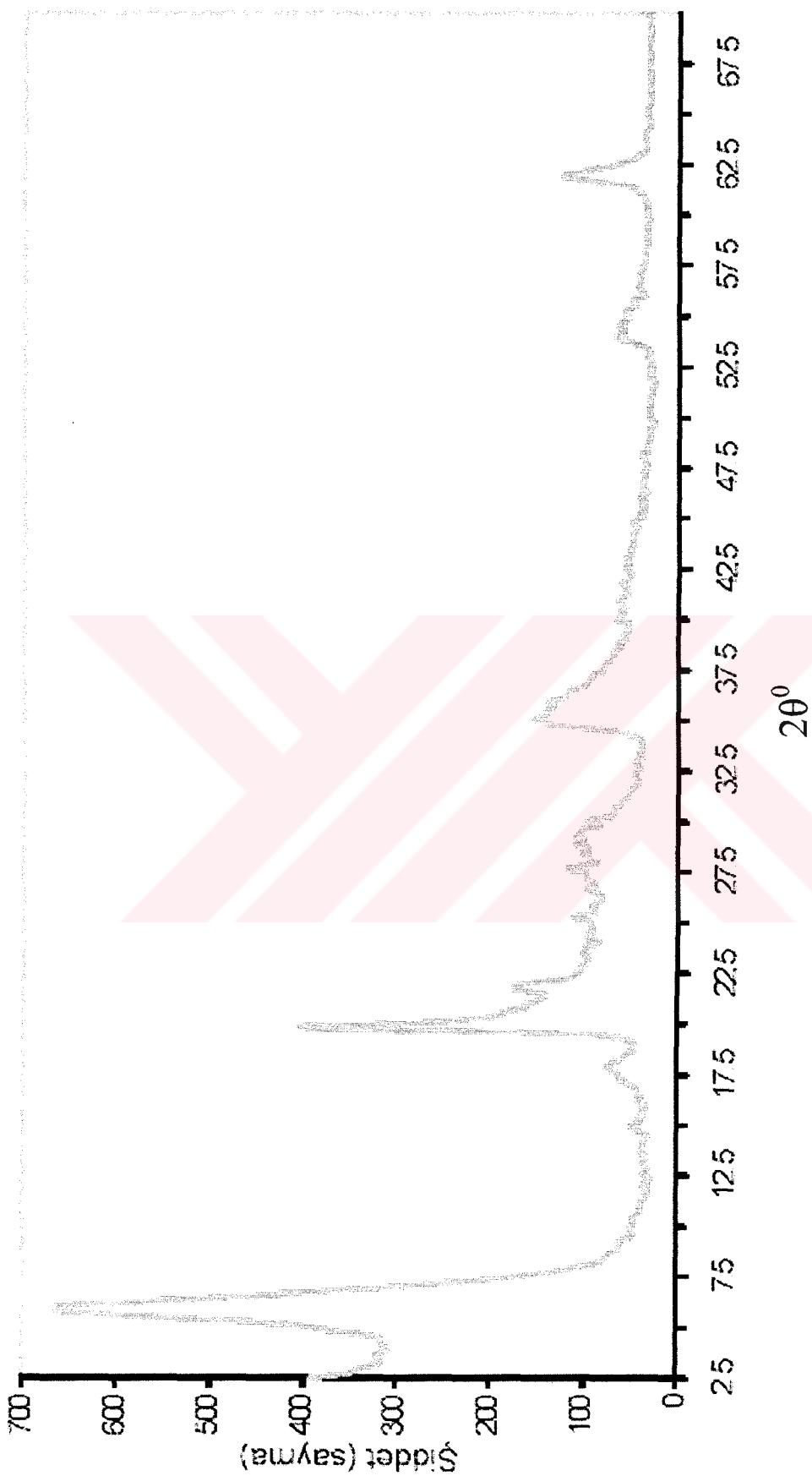
Oksit	% ağırlık	% ağırlık*
$SiO_2$	59,06	65,713
$Al_2O_3$	18,04	20,072
$Fe_2O_3$	5,26	5,853
$MgO$	3,41	3,794
$CaO$	1,19	1,324
$Na_2O$	0,27	0,300
$K_2O$	1,09	1,213
$TiO_2$	0,71	-----
$MnO$	0,024	-----
KK	10,29	-----
Toplam	99,344	98,269

\*: Kızdırma Kaybı (KK) ile  $TiO_2$  ve  $MnO$  in atılması sonradan elde edilen yüzde ağırlık

Numunenin üzerine belli bir  $\theta$  açısından gönderilen X-ışınları demetinin numunededen yansıyan (veya geçen) şiddeti, X-ışınları Difraksiyonu (XRD) ile ölçülür. Yansıyan (veya geçen) bu şiddetin  $2\theta$  ya karşı çizildiği grafik, X-ışınları Difraktogramlarını oluşturur. Montmorillonit için bu difraktogram, Nikel filtreli  $CuK_{\alpha}$  ışınımı kaynağını kullanan Philips PW3710 X-ışını Toz Difraktometresi ile yapılmış ve Şekil 3.1'de gösterilmiştir. Bazen de, şiddet  $d$  katman kalınlığına göre aşağıdaki Bragg yasası ile ifade edilir:

$$\frac{1}{d} = \frac{2 \sin \theta}{\lambda} \quad (3.1)$$

Burada  $\theta$ ; demetin numune üzerine gönderilme açısı (Bragg açısı),  $\lambda$ ; x-ışınlarının dalga boyu,  $d$ ; katman kalınlığıdır. X-ışınları difraktogramlarından, numunenin hangi tür maddelerdenoluştugu belirlenir. Her kristalli maddenin kendine özgü pikleri vardır ve bu pikler belli konumlarda ( $2\theta$  veya  $d$  değeri) bulunur. Bu konumlara göre numunenin hangi maddelerdenoluştugu bulunabilir.(Küçükçelebi 1997)



Şekil 3.1: Kıl tane boyutuna getirilen ve saflaştırılan Ca-Montmorillonit kiliinin X-ışınları diffraktogram (XRD) deseni.  
(Küçükçelebi 1997)

Yapmış olduğumuz çalışmada kullandığımız numunenin dielektrik ölçümlerinde, paralel plakalı düzgün kapasitör yöntemi kullanılmıştır. Numune önce düzgün yüzeyli diskler haline getirilmiş daha sonra iki iletken plaka arasına konularak, bu plakalar aracılığıyla numune üzerine bir elektrik alan uygulanmış ve ölçüm yapılmıştır. Ancak iletken elektrotlar ile dielektrik madde arasında boşlukların olması dielektrik kaybı arttırdığından, numunenin her iki düzgün yüzeyi iletken bir boyalı gümüş boyalı boyanarak, madde ile elektrotlar arasındaki kontakların daha iyi olması sağlanmış ve ölçüm sonuçları alınmıştır.

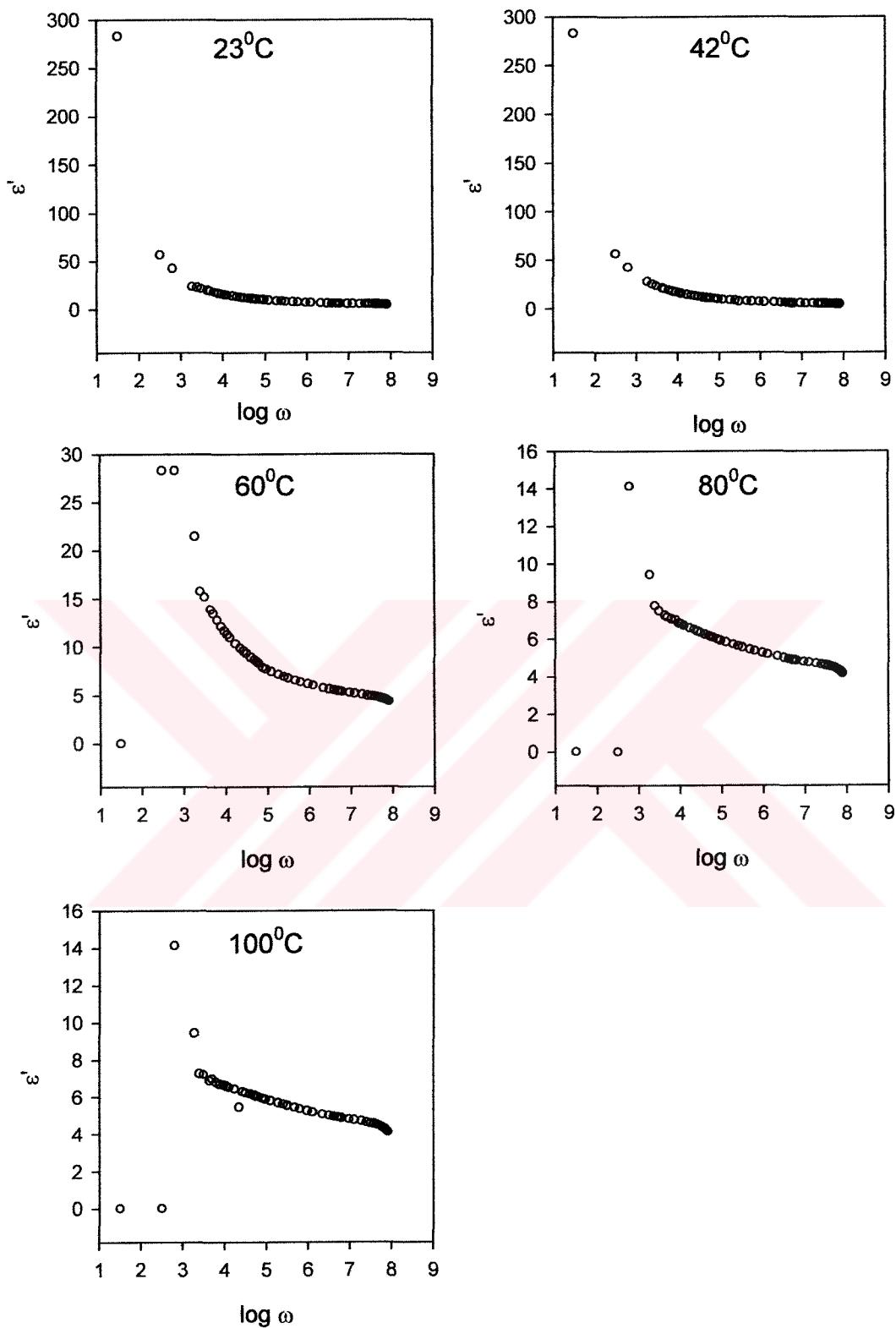
Montmorillonit klinin dielektrik özelliklerinin ölçülmesi, 5Hz-13MHz frekans aralığına sahip HP4192A LF Empedans Analizörü ve arzulanan sıcaklığı ayarlamak için Elektro-mag sıcaklık kontrolcüsü kullanılarak yapılmıştır. Numune 9 mm ( $\pm 0,01\text{mm}$ ) çaplı ve 0,5mm ( $\pm 0,01\text{mm}$ ) kalınlıklı bir disk biçiminde hazırlanmıştır.

$\epsilon'$  reel ve  $\epsilon''$  sanal geçirgenlikleri, denklem (1.12)'de tanımlanan  $Y^*$  admitansından ölçülmüştür:

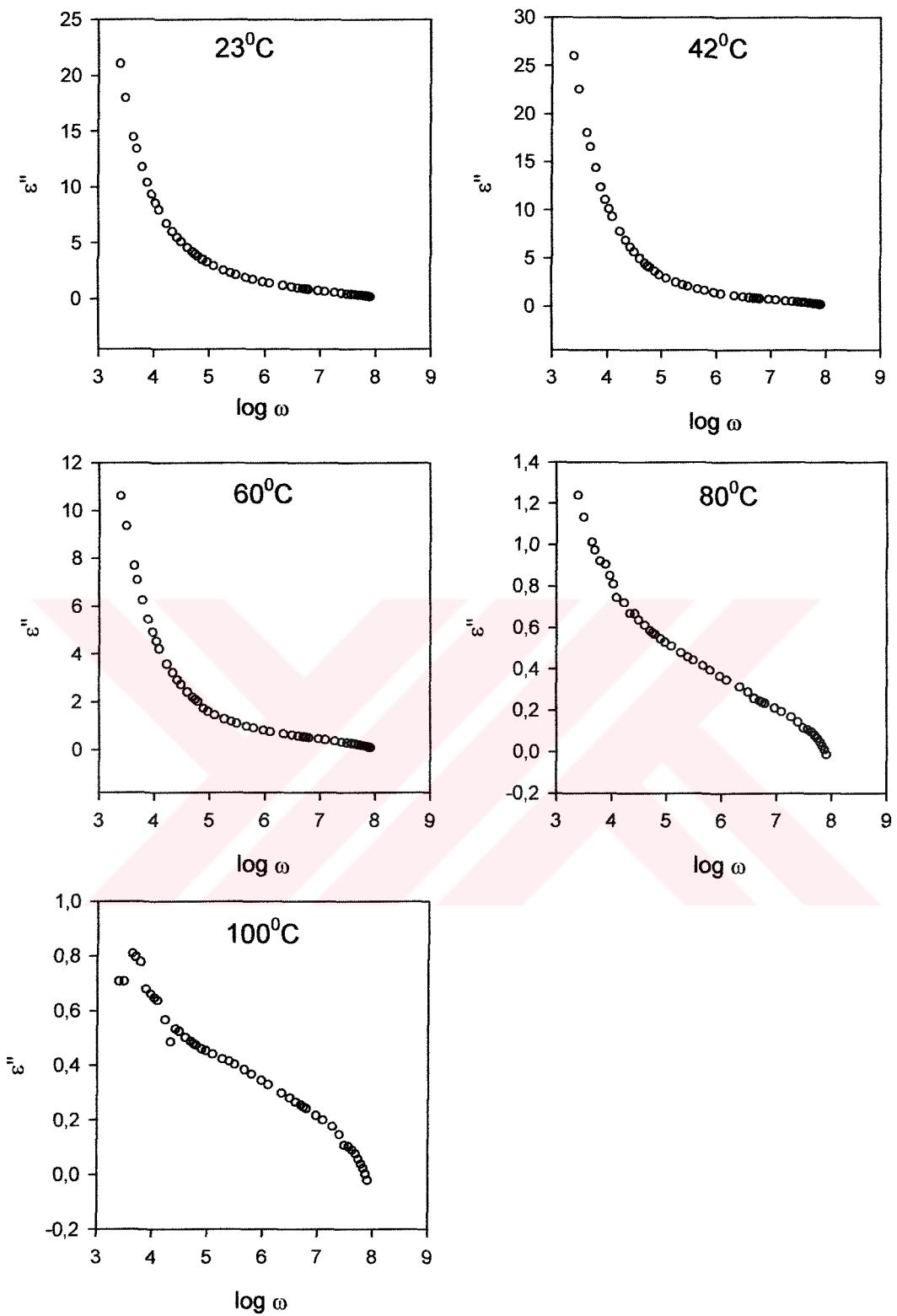
$$|Y^*| = G + iB = \alpha\epsilon''C_0 + i\alpha\epsilon'C_0$$

$$\epsilon' = \frac{B}{\omega C_0} ; \quad \epsilon'' = \frac{G}{\omega C_0}$$

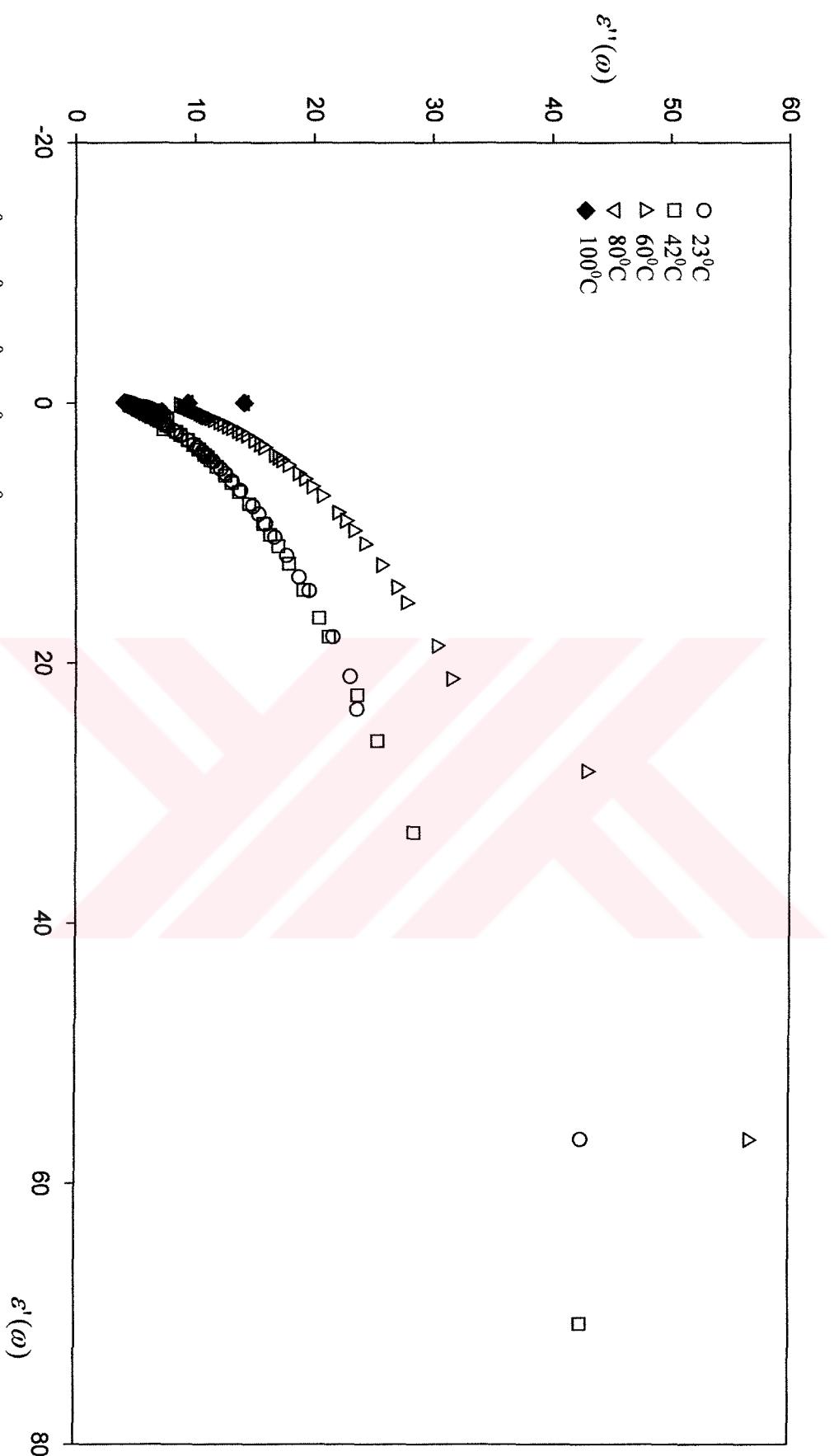
Şekil 3.2a'da montmorillonitin  $22^\circ\text{C}$ ,  $42^\circ\text{C}$ ,  $60^\circ\text{C}$ ,  $80^\circ\text{C}$  ve  $100^\circ\text{C}$  sıcaklıklarında  $\epsilon'(\omega)$  reel geçirgenlik ölçümünün, Şekil 3.2.b'de ise  $\epsilon''(\omega)$  dielektrik kayıp ölçümünün açısal frekansa göre değişimleri görülmektedir. Şekil 3.3 ve Şekil 3.4'te ise  $\epsilon'-\epsilon''$  grafikleri sunulmuştur.



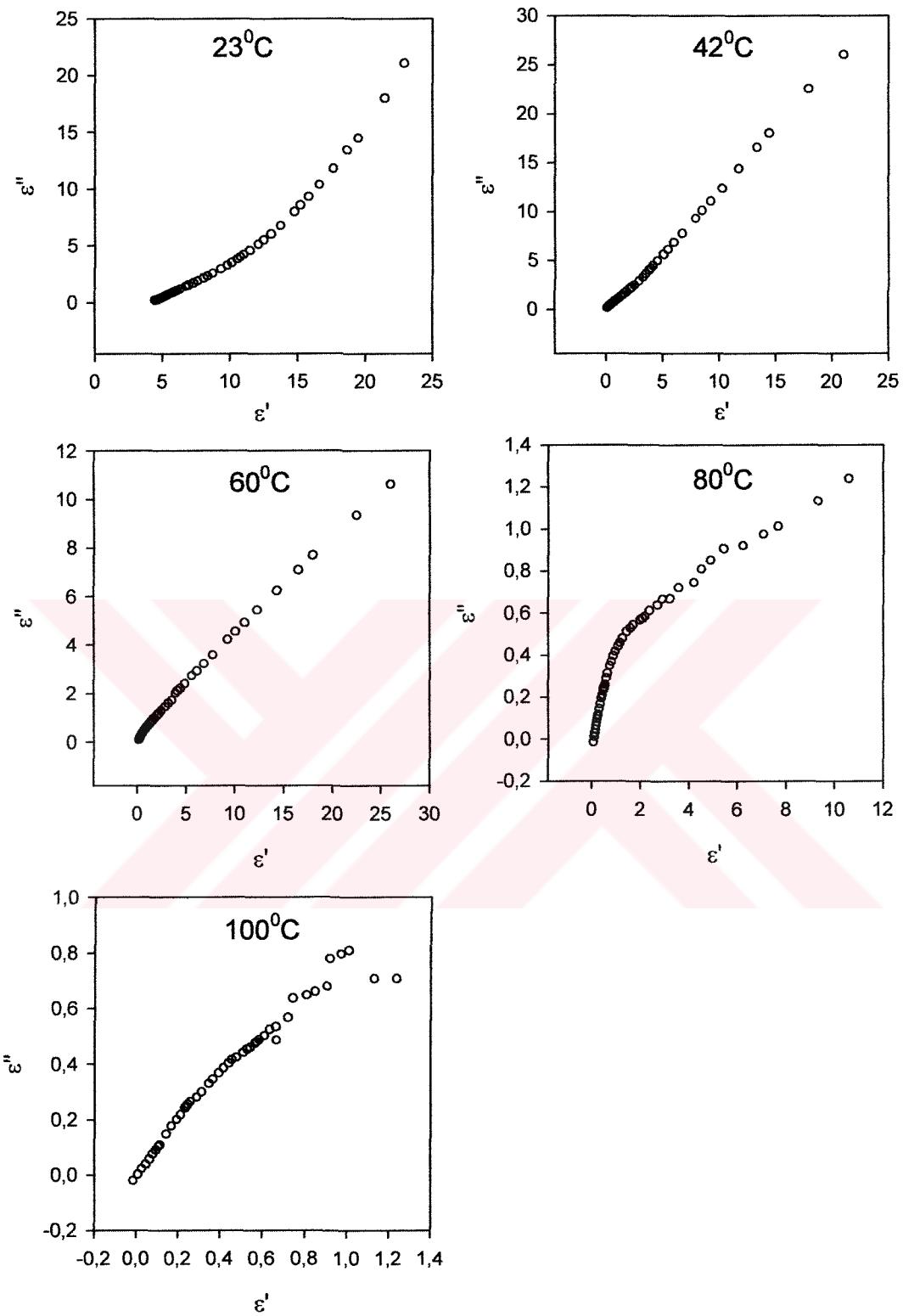
Şekil 3.2a:  $23^{\circ}\text{C}$ ,  $42^{\circ}\text{C}$ ,  $60^{\circ}\text{C}$ ,  $80^{\circ}\text{C}$  ve  $100^{\circ}\text{C}$  için ( $\epsilon'$ ) reel geçirgenlik ölçümelerinin açısal frekansa göre değişimleri.



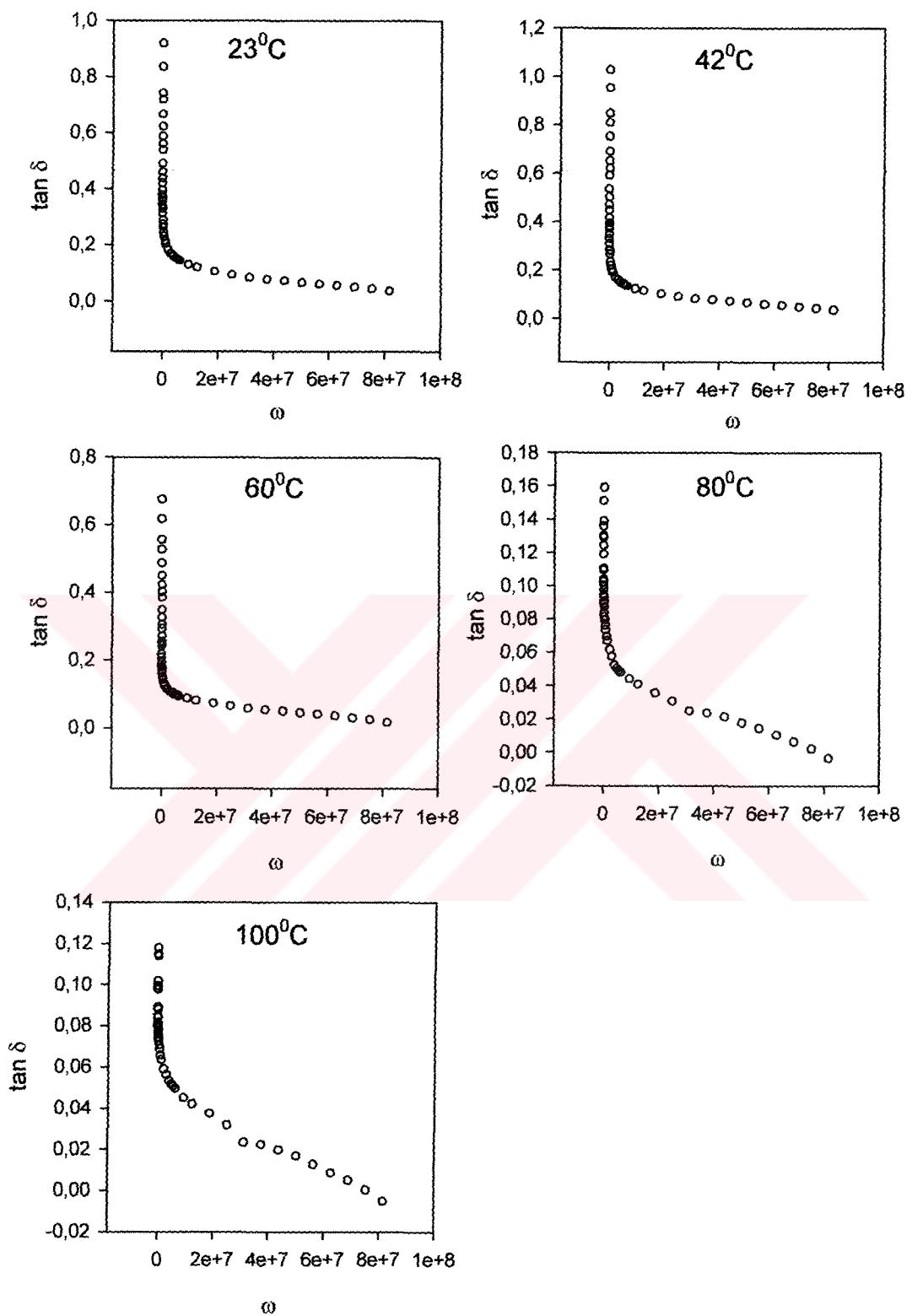
Şekil 3.2b:  $23^{\circ}\text{C}$ ,  $42^{\circ}\text{C}$ ,  $60^{\circ}\text{C}$ ,  $80^{\circ}\text{C}$  ve  $100^{\circ}\text{C}$  için ( $\varepsilon''$ ) dielektrik kaybı ölçümlerinin açısal frekansa göre değişimleri.



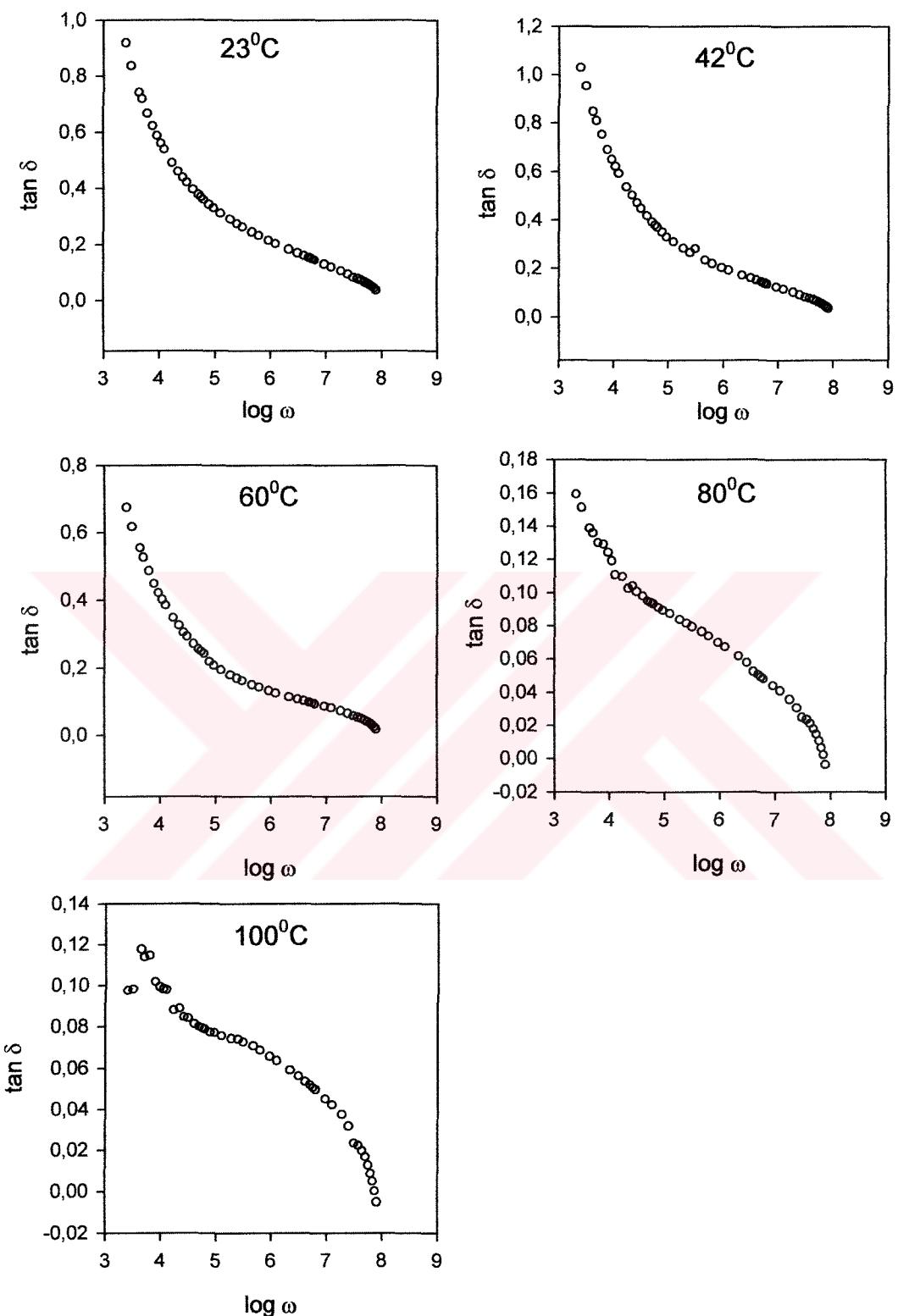
Şekil 3.3:  $23^{\circ}\text{C}$ ,  $42^{\circ}\text{C}$ ,  $60^{\circ}\text{C}$ ,  $80^{\circ}\text{C}$ ,  $100^{\circ}\text{C}$  için ( $\varepsilon''$ ) dielektrik kaybının ( $\varepsilon'$ ) real geçirgenlige göre değişimi.



Şekil 3.4:  $23^{\circ}\text{C}$ ,  $42^{\circ}\text{C}$ ,  $60^{\circ}\text{C}$ ,  $80^{\circ}\text{C}$  ve  $100^{\circ}\text{C}$  için ( $\epsilon''$ ) dielektrik kaybının ( $\epsilon'$ ) reel geçirgenliğe göre değişimi (Cole-Cole eğrisi).



Şekil 3.5a:  $23^{\circ}\text{C}$ ,  $42^{\circ}\text{C}$ ,  $60^{\circ}\text{C}$ ,  $80^{\circ}\text{C}$  ve  $100^{\circ}\text{C}$  için  $\tan \delta$  kayıp açısının açısal frekans  $\omega$ 'ya göre değişimi.

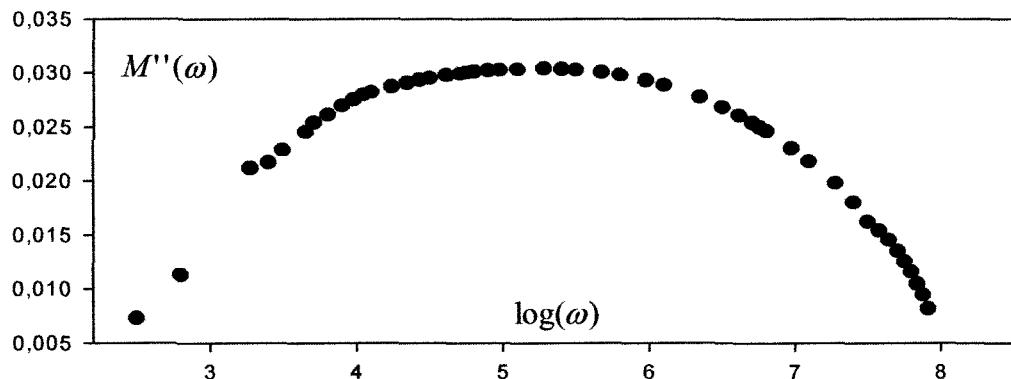


Şekil 3.5b:  $23^0\text{C}$ ,  $42^0\text{C}$ ,  $60^0\text{C}$ ,  $80^0\text{C}$  ve  $100^0\text{C}$  için  $\tan \delta$  kayıp açısının logaritmik açısal frekansa ( $\log \omega$ ) göre değişimi.

Şekil 3.2a, Şekil 3.2b, Şekil 3.4, Şekil-3.5.a ve Şekil-3.5.b ile verilen geçirgenlik temsillerindeki durulma olaylarının gözlenememesi (yani durulmayı temsil eden piklerin maksimumlarının belli olmaması) arayüzeysel kutuplanmadan kaynaklanmaktadır.  $\varepsilon'$  ve  $\varepsilon''$ , düşük frekanslarda büyük değerlere sahiptir. Bu durum, düşük frekanslarda etkili olan arayüzeysel kutuplanmadan ileri gelir (Tsangaris ve ark. 1998). Bu kutuplanma türü, yapı içerisinde hareketli iyonların ve su gibi düşük atom ağırlıklı maddelerin bulunmasının bir sonucudur. Bu iyonların kılın ara yüzey bölgelerinde birikmesi nedeniyle, yapı içerisinde iletkenlik oluşur. Bu kutuplanma türüne bu yüzden arayüzeysel kutuplanma veya iletkenlik kutuplanması (durulması) adı da verilir.

Geçirgenlik modunda çizilen yukarıdaki şekillerde kutuplanma mekanizmalarını belirleyen durulma süreçleri görülmemektedir. Bir başka deyişle, arayüzeysel kutuplanmanın bir sonucu olarak, düşük frekanslarda geçirgenlik değerlerinin çok büyük olması nedeniyle, herhangi bir pik (durulma piki) görülmemektedir. Bu güçluğun ortadan kaldırılması için, elektrik modülü formalizmi kullanılmıştır. Bu formalizmde geçirgenliklerin tersi boyutunda olan  $M'$  ve  $M''$  nicelikleri kullanılır. Çok büyük bir sayının tersi çok küçük olacağından bu formalizmde çizilen eğrilerde durulma pikleri görülebilmektedir (McCrum ve ark. 1967).

Şekil 3.6'da montmorillonit türü kil numunesinin  $23^{\circ}\text{C}$ 'deki sanal elektrik modülünün açısal frekansa göre değişimi görülmektedir. Şekilden de görüldüğü gibi bu formalizm ile elektrot kutuplanması etkisi minimuma indirilerek, dielektrik maddenin durulma süreçlerinin belirlenmesi sağlanabilmektedir. Bu avantajdan faydalananarak; numunemizin dielektrik özelliklerini bulurken, geçirgenlik modundan elektrik modülü formalizmine geçmek daha uygun görülmektedir.

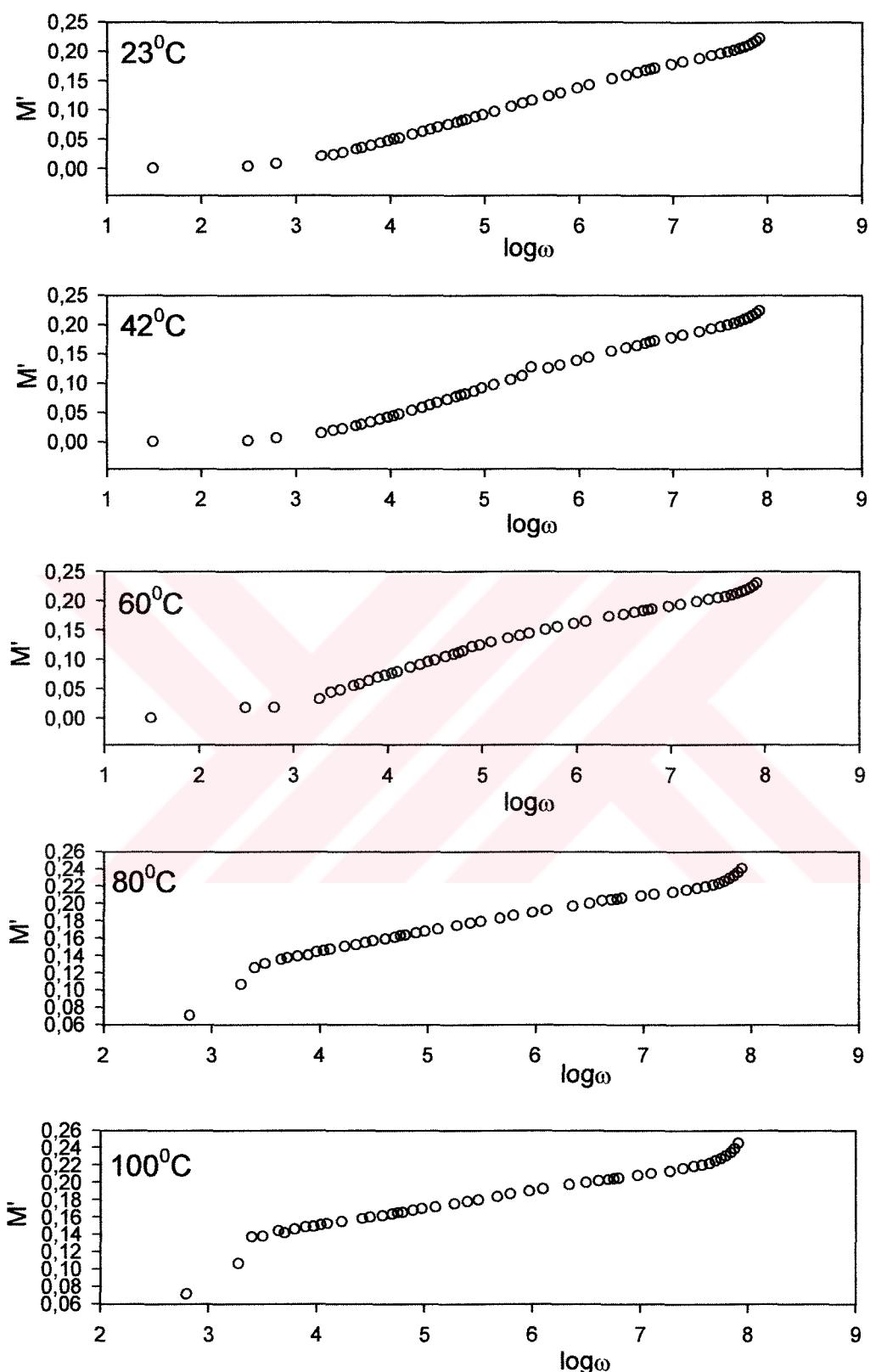


Şekil 3.6:  $23^{\circ}\text{C}$  için sanal elektrik modülü ( $M''(\omega)$ ) açısal frekansa göre değişimi.

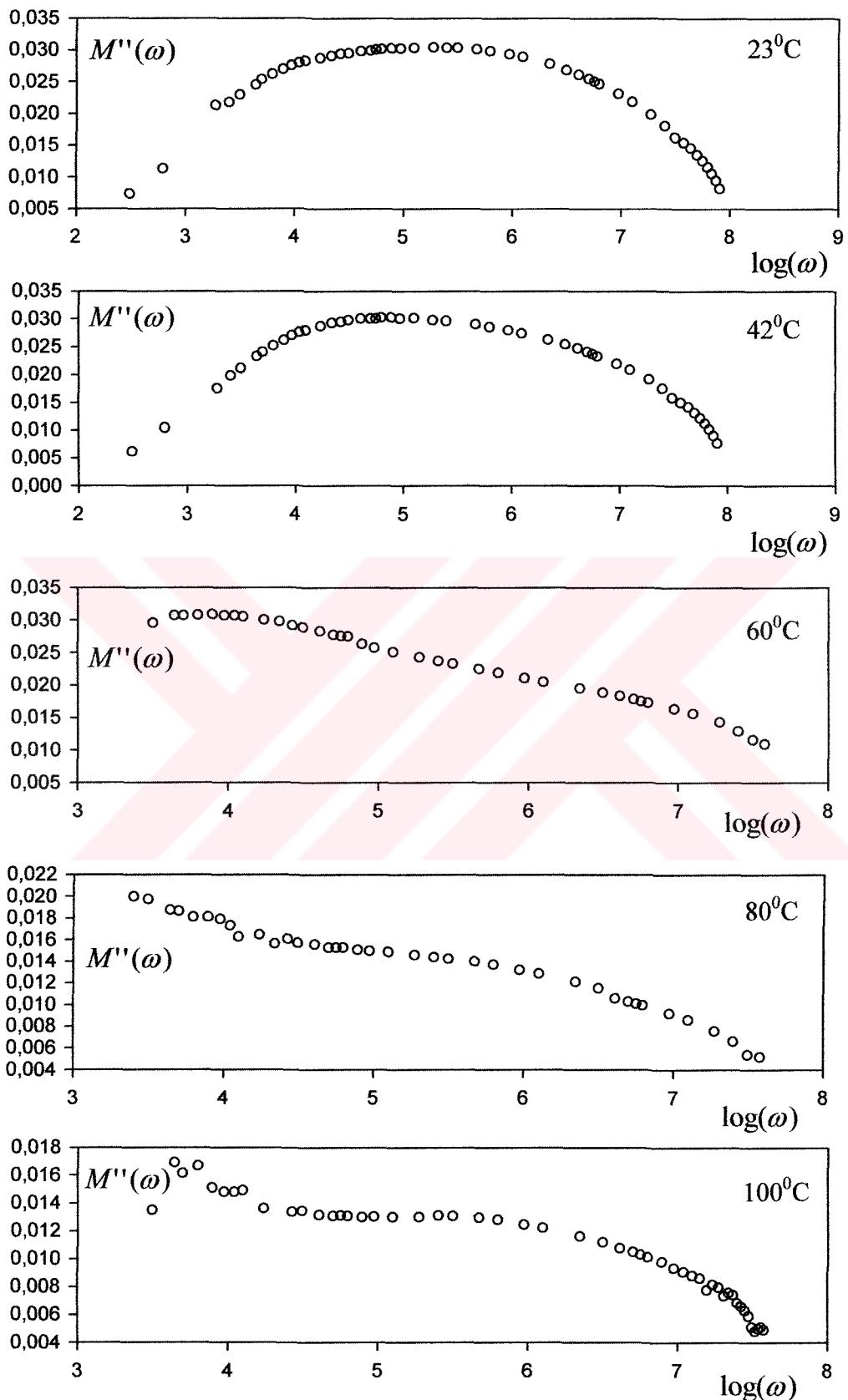
Yapmış olduğumuz deneyde, empedans analizöründen alınan değerler, Sigma Plot 8.0 grafik programı kullanılarak, Ek-2'de sunulan dönüşüm programıyla geçirgenlik ve elektrik modülü değerlerine dönüştürülmüştür.

Şekil 3.7a ve şekil 3.7b'de, 23, 42, 60, 80 ve  $100^{\circ}\text{C}$  sıcaklıklarını için  $M'$  ve  $M''$ 'nın  $\log(\omega)$  'ya göre çizilen eğrileri verilmiştir. Bu eğrilerde özellikle sanal kısım (kayıp) ile ilgili olan şekil 3.7b'de durulma piki görülebilmektedir.

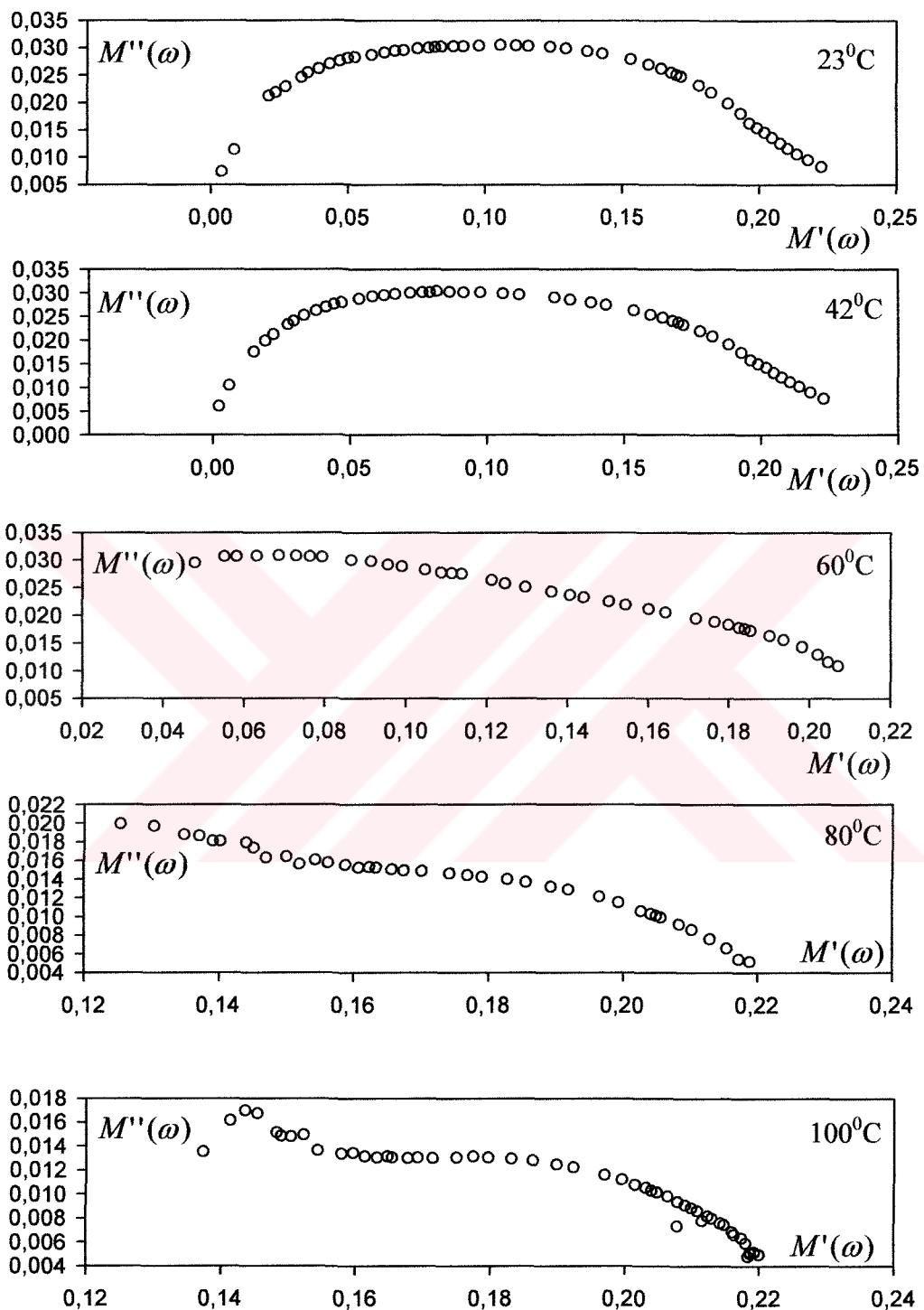
Şekil 3.8'deki Cole-Cole eğrileri, 5Hz - 13MHz arasındaki frekans bölgesinde etkili olan kutuplanma mekanizmalarının ortak katkısından oluşur. Bir başka deyişle, bu eğrilerin düşük frekanslar kısmında arayüzeysel kutuplanmadan ileri gelen küçük yarıçaplı bir yarımdaire ile yüksek frekanslar kısmında ise yönelimli kutuplanmadan ileri gelen daha büyük yarıçaplı bir yarımdaire bulunur. Bu iki yarımdaire iç içe geçmiş durumdadır. Bu yüzden bu eğri, denklem (2.35)' e fit edilmesiyle incelenmiştir. Bu fiti yapmakta gereklili olan dönüşümün Sigma-Plot 8.0 için yazılan programı EK-2 ve EK-3'te sunulmuştur.



Şekil 3.7a: Düşey eksende reel elektrik modülünün yatay eksendeki açısal frekansın logaritmasına göre çizimi.

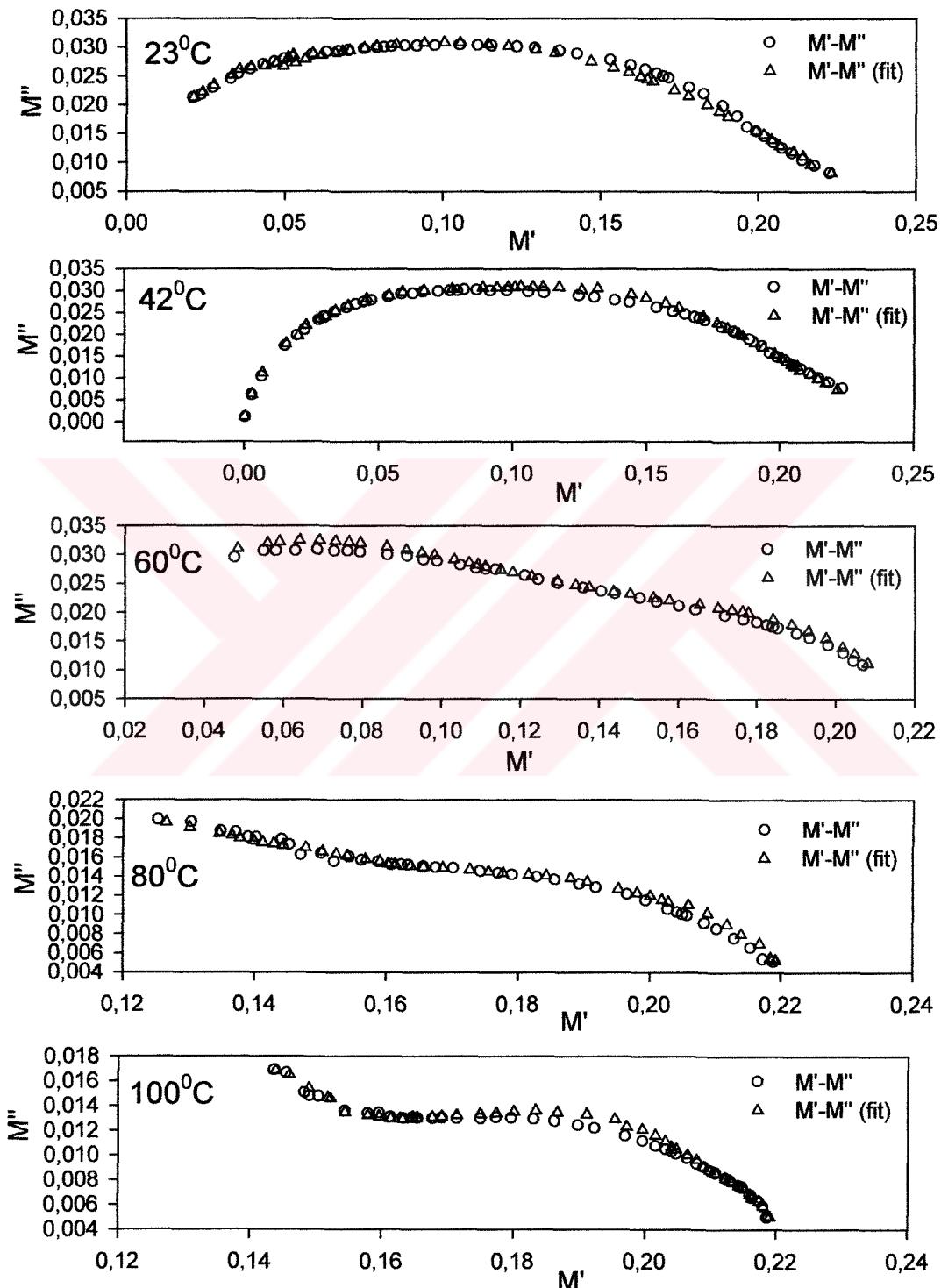


Şekil 3.7b: Düşey eksende sanal elektrik modülünün yatay eksendeki açısal frekansın logaritmasına göre çizimi.

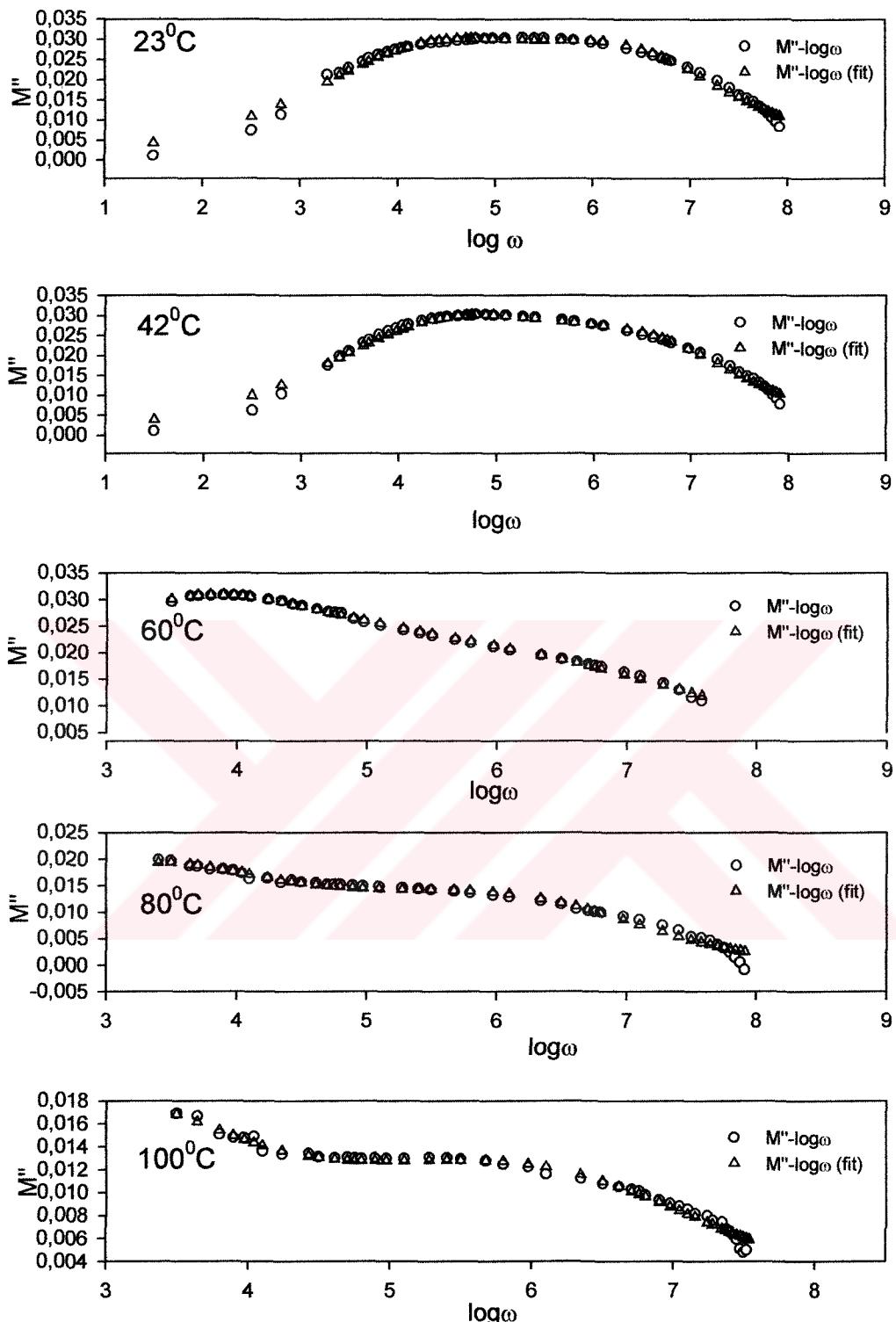


Şekil 3.8: Montmorillonitin 23, 42, 60, 80 ve 100°C'deki sanal elektrik modülünün reel elektrik modülüne göre değişimi (Cole-Cole grafiği).

Bu grafikleri oluşturan reel ve sanal elektrik modülü değerleri, denklem (2.35)'de tanımlanan kuvvet yasalı Havriliak-Negami Denklemi ile fit edilmiş ve bu fitler Şekil 3.9'da gösterilmiştir.



Şekil 3.9: Deneysel verilere yapılan  $M' - M''$  fiti sonucu elde edilen desenler.



Şekil 3.10: deneysel olarak elde edilen  $M''-\log \omega$  eğrisi ile fit işleminden elde edilen eğrinin uyumu.

Ek-3'te sunulan fit işlemi,  $M'-M''$  uyumu için yapılmış ve bu uyum Şekil 3.9'da görüldüğü gibi olmuştur. Bu işleminden elde edilen  $M_\infty, M_s, \alpha, \gamma, n, \sigma, \tau$  parametreleri her sıcaklık değeri için aşağıda gösterilmiştir.

Çizelge 3.2:  $M'-M''$  için yapılan fit sonucu elde edilen parametreler.

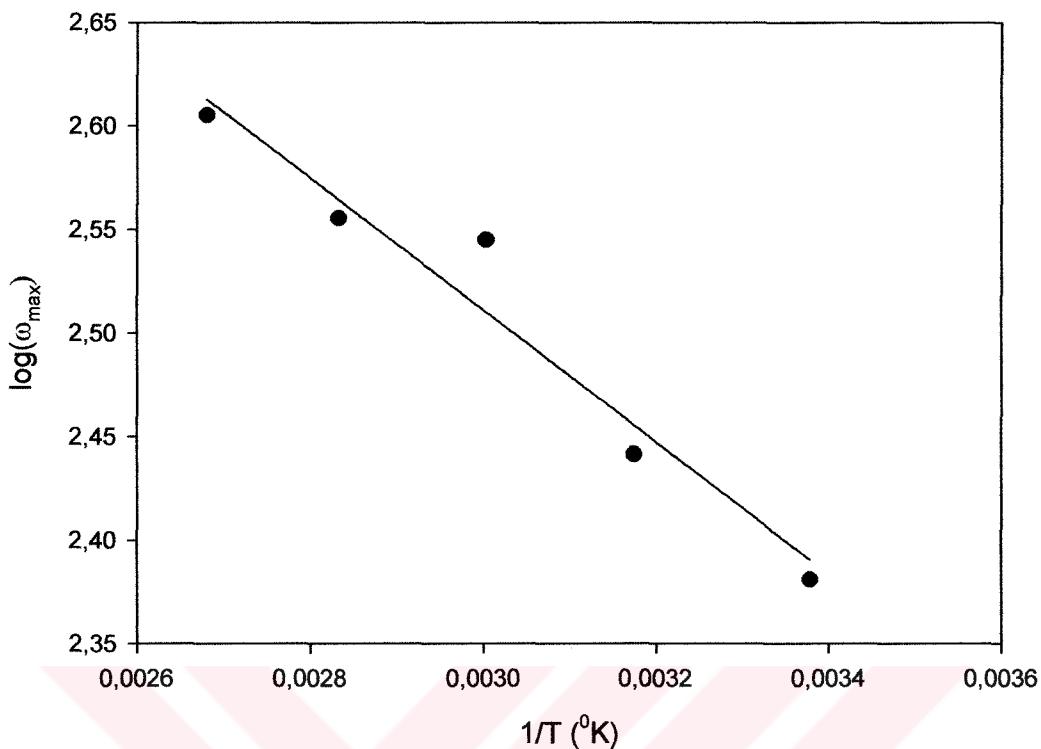
	$23^0\text{C}$	$42^0\text{C}$	$60^0\text{C}$	$80^0\text{C}$	$100^0\text{C}$
$M_\infty$	0,2352	0,2352	0,2795	0,2427	0,2341
$M_s$	5,9454e-3	6,9454e-3	0,0698	0,0794	0,0851
$\alpha$	0,0251	0,1274	0,6319	0,7245	0,6403
$\gamma$	0,8901	0,7915	0,5165	0,7316	0,6966
$n$	0,6664	0,6704	0,3146	0,2908	0,2981
$\sigma(\Omega\text{m})^{-1}$	$2,9920 \cdot 10^{-9}$	$2,5920 \cdot 10^{-9}$	$2,0686 \cdot 10^{-9}$	$1,9011 \cdot 10^{-9}$	$1,0213 \cdot 10^{-9}$
$\tau (\text{s})$	$4,5579 \cdot 10^{-3}$	$4,3500 \cdot 10^{-3}$	$3,8708 \cdot 10^{-3}$	$3,5614 \cdot 10^{-3}$	$3,3012 \cdot 10^{-3}$

Burada bulunan  $\gamma$  ve  $\tau$  parametreleri denklem (2.12d)'de yerine konulup maksimum durulma frekansı olan  $\omega_{\max}$  hesaplanmıştır. Her sıcaklık değeri için bulunan Maksimum durulma frekansı olan  $\omega_{\max}$  değerleri aşağıdaki gibidir:

Çizelge 3.3:  $M'-M''$  için, Denklem (2.12d)'ye göre elde edilen  $\omega_{\max}$  değerleri.

	$23^0\text{C}$	$42^0\text{C}$	$60^0\text{C}$	$80^0\text{C}$	$100^0\text{C}$
$\omega_{\max}$	240,46017	276,2815	350,7298	359,2117	402,8258
$\log(\omega_{\max})$	2,3809	2,4414	2,5450	2,5554	2,6051

Maksimum durulma frekansının sıcaklığın (Kelvin ölçüğine göre) tersine göre çizildiği Arrhenius eğrisi ise şekil 3.11'deki gibi çizilmiştir.



Şekil 3.11:  $M'-M''$  için yapılan fitte edilen maksimum durulma frekansının sıcaklığın tersine göre çizildiği Arrhenius grafiği.

Grafikteki beş değerden bahsedilen grafik programı yardımıyla en iyi geçen doğru çizilmiş ve şekil 3.11'deki doğruya ulaşılmıştır. Bu doğrunun eğimi alınarak montmorillonit türü kil numunesinin aktivasyon enerjisi hesaplamıştır. Bu aktivasyon enerjisi, denklem (2.38) ile tanımlanan bağıntıya göre bulunabilir. Denklem (2.38) basitçe,  $f = y_0 - ax$  şeklinde bir doğru denklemidir. O halde (2.38)'deki denklem buna uydurulursa; eğim yerine,

$$a \rightarrow \frac{E_A}{k} \quad (3.2)$$

ifadesini konulabilir. Şekil 3.11'deki grafiğin eğimi,  $-325,1 {}^0\text{K}$  bulunmuştur.  $V_\infty$  değeri ise  $3,486 \text{ s}^{-1}$  olarak tespit edilmiştir. Bulunan eğim değeri denklem (3.2)'de yerine konulursa:

$$E_A = a \times k \Rightarrow -325,1 \times 1,38 \cdot 10^{-23} = 4,48638 \cdot 10^{21} \text{ J}$$

bulunur.  $1\text{eV}=1,6 \cdot 10^{19}\text{Joule}$  olduğu bilgisini kullanırsak;

$$E_A = 0,02804 \text{ eV}$$

gibi bir aktivasyon enerjisini bulmuş oluruz. Kelvin cinsinden tanımlı olan herhangi bir sıcaklıktaki maksimum durulma zamanını bulmak için, bu sıcaklık aşağıdaki ifadede yerine konulabilir:

$$\log \omega_{\max} = 3,486 - 325,1 \left( \frac{1}{T} \right) \quad (3.3)$$

Böylece belli bir sıcaklık bölgesinde için bahsedilen durulma frekansı elde edilir.

Ancak, uyumu Şekil 3.10'da görülen  $M'' - \log \omega$  grafiğine göre elde edilen parametreler ve buna bağlı olarak bulunan aktivasyon enerjisi farklılık arz etmektedir.  $M'' - \log \omega$  için elde edilen bu parametreler çizelge 3.4'te verilmiştir.

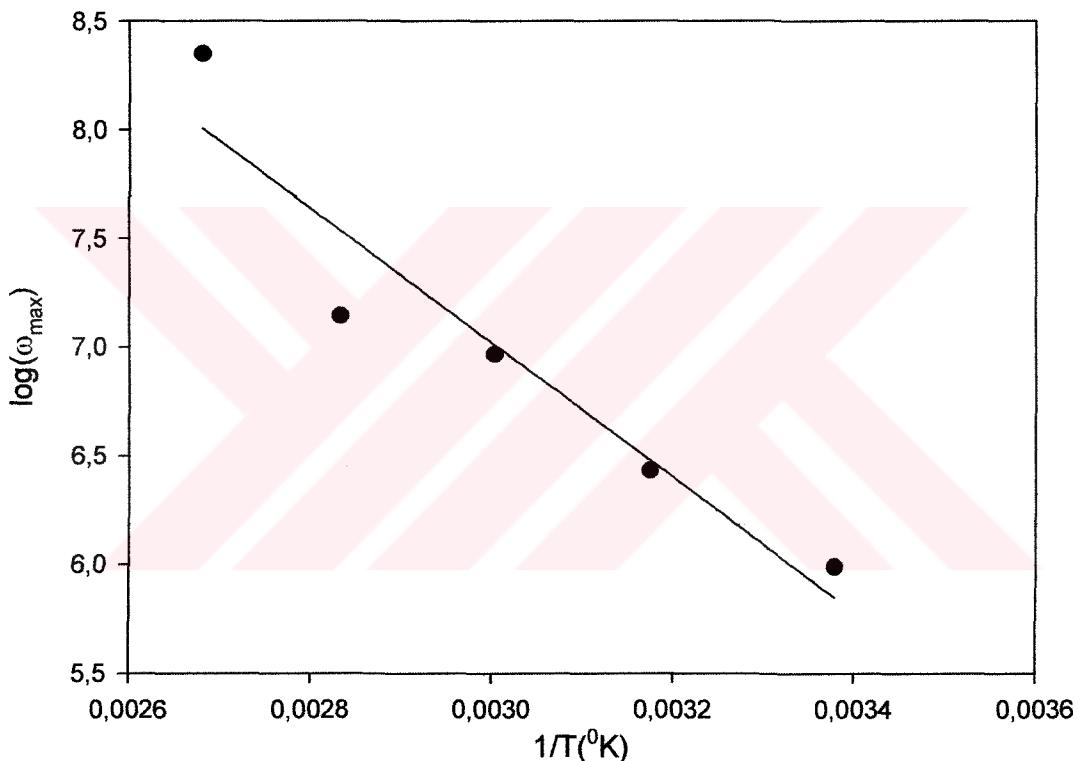
Çizelge 3.4:  $M'' - \log \omega$  için yapılan fit sonucu elde edilen parametreler.

	$23^{\circ}\text{C}$	$42^{\circ}\text{C}$	$60^{\circ}\text{C}$	$80^{\circ}\text{C}$	$100^{\circ}\text{C}$
$M_\infty$	0,2220	0,2108	0,2228	0,1276	0,1223
$M_s$	0,1489	0,1518	0,1012	0,0642	0,0508
$\alpha$	0,4211	0,5043	0,7610	0,7135	0,6982
$\gamma$	0,9000	1,4693	2,1584	5,5095	1,9667
$n$	0,5392	0,5484	0,4549	0,3976	0,3306
$\sigma(\Omega\text{m})^{-1}$	$6,3142 \cdot 10^{-9}$	$6,5667 \cdot 10^{-9}$	$5,5572 \cdot 10^{-9}$	$1,0245 \cdot 10^{-8}$	$1,4493 \cdot 10^{-8}$
$\tau(\text{s})$	$1,1177 \cdot 10^{-6}$	$2,7393 \cdot 10^{-7}$	$5,8606 \cdot 10^{-8}$	$1,7709 \cdot 10^{-8}$	$2,6125 \cdot 10^{-9}$

Çizelge 3.5:  $M'' - \log \omega$  için, Denklem (2.12d)'ye göre elde edilen  $\omega_{\max}$  değerleri.

	$23^{\circ}\text{C}$	$42^{\circ}\text{C}$	$60^{\circ}\text{C}$	$80^{\circ}\text{C}$	$100^{\circ}\text{C}$
$\omega_{\max}$	971873,15	269613,99	9262746,99	13897409,06	222999667,81
$\log(\omega_{\max})$	5,9876	6,4307	6,9667	7,1429	8,3502

Bu duruma uygun olan Arrhenius eğrisi Şekil 3.12'deki gibi oluşmaktadır.



Şekil 3.12:  $M'' - \log \omega$  için yapılan fitte edilen maksimum durulma frekansının sıcaklığın tersine çizildiği Arrhenius grafiği.

$M' - M''$  fitinden bulunan aktivasyon enerjisine benzer olarak,  $M'' - \log \omega$  fitinin aktivasyon enerjisini Şekil 3.12'nin eğimi yardımıyla da bulabiliriz. Bu grafikteki doğrunun eğimi  $-3094^{\circ}\text{K}$  olarak bulunmuştur. Bu eğim değeri denklem (3.2)'de yerine yazılırsa; aktivasyon enerjisi,

$$E_A = 0,2669 \text{ eV}$$

şeklinde olur ve buna bağlı olarak da  $V_\infty = 16,30 \text{ s}^{-1}$  bulunur. Kelvin ölçekli herhangi bir sıcaklığındaki maksimum durulma zamanı (3.3) ifadesine benzer olarak:

$$\log \omega_{\max} = 16,30 - 3094 \left( \frac{1}{T} \right)$$

ifadesi yazılabilir.

Göründüğü gibi,  $M' - M''$  için yapılan fitte edilen aktivasyon enerjisi,  $M'' - \log \omega$  için yapılan fitte edilen aktivasyon enerjisinden çok daha düşük bulunmuştur. Literatürle karşılaştırıldığında, ikinci durum için bulunan aktivasyon enerjisi daha makul bir büyüklükte olmaktadır.

**Çizelge 3.5:** Ca-Montmorillonit kili için, literatürdeki yazarların bulduğu aktivasyon enerjilerinin eV ve kJ/mol birimlerindeki karşılaştırması.

Kaynak	eV	kJ/mol
(Bialkowski, 2003)	0,2225	21,45
(Hou ve ark., 2000)	0,2209	21,30
(Giannelis ve ark., 1999)	0,1971	19,00
Bu tez çalışmasında	0,2669	25,19

Ancak, Çizelge 3.4'ten de görülebileceği gibi dört sıcaklık değeri için  $\gamma$  sabiti 1'den büyük çıkmaktadır. Denklem (2.15)'te verilen geçirgenlik ifadesindeki bu parametre 0 ile 1 arasında tanımlanmıştır. Bu yüzden çizelgede sunulan bu parametre değerleri kabul edilemez bir durum ortaya koymaktadır.

#### **4. TARTIŞMA**

Geçirgenlik modu formalizminin, durulma süreçlerinin incelenmesinde yetersiz kaldığı ve bu nedenle elektrik modülü formalizminin kullanılması gereği sonucuna varılmıştır.

Yönelimli kutuplanma sürecinde, kutuplanma türünün, kuvvet yasasına bağlı bir iletkenlik teriminin ilave edildiği Havriliak-Negami türüne çok iyi bir biçimde uyduğu görülmektedir. Ancak, üst sıcaklık bölgesinde firının kararlı olmaması ve analizör proplarının sıcaklıkla deform olması deney hatalarını oldukça artırmakta ve sonuç değerleri etkilemektedir.

#### **5. SONUÇ VE ÖNERİLER**

Numunemizin sıcaklığa bağlı elektriksel ve dielektrik özelliklerinin tam olarak saptanabilmesi için, kararlılığı iyi olan bir fırın ve ölçüm alınan frekans bölgesinde empedansı düşük, sıcaklığa dayanıklı koaksiyel kablolar kullanılmalıdır. Ayrıca düşük frekanslarda daha doğru ölçümler yapabilen ve GHz mertebesindeki durulma süreçlerinin (elektronik ve atomik kutuplanma) de incelenmesini sağlayan Network Analizörü ile çalışılması daha uygun olacaktır.

## KAYNAKLAR

- Bialkowski, S.E., 2003, Relaxation Time Spectrum Analysis of Calcium-Montmorillonite Impedance Data, <http://www.chem.usu.edu/~sbialkow/Analysis/Analysis.html>
- Bona, N., Ortenzi, A. and Capaccioli, S., 2001, Advances in Understanding The Relationship Between Rock Wettability And High-Frequency Dielectric Response, Journal of Petroleum Science And Engineering, Vol:960
- Carrier, M. and Soga, K., 1999, A Four Terminal Measurement System for Measuring The Dielectric Properties of Clay at Low Frequencies, Engineering Geology, vol.53, p.115-123
- Cole, K.S. and Cole, R.H., 1941, Journal of Chemical Physics, 9, p.341
- Daniel, V., 1967, Dielectric Relaxation, Academic Press Inc., London, p.95-105
- Davidson, D.W. and Cole, R.H., 1950, Journal of Chemical Physics, 18, p.1417
- Debye, P., 1929, Polar Molecules, Dover Publications, Inc., Reinhold Publishing Corporation, Germany
- Giannelis, E.P., Krishnamoorti, R. and Manias, E., 1999, Polymer-Silicate Nanocomposites: Model Systems for Confined Polymers and Polymer Brushes, Advances in Polymer Science, Vol:138, p.108-147
- Havriliak, S. and Negami, S., 1966, Journal of Polymer Science, C 14, p.99
- Hedvig, P., 1977, Dielectric Spectroscopy of Polymers, John Wiley&Sons Ltd., New York, p.282-287
- Hewlett Packard, Dielectric Constant Measurement of Solid Materials, Application Note 380-1
- Hewlett Packard, Basics of Measuring the Dielectric Properties of Materials, Application Note 1217-1
- Hou, X., Kirkpatrick, R.J., Yu, P., Moore, D. and Kim, Y., 2000, NMR Study of Nitrate Ion Structure and Dynamics in Hydrotalcite-like Compounds, The American Mineralogist, Vol:85, p.173-180

- Howell, B. F. Jr. and Licastro, P. H., 1961, Dielectric Behavior Of Rocks And Minerals, *The American Mineralogist*, Vol:46, sy:269-287
- Iben, I.E.T., Edelstein, W. A. And Roemer, P. B., 1966, Dielectric Properties of Soil: Application to Radio Frequency Ground Heating, *Electronic System Laboratory*
- Kaya, A. , Fang, H.Y., 1997, Identification of Contaminated Soils by Dielectric Constant and Electrical Conductivity, *Journal of Environmental Engineering*, p.169-177
- Keymeulen, J.V. and Dekeyser, W, 1957, Dielectric Loss Of and Defects in Clay Minerals, *Journal of Chemical Physics*, Vol:77, No:1,172-175
- Küçükçelebi, H., 1997, Katman Yapılı Kil Minerallerinde Sorpsiyonun Yapıldığı Etkisinin Kimyasal ve Fiziksel Yöntemlerle İncelenmesi, Doktora Tezi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Konya
- Küçükçelebi, H., 1988, Kil Mineralleri ve İlgili Filosilikatların Kristal Yapıları, Yüksek Lisans Semineri, Fen Bilimleri Enstitüsü, Konya
- McCrum, N.G., Read, B.E. and Williams, G., 1967, *Anelastic and Dielectric Effects in Polymeric Solids*, John Wiley, London, p.102-121
- Psarras, G.C., Manolakaki, E. And Tsangaris, G.M., 2002electrical Relaxation in Polymeric Particulate Composites Of Epoxy Resin And Metal Particles, *Composites: Part A* 33, 375-384
- Purcell, E.M., 1994, Elektrik ve Magnetizma, (Çev. Prof. Dr. T.N. Durlu, Prof. Dr. Y.Elerman), *Bilim Yayınları*, Ankara
- Ranko, R. And Hermann, W, 1998, The Dielectric Modulus: Relaxation Versus Retardation, *Solid States Ionics*, Vol:105, 167-173
- Tareev, B., 1975, *Physics of Dielectric Materials*, Mir Publishers, Moscow
- Tsangaris, G. M., Psarras, G. C. and Kouloumbi, N. 1998, Electric Modulus and Interfacial Polarization in Composite Polymeric Systems, *Journal of Materials Science*, vol.33, p.2027-2037

## EK-1

Geçirgenlik modunda, Havriliak-Negami bağıntısına ilave edilen kuvvet yasalı iletkenlik ile tanımlanan denklem (2.15)'in elektrik modülü gösterimi türetilmiş ve gerekli olan sadeleştirmeler adım adım gösterilmiştir. Bu türetme ve sadeleştirme işlemleri Maple-7 matematik programı ile gerçekleştirilmiştir. Programın çalışmasında şu notasyon dönüşümleri yapılmış diğer notasyonlara sadık kalınmıştır:

$$\begin{array}{llll}
 \varepsilon^* \rightarrow e & \tau \rightarrow T & i \rightarrow I & M_\infty \rightarrow M_{so} \\
 \varepsilon_s \rightarrow es & \sigma \rightarrow S & \omega \rightarrow w & M' \rightarrow M_1 \\
 \varepsilon_\infty \rightarrow eso & \alpha \rightarrow a & M^* \rightarrow M & M'' \rightarrow M_2 \\
 \varepsilon_0 \rightarrow eo & \gamma \rightarrow g & M_s \rightarrow M_s & \phi \rightarrow F
 \end{array}$$

Denklem (2.15), bu notasyona göre şöyle yazılabilir,

$$e := eso + \frac{es - eso}{(1 + (IwT)^{(1-a)})^g} - \frac{S(Iw)^{(n-1)}}{eo} \quad (\text{Ek-1.1})$$

Burada  $eso$  ve  $es$  terimleri şu şekildedir:

$$eso := \frac{1}{M_{so}}$$

$$es := \frac{1}{M_s}$$

Elektrik modülü geçirgenliğin tersi olduğuna göre, (Ek-1.1)'in tersi alınırsa şu bağıntı elde edilir:

$$M := \frac{1}{\frac{1}{Ms} + \frac{1}{Mso} - \frac{S(Iw)^{(n-1)}}{(1+(IwT)^{(1-a)})^g} - \frac{eo}{eo}}$$

(Ek-1.2)

Bu ifade sadeleştirilirse, aşağıdaki bağıntıya ulaşılır;

$$M := Mso Ms (1+IwT(IwT)^{(-a)})^g eo w / (Ms (1+IwT(IwT)^{(-a)})^g eo w + eo Mso w - eo Ms w + IS(Iw)^n Mso Ms (1+IwT(IwT)^{(-a)})^g)$$

(Ek-1.3)

Denklem (Ek-1.3) ile gösterilen ifade kompleks elektrik modülüdür. Bu ifade, önce aşağıdaki gibi reel kısmına ayrılmıştır;

$$MI := \left( \frac{1}{Mso} + \left( \frac{1}{Ms} - \frac{1}{Mso} \right) e^{1/2 g \ln \left( \left( 1 + e^{((1/2 - 1/2 a) \ln(w^{-2} T^{-2}))} \sin(1/2 \pi a) \right)^2 + \left( e^{((1/2 - 1/2 a) \ln(w^{-2} T^{-2}))} \right)^2 \cos(1/2 \pi a)^2 \right)} \right.$$

$$\left. \cos \left( g \arctan \left( e^{((1/2 - 1/2 a) \ln(w^{-2} T^{-2}))} \cos \left( \frac{1}{2} \pi a \right), 1 + e^{((1/2 - 1/2 a) \ln(w^{-2} T^{-2}))} \sin \left( \frac{1}{2} \pi a \right) } \right) \right)$$

$$\left/ \left( e^{1/2 g \ln \left( \left( 1 + e^{((1/2 - 1/2 a) \ln(w^{-2} T^{-2}))} \sin(1/2 \pi a) \right)^2 + \left( e^{((1/2 - 1/2 a) \ln(w^{-2} T^{-2}))} \right)^2 \cos(1/2 \pi a)^2 \right)} \right)^2 \right.$$

$$\left. \cos \left( g \arctan \left( e^{((1/2 - 1/2 a) \ln(w^{-2} T^{-2}))} \cos \left( \frac{1}{2} \pi a \right), 1 + e^{((1/2 - 1/2 a) \ln(w^{-2} T^{-2}))} \sin \left( \frac{1}{2} \pi a \right) } \right) \right)^2$$

$$+ \left( e^{1/2 g \ln \left( \left( 1 + e^{((1/2 - 1/2 a) \ln(w^{-2} T^{-2}))} \sin(1/2 \pi a) \right)^2 + \left( e^{((1/2 - 1/2 a) \ln(w^{-2} T^{-2}))} \right)^2 \cos(1/2 \pi a)^2 \right)} \right)^2$$

$$\left. \sin \left( g \arctan \left( e^{((1/2 - 1/2 a) \ln(w^{-2} T^{-2}))} \cos \left( \frac{1}{2} \pi a \right), 1 + e^{((1/2 - 1/2 a) \ln(w^{-2} T^{-2}))} \sin \left( \frac{1}{2} \pi a \right) } \right) \right)^2$$

$$\begin{aligned}
& \left. \frac{S e^{((n-1) \ln(w))} \cos\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right)}{eo} \right)^2 + \left( \frac{1}{Mso} + \left( \frac{1}{Ms} - \frac{1}{Mso} \right) \right. \\
& \left. e^{\left( \frac{1}{2} g \ln \left( \left( 1 + e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \sin(1/2\pi a) \right)^2 + \left( e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \right)^2 \cos(1/2\pi a)^2 \right) } \right) \\
& \cos \left( g \arctan \left( e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \cos\left(\frac{1}{2}\pi a\right), 1 + e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) \right) \right) \\
& \left. \left( e^{\left( \frac{1}{2} g \ln \left( \left( 1 + e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \sin(1/2\pi a) \right)^2 + \left( e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \right)^2 \cos(1/2\pi a)^2 \right) } \right)^2 \right. \\
& \cos \left( g \arctan \left( e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \cos\left(\frac{1}{2}\pi a\right), 1 + e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) \right) \right) \\
& \left. \left. + \left( e^{\left( \frac{1}{2} g \ln \left( \left( 1 + e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \sin(1/2\pi a) \right)^2 + \left( e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \right)^2 \cos(1/2\pi a)^2 \right) } \right)^2 \right. \right. \\
& \sin \left( g \arctan \left( e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \cos\left(\frac{1}{2}\pi a\right), 1 + e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) \right) \right) \right)^2 \\
& \left. \left. \left. - \frac{S e^{((n-1) \ln(w))} \cos\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right)}{eo} \right)^2 + \left( - \left( \frac{1}{Ms} - \frac{1}{Mso} \right) \right. \right. \\
& \left. \left. e^{\left( \frac{1}{2} g \ln \left( \left( 1 + e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \sin(1/2\pi a) \right)^2 + \left( e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \right)^2 \cos(1/2\pi a)^2 \right) } \right)^2 \right. \\
& \sin \left( g \arctan \left( e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \cos\left(\frac{1}{2}\pi a\right), 1 + e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) \right) \right) \\
& \left. \left. \left. \left( e^{\left( \frac{1}{2} g \ln \left( \left( 1 + e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \sin(1/2\pi a) \right)^2 + \left( e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \right)^2 \cos(1/2\pi a)^2 \right) } \right)^2 \right. \right. \right. \\
& \cos \left( g \arctan \left( e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \cos\left(\frac{1}{2}\pi a\right), 1 + e^{((1/2 - 1/2)a) \ln(w^2 T^2))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) \right) \right) \right)^2
\end{aligned}$$

$$+ \left( e^{\frac{1}{1/2 g \ln \left( \left( 1 + e^{((1/2 - 1/2) \alpha) \ln(w^{-2} T^{-2}))} \sin(1/2 \pi \alpha) \right)^2 + \left( e^{((1/2 - 1/2) \alpha) \ln(w^{-2} T^{-2}))} \right)^2 \cos(1/2 \pi \alpha)^2}} \right)^2 \\ \sin \left( g \arctan \left( e^{((1/2 - 1/2) \alpha) \ln(w^{-2} T^{-2}))} \cos \left( \frac{1}{2} \pi \alpha \right), 1 + e^{((1/2 - 1/2) \alpha) \ln(w^{-2} T^{-2}))} \sin \left( \frac{1}{2} \pi \alpha \right) \right) \right)^2 \\ - \frac{S e^{((n-1) \ln(w^{-2}))} \sin \left( \frac{1}{2} (n-1) \pi \right)}{eo} \right)^2 \quad (\text{Ek-1.4})$$

Bu ifade çok uzun olduğundan şu şekilde bir sadeleştirmeye gerek görülmüştür:

$$\begin{aligned}
Ml &= - \left( 1 + 2 e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) + e^{(-2(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \right)^{(1/2)g} \left( \right. \\
&\quad \left. - Ms \left( 1 + 2 e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) + e^{(-2(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \right)^{(1/2)g} eo - \cos \right. \\
&\quad \left. g \arctan \left( e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \cos\left(\frac{1}{2}\pi a\right), 1 + e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) \right) \right) eo \\
Mso &+ \cos \left( \right. \\
&\quad \left. g \arctan \left( e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \cos\left(\frac{1}{2}\pi a\right), 1 + e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) \right) \right) eo \\
Ms + S w^{(n-1)} \cos\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) Mso &Ms \\
&\left( 1 + 2 e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) + e^{(-2(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \right)^{(1/2)g} \left. \right) Mso eo Ms \\
&\diagup \left( \right. \\
&\quad \left. -2 \cos \left( \right. \right. \\
&\quad \left. \left. g \arctan \left( e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \cos\left(\frac{1}{2}\pi a\right), 1 + e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) \right) \right) \right) \\
Ms^2 \left( 1 + 2 e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) + e^{(-2(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \right)^{(1/2)g} &eo^2 + 2 \\
\cos \left( \right. \\
&\quad \left. g \arctan \left( e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \cos\left(\frac{1}{2}\pi a\right), 1 + e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) \right) \right)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& Ms \left( 1 + 2 e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) + e^{(-2(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \right)^{(1/2)g} eo^2 Mso \\
& + 2 \cos \left( g \arctan \left( e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \cos\left(\frac{1}{2}\pi a\right), 1 + e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) \right) \right) eo \\
& Ms^2 S w^{(n-1)} \cos\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) Mso \\
& \left( 1 + 2 e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) + e^{(-2(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \right)^{(1/2)g} - 2 \cos \left( g \arctan \left( e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \cos\left(\frac{1}{2}\pi a\right), 1 + e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) \right) \right) eo \\
& Mso^2 S w^{(n-1)} \cos\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) Ms \\
& \left( 1 + 2 e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) + e^{(-2(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \right)^{(1/2)g} + S^2 \\
& (w^{(n-1)})^2 Mso^2 Ms^2 \\
& \left( \left( 1 + 2 e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) + e^{(-2(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \right)^{(1/2)g} \right)^2 + eo^2 Ms^2 \\
& - 2 eo^2 Mso Ms + eo^2 Mso^2 - 2 \sin \left( g \arctan \left( e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \cos\left(\frac{1}{2}\pi a\right), 1 + e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) \right) \right) eo \\
& Ms^2 S w^{(n-1)} \sin\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) Mso \\
& \left( 1 + 2 e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) + e^{(-2(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \right)^{(1/2)g} - 2 Ms^2 \\
& \left( \left( 1 + 2 e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) + e^{(-2(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \right)^{(1/2)g} \right)^2 eo S \\
& w^{(n-1)} \cos\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) Mso + 2 \sin \left( g \arctan \left( e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \cos\left(\frac{1}{2}\pi a\right), 1 + e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) \right) \right) eo \\
& Mso^2 S w^{(n-1)} \sin\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) Ms
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& \left( 1 + 2 e^{-(a-1)(\ln(w) + \ln(T))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) + e^{(-2(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \right)^{(1/2)g} \\
& + M s^2 \left( \left( 1 + 2 e^{-(a-1)(\ln(w) + \ln(T))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) + e^{(-2(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \right)^{(1/2)g} \right)^2 e o^2 \\
& \}
\end{aligned}$$

(Ek-1.5)

Denklem (2.35f)'de tanımlanan  $A$  terimi burada da kullanılarak (Ek-1.5), aşağıdaki gibi daha basit bir forma getirilmiştir;

$$\begin{aligned}
M I &= -A^g \left( -M s A^g e o - \cos \left( \right. \right. \\
&\quad g \arctan \left( e^{-(a-1)(\ln(w) + \ln(T))} \cos\left(\frac{1}{2}\pi a\right), 1 + e^{-(a-1)(\ln(w) + \ln(T))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) \right) \left. \right) e o \\
&\quad M s o + \cos \left( \right. \\
&\quad g \arctan \left( e^{-(a-1)(\ln(w) + \ln(T))} \cos\left(\frac{1}{2}\pi a\right), 1 + e^{-(a-1)(\ln(w) + \ln(T))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) \right) \left. \right) e o \\
&\quad M s + S w^{(n-1)} \cos\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) M s o M s A^g \left. \right) M s o e o M s \quad / \quad \left( -2 \cos \left( \right. \right. \\
&\quad g \arctan \left( e^{-(a-1)(\ln(w) + \ln(T))} \cos\left(\frac{1}{2}\pi a\right), 1 + e^{-(a-1)(\ln(w) + \ln(T))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) \right) \left. \right) \\
&\quad M s^2 A^g e o^2 + 2 \cos \left( \right. \\
&\quad g \arctan \left( e^{-(a-1)(\ln(w) + \ln(T))} \cos\left(\frac{1}{2}\pi a\right), 1 + e^{-(a-1)(\ln(w) + \ln(T))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) \right) \left. \right) \\
&\quad M s A^g e o^2 M s o + 2 \cos \left( \right. \\
&\quad g \arctan \left( e^{-(a-1)(\ln(w) + \ln(T))} \cos\left(\frac{1}{2}\pi a\right), 1 + e^{-(a-1)(\ln(w) + \ln(T))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) \right) \left. \right) e o \\
&\quad M s^2 S w^{(n-1)} \cos\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) M s o A^g - 2 \cos \left( \right. \\
&\quad g \arctan \left( e^{-(a-1)(\ln(w) + \ln(T))} \cos\left(\frac{1}{2}\pi a\right), 1 + e^{-(a-1)(\ln(w) + \ln(T))} \sin\left(\frac{1}{2}\pi a\right) \right) \left. \right) e o \\
&\quad M s o^2 S w^{(n-1)} \cos\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) M s A^g + S^2 (w^{(n-1)})^2 M s o^2 M s^2 (A^g)^2 + e o^2 M s^2 \\
&\quad - 2 e o^2 M s o M s + e o^2 M s o^2 - 2 \sin \left( \right.
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& g \arctan \left( e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \cos \left( \frac{1}{2} \pi a \right), 1 + e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin \left( \frac{1}{2} \pi a \right) \right) eo \\
& Ms^2 S w^{(n-1)} \sin \left( \frac{1}{2} (n-1) \pi \right) Mso A^g \\
& - 2 Ms^2 (A^g)^2 eo S w^{(n-1)} \cos \left( \frac{1}{2} (n-1) \pi \right) Mso + 2 \sin \left( \right. \\
& g \arctan \left( e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \cos \left( \frac{1}{2} \pi a \right), 1 + e^{(-(a-1)(\ln(w) + \ln(T)))} \sin \left( \frac{1}{2} \pi a \right) \right) eo \\
& Mso^2 S w^{(n-1)} \sin \left( \frac{1}{2} (n-1) \pi \right) Ms A^g + Ms^2 (A^g)^2 eo^2 \Big) \quad (\text{Ek-1.6})
\end{aligned}$$

Denklem (2.35g)'deki  $\phi$  terimini kullanırsak,  $M_1$  için daha sade bir ifade elde ederiz:

$$\begin{aligned}
Ml &:= -A^g \left( -Ms A^g eo - \cos(g F) eo Mso + \cos(g F) eo Ms \right. \\
&+ S w^{\sim(n-1)} \cos\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) Mso Ms A^g \Big) Mso eo Ms \Bigg/ \left( -2 \cos(g F) Ms^2 A^g eo^2 \right. \\
&+ 2 \cos(g F) Ms A^g eo^2 Mso + 2 \cos(g F) eo Ms^2 S w^{\sim(n-1)} \cos\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) Mso A^g \\
&- 2 \cos(g F) eo Mso^2 S w^{\sim(n-1)} \cos\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) Ms A^g \\
&+ S^2 (w^{\sim(n-1)})^2 Mso^2 Ms^2 (A^g)^2 + eo^2 Ms^2 - 2 eo^2 Mso Ms + eo^2 Mso^2 \\
&- 2 \sin(g F) eo Ms^2 S w^{\sim(n-1)} \sin\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) Mso A^g \\
&- 2 Ms^2 (A^g)^2 eo S w^{\sim(n-1)} \cos\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) Mso \\
&\left. + 2 \sin(g F) eo Mso^2 S w^{\sim(n-1)} \sin\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) Ms A^g + Ms^2 (A^g)^2 eo^2 \right) \\
&\quad \text{(Ek-1.7)}
\end{aligned}$$

(Ek-1.3) ifadesi sanal kısmına ayrıldığında ise aşağıdaki bağıntıya ulaşılır:

$$\begin{aligned}
M2 &:= -A^g \left( -Ms A^g eo - \cos(g F) eo Mso + \cos(g F) eo Ms \right. \\
&\quad \left. + S w^{(n-1)} \cos\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) Mso Ms A^g \right) Mso eo Ms / \left( -2 \cos(g F) Ms^2 A^g eo^2 \right. \\
&\quad \left. + 2 \cos(g F) Ms A^g eo^2 Mso + 2 \cos(g F) eo Ms^2 S w^{(n-1)} \cos\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) Mso A^g \right. \\
&\quad \left. - 2 \cos(g F) eo Mso^2 S w^{(n-1)} \cos\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) Ms A^g \right. \\
&\quad \left. + S^2 (w^{(n-1)})^2 Mso^2 Ms^2 (A^g)^2 + eo^2 Ms^2 - 2 eo^2 Mso Ms + eo^2 Mso^2 \right. \\
&\quad \left. - 2 Ms^2 (A^g)^2 eo S w^{(n-1)} \cos\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) Mso \right. \\
&\quad \left. + 2 \sin(g F) eo Mso^2 S w^{(n-1)} \sin\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) Ms A^g + Ms^2 (A^g)^2 eo^2 \right)
\end{aligned} \tag{Ek-1.8}$$

Bu ifade daha da sadeleştirilirse, bağıntının payı için;

$$pay := - \left( -Ms A^g eo - \cos(g F) eo Mso + \cos(g F) eo Ms + S w^{(n-1)} \cos\left(\frac{1}{2}(n-1)\pi\right) Mso Ms A^g \right) Mso Ms / eo \quad (\text{Ek-1.9})$$

ifadesi bulunur. Paydası içinse şu ifadeye ulaşılır:

$$\begin{aligned}
terikpayda := & \left( -2 \cdot \cos \left( g \arctan \left( \frac{(w T)^{(1,-1,a)} \cos(1.570796327 a)}{1 + (w T)^{(1,-1,a)} \sin(1.570796327 a)} \right) \right) M s^2 \right. \\
& \left( (\sqrt{1 + 2 \cdot (w T)^{(1,-1,a)} \sin(1.570796327 a)} + (w T)^{(2,-2,a)})^g e o^2 + 2 \cdot \right. \\
& \left. \cos \left( g \arctan \left( \frac{(w T)^{(1,-1,a)} \cos(1.570796327 a)}{1 + (w T)^{(1,-1,a)} \sin(1.570796327 a)} \right) \right) M s \right. \\
& \left( (\sqrt{1 + 2 \cdot (w T)^{(1,-1,a)} \sin(1.570796327 a)} + (w T)^{(2,-2,a)})^g e o^2 M s o + 2 \cdot \right. \\
& \left. \cos \left( g \arctan \left( \frac{(w T)^{(1,-1,a)} \cos(1.570796327 a)}{1 + (w T)^{(1,-1,a)} \sin(1.570796327 a)} \right) \right) e o M s^2 S w^{(n-1)} \right. \\
& \left. \cos(1.570796327 n - 1.570796327) M s o \right)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& (\sqrt{1 + 2 \cdot (w T)^{(1 - 1, a)} \sin(1.570796327 a) + (w T)^{(2 - 2, a)}})^g - 2 \cdot \\
& \cos \left( g \arctan \left( \frac{(w T)^{(1 - 1, a)} \cos(1.570796327 a)}{1 + (w T)^{(1 - 1, a)} \sin(1.570796327 a)} \right) \right) eo M s o^2 S w^{(n-1)} \\
& \cos(1.570796327 n - 1.570796327) M s \\
& (\sqrt{1 + 2 \cdot (w T)^{(1 - 1, a)} \sin(1.570796327 a) + (w T)^{(2 - 2, a)}})^g + S^2 (w^{(n-1)})^2 M s o^2 \\
& M s^2 \left( (\sqrt{1 + 2 \cdot (w T)^{(1 - 1, a)} \sin(1.570796327 a) + (w T)^{(2 - 2, a)}})^g \right)^2 + e o^2 M s^2 \\
& - 2 \cdot e o^2 M s o M s + e o^2 M s o^2 - 2 \cdot \\
& \sin \left( g \arctan \left( \frac{(w T)^{(1 - 1, a)} \cos(1.570796327 a)}{1 + (w T)^{(1 - 1, a)} \sin(1.570796327 a)} \right) \right) e o M s^2 S w^{(n-1)} \\
& \sin(1.570796327 n - 1.570796327) M s o \\
& (\sqrt{1 + 2 \cdot (w T)^{(1 - 1, a)} \sin(1.570796327 a) + (w T)^{(2 - 2, a)}})^g - 2 \cdot M s^2 \\
& \left( (\sqrt{1 + 2 \cdot (w T)^{(1 - 1, a)} \sin(1.570796327 a) + (w T)^{(2 - 2, a)}})^g \right)^2 e o S w^{(n-1)} \\
& \cos(1.570796327 n - 1.570796327) M s o + 2 \cdot \\
& \sin \left( g \arctan \left( \frac{(w T)^{(1 - 1, a)} \cos(1.570796327 a)}{1 + (w T)^{(1 - 1, a)} \sin(1.570796327 a)} \right) \right) e o M s o^2 S w^{(n-1)} \\
& \sin(1.570796327 n - 1.570796327) M s \\
& (\sqrt{1 + 2 \cdot (w T)^{(1 - 1, a)} \sin(1.570796327 a) + (w T)^{(2 - 2, a)}})^g \\
& + M s^2 \left( (\sqrt{1 + 2 \cdot (w T)^{(1 - 1, a)} \sin(1.570796327 a) + (w T)^{(2 - 2, a)}})^g \right)^2 e o^2 \Bigg) / \Bigg( \\
& (\sqrt{1 + 2 \cdot (w T)^{(1 - 1, a)} \sin(1.570796327 a) + (w T)^{(2 - 2, a)}})^g e o^2 \Bigg)
\end{aligned}$$

(Ek-1.10)

## EK-2

HP 4192 A LF Empedans Analizörü'nden elde edilen G admitansının ve B suseptansının Sigma Plot grafik programı için yazılmış dönüşüm formülleri.

Transform (Dönüşüm) menüsü:

$$\text{col}(7)=\text{col}(5)-\text{col}(3)$$

$$\text{col}(8)=\text{col}(6)-\text{col}(4)$$

$$G_{net}=\text{col}(7)*10^{-6}$$

$$B_{net}=\text{col}(8)*10^{-6}$$

$$e_0=8.85*10^{-12}$$

$$A=3.14*(4.5*10^{-3})^2$$

$$d=0.5*10^{-3}$$

$$C_0=e_0*A/d$$

$$w=\text{col}(2)$$

$$\text{col}(10)=B_{net}/(w*C_0)$$

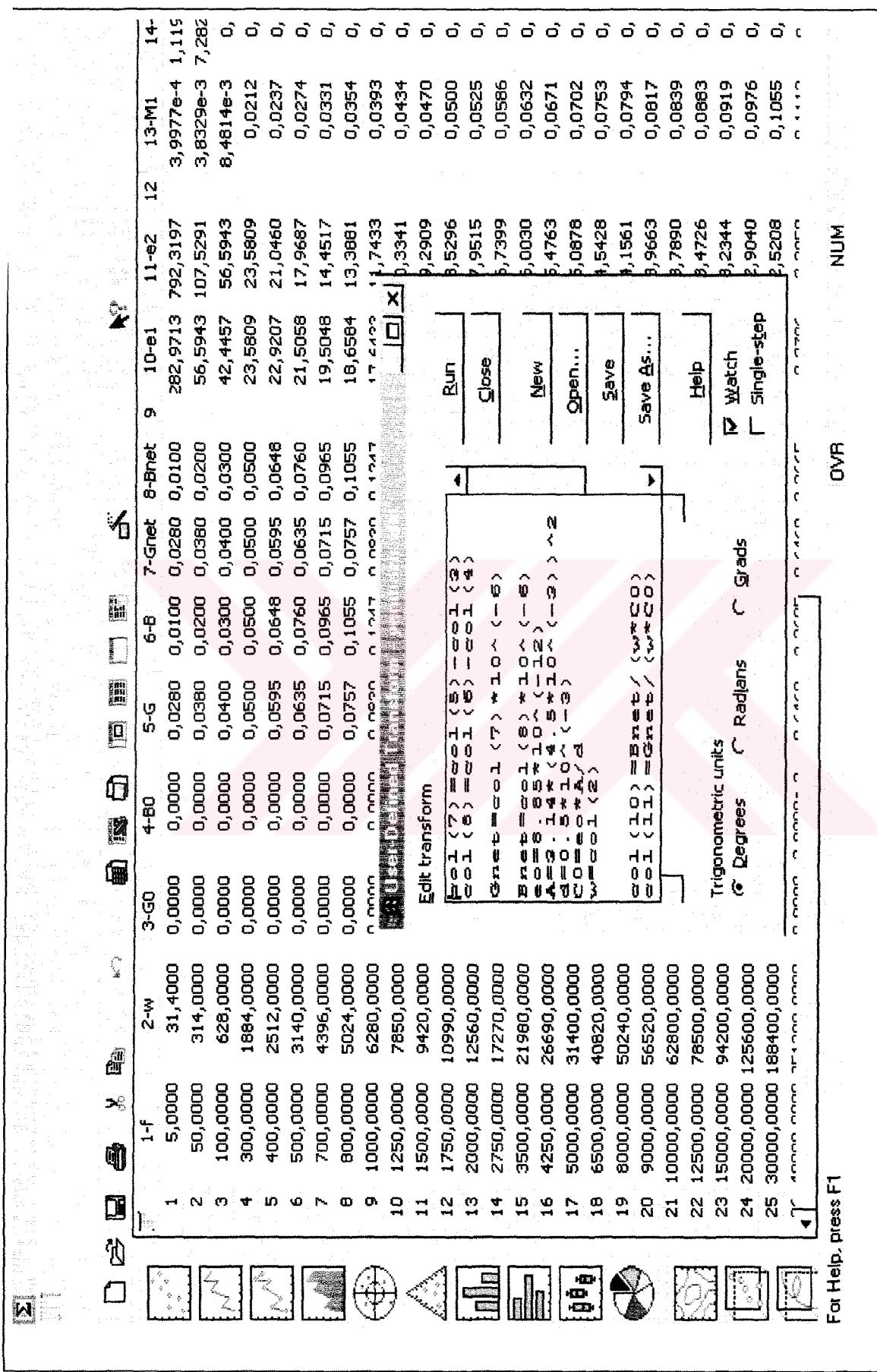
$$\text{col}(11)=G_{net}/(w*C_0)$$

$$e_1=\text{col}(10)$$

$$e_2=\text{col}(11)$$

$$\text{col}(13)=e_1/(e_1^2+e_2^2)$$

$$\text{col}(14)=e_2/(e_1^2+e_2^2)$$



Şekil EK-2.1:  $23^{\circ}\text{C}$  sıcaklığı için alınan değerlerin dönüşüm sonrası görünümü:

## EK-3

Elde edilen deneysel  $M'-M''$  değerlerine, denklem (2.35) ile yapılan fit işleminin Sigma Plot grafik programı için yazılmış dönüşüm formülasyonu:

### Parametreler:

$$M_{\infty} = 0.2419 : (M_{\infty})$$

$$M_s = 0.0956 : (M_s)$$

$$a = 0.7136 : (\alpha)$$

$$g = 0.8085 : (\gamma)$$

$$n = 0.2037 : (n)$$

$$S = -1.80031936e-9 : (\sigma)$$

$$T = 3.5578e-3 : (\tau)$$

### Sabitler:

$$\pi = 180 : (\pi)$$

$$e_0 = 8.85e-12 : (\varepsilon_0)$$

### Değişken:

$$w = \text{col}(2)$$

### Fit Programı:

$$A = ((1 + 2 * (w * T)^{(1-a)} * \sin(\pi * a / 2) + (w * T)^{(2 * (1-a))})^{(1/2)})$$

$$F = (\arctan((w * T)^{(1-a)} * \cos(\pi * a / 2) / (1 + (w * T)^{(1-a)} * \sin(\pi * a / 2)))) : (\phi)$$

$$\begin{aligned} \text{col}(16) = & -A^g * (-M_s * A^g * e_0 * \cos(g * F) * e_0 * M_{\infty} + \cos(g * F) * e_0 * M_s + S * w^{(n-1)} * \cos(1/2 * (n-1) * \pi) * M_{\infty} * M_s * A^g) * M_s * e_0 * M_s / (-2 * \cos(g * F) * M_s^2 * A^g * e_0^2 + 2 * \cos(g * F) * M_s * A^g * e_0 * 2 * M_{\infty} + 2 * \cos(g * F) * e_0 * M_s^2 * S * w^{(n-1)} * \cos(1/2 * (n-1) * \pi) * M_{\infty} * A^g - 2 * \cos(g * F) * e_0 * M_{\infty}^2 * S * w^{(n-1)}) \end{aligned}$$

$1) * \cos(1/2*(n-1)*\text{Pi}) * \text{Ms} * A^g + S^2 * (w^{(n-1)})^2 * \text{Mso}^2 * \text{Ms}^2 * (A^g)^2 + e^o^2 * \text{Ms}^2 - 2 * e^o * \text{Ms} * S * w^{(n-1)} * \sin(1/2*(n-1)*\text{Pi}) * \text{Mso} * A^g - 2 * \text{Ms}^2 * (A^g)^2 * e^o * S * w^{(n-1)} * \cos(1/2*(n-1)*\text{Pi}) * \text{Mso} + 2 * \sin(g^*F) * e^o * \text{Ms}^2 * S * w^{(n-1)} * \sin(1/2*(n-1)*\text{Pi}) * \text{Mso}^2 * S * w^{(n-1)} * \sin(1/2*(n-1)*\text{Pi}) * \text{Ms} * A^g + \text{Ms}^2 * (A^g)^2 * e^o^2)$

$\text{col}(17) = A^g * (\sin(g^*F) * e^o * \text{Mso} - \sin(g^*F) * e^o * \text{Ms} + S * w^{(n-1)} * \sin(1/2*(n-1)*\text{Pi}) * \text{Ms} * \text{Mso} * A^g) * \text{Ms} * e^o * \text{Mso} / (-2 * \text{Ms}^2 * (A^g)^2 * e^o * S * w^{(n-1)} * \cos(1/2*(n-1)*\text{Pi}) * \text{Mso} + S^2 * (w^{(n-1)})^2 * \text{Ms}^2 * \text{Mso}^2 * (A^g)^2 + \text{Ms}^2 * (A^g)^2 * e^o^2 - 2 * \sin(g^*F) * e^o * \text{Ms}^2 * S * w^{(n-1)} * \sin(1/2*(n-1)*\text{Pi}) * \text{Mso} * A^g + 2 * \sin(g^*F) * e^o * \text{Ms}^2 * S * w^{(n-1)} * \sin(1/2*(n-1)*\text{Pi}) * \text{Mso}^2 * S * w^{(n-1)} * \sin(1/2*(n-1)*\text{Pi}) * \text{Ms} * A^g - 2 * \sin(g^*F) * e^o * \text{Ms} * S * w^{(n-1)} * \cos(1/2*(n-1)*\text{Pi}) * \text{Mso} * A^g - 2 * \cos(g^*F) * e^o * \text{Ms}^2 * S * w^{(n-1)} * \cos(1/2*(n-1)*\text{Pi}) * \text{Mso} * A^g - 2 * \cos(g^*F) * e^o * \text{Ms} * S * w^{(n-1)} * \cos(1/2*(n-1)*\text{Pi}) * \text{Ms} * A^g + e^o^2 * \text{Ms}^2 - 2 * e^o * \text{Ms} * \text{Mso}^2 * S * w^{(n-1)} * \cos(1/2*(n-1)*\text{Pi}) * \text{Ms} * A^g + e^o^2 * \text{Ms}^2 - 2 * e^o * \text{Ms} * \text{Mso} * S * w^{(n-1)} * \cos(1/2*(n-1)*\text{Pi}) * \text{Ms} * A^g + e^o^2 * \text{Ms}^2)$