

**T.C.  
BALIKESİR ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ  
KİMYA ANABİLİM DALI**



**SÜPER SERT BOROKSİT BİLEŞİĞİNİN VE LÜMİNESANS  
ÖZELLİK GÖSTEREN BAZI NADİR TOPRAK  
ELEMENTLERİ KATKILI METAL BOROFOSFATLARIN  
SENTEZİ VE KARAKTERİZASYONU**

**DOKTORA TEZİ**

**GÜLŞAH ÇELİK GÜL**

**BALIKESİR, KASIM - 2015**

**T.C.  
BALIKESİR ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ  
KİMYA ANABİLİM DALI**



**SÜPER SERT BOROKSİT BİLEŞİĞİNİN VE LÜMİNESANS  
ÖZELLİK GÖSTEREN BAZI NADİR TOPRAK  
ELEMENTLERİ KATKILI METAL BOROFOSFATLARIN  
SENTEZİ VE KARAKTERİZASYONU**

**DOKTORA TEZİ**

**GÜLŞAH ÇELİK GÜL**

**BALIKESİR, KASIM - 2015**

## KABUL VE ONAY SAYFASI

**Gülşah ÇELİK GÜL** tarafından hazırlanan “SÜPER SERT BOROKSİT BİLEŞİĞİNİN VE LÜMİNESANS ÖZELLİK GÖSTEREN BAZI NADİR TOPRAK ELEMENTLERİ KATKILI METAL BOROFOSFATLARIN SENTEZİ VE KARAKTERİZASYONU” adlı tez çalışmasının savunma sınavı 13.11.2015 tarihinde yapılmış olup aşağıda verilen jüri tarafından oy birliği ile Balıkesir Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Kimya Anabilim Dalı Doktora Tezi olarak kabul edilmiştir.

Jüri Üyeleri

İmza

Danışman  
Doç. Dr. Figen KURTULUŞ



.....

Üye  
Prof. Dr. Yüksel ABALI



.....

Üye  
Prof. Dr. Halil GÜLER



.....

Üye  
Yrd. Doç. Dr. Sevim DEMİRÖZÜ ŞENOL



.....

Üye  
Yrd. Doç. Dr. Çiğdem HOPA



.....

Jüri üyeleri tarafından kabul edilmiş olan bu tez Balıkesir Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulunca onanmıştır.

Fen Bilimleri Enstitüsü Müdürü

Doç. Dr. Necati ÖZDEMİR

.....

Bu tez çalışması Balıkesir Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Birimi tarafından 2013/37 nolu proje ile desteklenmiştir.

## ÖZET

**SÜPER SERT BOROKSİT BİLEŞİĞİNİN VE LÜMINESANS ÖZELLİK  
GÖSTEREN BAZI NADİR TOPRAK ELEMENTLERİ KATKILI METAL  
BOROFOSFATLARIN SENTEZİ VE KARAKTERİZASYONU  
DOKTORA TEZİ  
GÜLŞAH ÇELİK GÜL  
BALIKESİR ÜNİVERSİTESİ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ  
KİMYA ANABİLİM DALI  
(TEZ DANIŞMANI: DOÇ. DR. FİGEN KURTULUŞ)**

**BALIKESİR, KASIM - 2015**

Bu tez çalışmasında, bor içerikli bileşiklerinin sentezi için klasik mikrodalga yöntem ve ilk defa tarafımızdan geliştirilmiş olan yeni mikrodalga yöntem ile borofosfat bileşiklerinin sentezi için geleneksel katı hal yöntemleri kullanılmıştır. Elde edilen ürünler, XRD, Rietveld, POWD, FTIR, SEM/EDX, TG/DTA ve VUV-PL analiz yöntemleriyle incelenmiştir.

Klasik mikrodalga yöntem ile elementel amorf bor, aktif C ve üre bileşiklerinin 1:1:1 mol oranında kullanılmasıyla yapılan deney sonucunda B, C, N ve O elementlerini içerikli bileşik ilk kez bu çalışmada elde edilmiştir. POWD programı ile gerçekleştirilen hesaplamalar sonucunda bileşik, monoklinik sistemde kristallenmiştir ve hücre parametrelerinin  $a=12.9575 \text{ \AA}$ ,  $b=9.3264 \text{ \AA}$ ,  $c=9.6529$ ,  $\beta=113.277$  olduğu ilk kez bu çalışma ile belirlenmiştir. Bileşiğe ait XRD, FTIR, SEM/EDX, TG/DTA analizleri ve POWD hesaplamaları yapılmıştır.

Elementel bor ve glisin başlangıç maddelerinin, 16:1 mol oranında kullanılmasıyla klasik mikrodalga yöntem ile gerçekleştirilen deneyde, hedeflenen  $B_6O$  bileşiği düşük oranda kristallenme ile ilk defa bu çalışmada elde edilmiştir. Bileşiğe ait XRD analizine ilaveten FTIR, SEM/EDX ve TG/DTA analizleri gerçekleştirilmiştir.

Kül fırını yöntemiyle  $Sr_3Y_2B_4O_{12}$  (ICSD:05-4759) ve  $BaZr(BO_3)_2$  (ICSD:09-5527) bileşikleri literatürden farklı olarak  $900 \text{ }^\circ\text{C}$  sıcaklık ve 4 saat süreyle tek fazlı elde edilmiştir.

Bu çalışmada,  $RE_2O_3$  ( $RE= Y, Er, Gd, La, Sm, Nd, Dy$ ),  $MCO_3$  ( $M=Ca, Sr, Ba$ ),  $H_3BO_3$  ve  $NH_4H_2PO_4$  bileşikleri 0.01:1:1:1 mol oranında kullanılarak geleneksel kül fırını yöntemiyle lüminesans özelliğe sahip olan  $Y:CaBPO_5$ ,  $Er:CaBPO_5$ ,  $Gd:CaBPO_5$ ,  $La:CaBPO_5$ ,  $Nd:CaBPO_5$ ,  $Y:SrBPO_5$ ,  $Er:SrBPO_5$ ,  $Gd:SrBPO_5$ ,  $La:SrBPO_5$ ,  $Nd:SrBPO_5$ ,  $Sm:SrBPO_5$ ,  $Dy:SrBPO_5$ ,  $Y:BaBPO_5$ ,  $Gd:BaBPO_5$  ve  $La:BaBPO_5$  bileşikleri ilk kez elde edilmiştir. XRD, Rietveld analizleri, fourier haritaları, FTIR ve SEM analizleri de gerçekleştirilmiştir. Ayrıca lüminesans özellikleri VUV-PL ile incelenmiş olup, gerçek ışımaya fotoğrafları görüntülenmiştir.

**ANAHTAR KELİMELER:** Süper sert malzemeler,  $B_6O$ , mikrodalga sentez, borofosfatlar, nadir toprak metalleri, lüminesans özellik, fosfor malzemeler.

## ABSTRACT

### SYNTHESIS AND CHARACTERIZATION OF SUPERHARD BOROXIDE AND RARE EARTH DOPED BOROPHOSPHATES EXHIBITING LUMINESCENCE PROPERTY

PH.D THESIS

GÜLŞAH ÇELİK GÜL

BALIKESİR UNIVERSITY INSTITUTE OF SCIENCE

CHEMISTRY

(SUPERVISOR: ASSOC. PROF. DR. FİGEN KURTULUŞ)

BALIKESİR, NOVEMBER 2015

In this thesis, classical microwave method and personally designed microwave method were used to obtain boron containing compounds, and conventional solid-state route was used to synthesized borophosphate compounds. The final compounds were investigated by XRD, Rietveld, POWD, FTIR, SEM/EDX, TG/DTA and VUV-PL analysis.

A boron, carbon, nitrogen and oxygen containing compound was synthesized for the first time by classical microwave method using elemental amorphous boron, active carbon and urea with 1:1:1 molar ratio. The compound is crystallized in monoclinic system with unit cell parameters  $a=12.9575 \text{ \AA}$ ,  $b=9.3264 \text{ \AA}$ ,  $c=9.6529$ ,  $\beta=113.277$  which are calculated by POWD indexing program. The XRD, POWD, FTIR, SEM/EDX and TG/DTA analysis were achieved.

The target compound  $B_6O$  was synthesized for the first time with low crystallization by microwave method using boron and glycine with 16:1 molar ratio. The XRD pattern, and also FTIR, SEM/EDX and TG/DTA analysis were obtained.

$Sr_3Y_2B_4O_{12}$  (IDSD:05-4759) and  $BaZr(BO_3)_2$  (ICSD:09-5527) compounds were synthesized as a single phase by solid-state method at  $900 \text{ }^\circ\text{C}$  for 4 hours.

Y:CaBPO<sub>5</sub>, Er:CaBPO<sub>5</sub>, Gd:CaBPO<sub>5</sub>, La:CaBPO<sub>5</sub>, Nd:CaBPO<sub>5</sub>, Y:SrBPO<sub>5</sub>, Er:SrBPO<sub>5</sub>, Gd:SrBPO<sub>5</sub>, La:SrBPO<sub>5</sub>, Nd:SrBPO<sub>5</sub>, Sm:SrBPO<sub>5</sub>, Dy:SrBPO<sub>5</sub>, Y:BaBPO<sub>5</sub>, Gd:BaBPO<sub>5</sub> and La:BaBPO<sub>5</sub> phosphor compounds were synthesized for the first time by solid-state technique using  $RE_2O_3$  ( $RE= Y, Er, Gd, La, Sm, Nd, Dy$ ),  $MCO_3$  ( $M=Ca, Sr, Ba$ ),  $H_3BO_3$  and  $NH_4H_2PO_4$  compounds with 0.01:1:1:1 molar ratio. The XRD, fourier maps, Rietveld calculations, FTIR and SEM analysis were realized. Furthermore, luminescence properties were investigated by VUV-PL and luminescent images were added.

**KEYWORDS:** Superhard materials,  $B_6O$ , microwave synthesis, borophosphates, rare earth metals, luminescence, phosphor materials.

# İÇİNDEKİLER

## Sayfa

<b>ÖZET</b> .....	<b>i</b>
<b>ABSTRACT</b> .....	<b>ii</b>
<b>İÇİNDEKİLER</b> .....	<b>iii</b>
<b>ŞEKİL LİSTESİ</b> .....	<b>viii</b>
<b>TABLO LİSTESİ</b> .....	<b>xii</b>
<b>SEMBOL LİSTESİ</b> .....	<b>xvi</b>
<b>ÖNSÖZ</b> .....	<b>xvii</b>
<b>1. GİRİŞ</b> .....	<b>1</b>
1.1 Sertliğin İfadesi .....	2
1.2 Elmas .....	3
1.3 Elmas Benzeri Yarı İletkenler .....	4
1.4 Hafif Kovalent Seramik Malzemeler .....	6
1.5 Borca Zengin Süper-Sert Malzemeler .....	7
1.6 Kübik Bor Nitrid (cBN) .....	7
1.7 Elmas ve cBN Dışındaki Süper-Sert Malzemeler .....	9
1.7.1 Süper Boroksit (B <sub>6</sub> O).....	9
1.8 Bor Karbür (B <sub>4</sub> C) .....	11
1.9 Magnezyum Borür (MgB <sub>2</sub> ) .....	13
1.10 Yakıt (Fuel) Olarak Kullanılan Üre ve Glisin .....	14
1.10.1 Ürenin Kristal Yapısı .....	14
1.10.2 Glisinin Kristal Yapısı .....	15
1.11 Borofosfatlar .....	16
1.12 Taguchi Yöntemi .....	17
1.13 Nadir Toprak Metalleri ve Lüminesans Özellikleri.....	19
1.14 Nadir Toprak Metalleri ve Toprak Alkali Borofosfatlar .....	20
1.15 Mikrodalga Enerjiyle Sentez .....	21
1.15.1 Mikrodalga ile Isıtma Sistemi .....	21
1.16 Yüksek Sıcaklık Katı-Hal Sentez Yöntemi .....	22
1.17 Çalışmanın Amacı .....	23
<b>2. MATERYAL VE YÖNTEM</b> .....	<b>24</b>
2.1 Kullanılan Kimyasal Maddeler .....	24
2.2 Kullanılan Cihazlar.....	24
2.3 İnert Ortam Mikrodalga Fırın Deneylerinde Kullanılan Sistem.....	25
2.4 Mikrodalga Yöntem .....	25
2.5 Yüksek Sıcaklık Katı-Hal Sentez Prodesürü .....	27
<b>3. BULGULAR VE TARTIŞMA</b> .....	<b>28</b>
3.1 B/Aktif C Sisteminde Süre Etkisinin İncelenmesi İçin Gerçekleştirilen Deneyler .....	28
3.2 B/Aktif C Sisteminde Süre Etkisinin İncelenmesi İçin Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları .....	28
3.3 B/Aktif C Sisteminde Güç Etkisinin İncelenmesi İçin Gerçekleştirilen Deneyler .....	29

3.4	B/Aktif C Sisteminde Güç Etkisinin İncelenmesi İçin Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları .....	29
3.5	B/Aktif C Sisteminde Mol Oranı Etkisinin İncelenmesi İçin Gerçekleştirilen Deneyler .....	30
3.6	B/Aktif C Sisteminde Mol Oranı Etkisinin İncelenmesi İçin Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları .....	31
3.7	B/B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler .....	34
3.8	B/B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	34
3.9	B/H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler .....	36
3.10	B/H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	36
3.11	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler .....	37
3.12	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları .....	37
3.13	% 6' lık H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> İçerisinde B/B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler .....	39
3.14	% 6' lık H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> İçerisinde B/B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları .....	39
3.15	% 6' lık H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> İçerisinde B/H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler .....	41
3.16	% 6' lık H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> İçerisinde B/H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları .....	41
3.17	% 6' lık H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> İçerisinde B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler .....	42
3.18	% 6' lık H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> İçerisinde B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları .....	42
3.19	Etanol İçerisinde B/B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler .....	43
3.20	Etanol İçerisinde B/B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	43
3.21	Etanol İçerisinde B/H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler .....	44
3.22	Etanol İçerisinde B/H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	45
3.23	Etanol İçerisinde B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler .....	45
3.24	Etanol İçerisinde B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları .....	46
3.25	Çözücü Etkisinin Karşılaştırılması .....	46
3.26	B/Aktif C/B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler .....	48
3.27	B/Aktif C/B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları ..	48
3.28	B/Aktif C/Üre Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler .....	50
3.29	B/Aktif C/Üre Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	50
3.30	B/Aktif C/Glisin Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler .....	57
3.31	B/Aktif C/Glisin Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları ..	57
3.32	B/B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Üre Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler .....	59
3.33	B/B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Üre Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	59
3.34	B/Üre Sisteminde Gerçekleştirilen Deney .....	61
3.35	B/Üre Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyin Sonucu .....	61
3.36	B/Üre (Kütlece Yüzde) Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler.....	62
3.37	B/Üre (Kütlece Yüzde) Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	62
3.38	B/Glisin Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler.....	64
3.39	B/Glisin Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları .....	64



3.40	B/Glisin (Kütlece Yüzde) Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler .....	68
3.41	B/Glisin (Kütlece Yüzde) Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	68
3.42	B/Glisin (Kütlece Yüzde 22-38 Glisin) Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler .....	70
3.43	B/Glisin (Kütlece Yüzde 22-38 Glisin) Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları .....	70
3.44	B/Glisin (Kütlece Yüzde 22-38 Glisin) Sisteminde Azot Atmosferinde Gerçekleştirilen Deneyler .....	71
3.45	B/Glisin (Kütlece Yüzde 22-38 Glisin) Sisteminde Azot Atmosferinde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları .....	72
3.46	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> /C Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler .....	74
3.47	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> /C Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	74
3.48	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> /C Sisteminde Azot Atmosferinde Gerçekleştirilen Deneyler .....	75
3.49	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> /C Sisteminde Azot Atmosferinde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları .....	76
3.50	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /C Sisteminde Azot Atmosferinde Gerçekleştirilen Deneyler ...	76
3.51	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /C Sisteminde Azot Atmosferinde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	77
3.52	Mg/B (Elementel B veya H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> ) ve/veya Aktif Karbon Sisteminde Oksijen veya Azot Atmosferinde Gerçekleştirilen Deneyler .....	77
3.53	Mg, B (Elementel B veya H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> ) ve/veya Aktif Karbon Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları .....	78
3.54	M <sup>2+</sup> (Ba, Sr, Co, Ni)/ Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> /Üre Sisteminde Mikrodalga Yöntem Kullanılarak Gerçekleştirilen Deneyler .....	80
3.55	M <sup>2+</sup> (Ba, Sr, Co, Ni)/ Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> /Üre Sisteminde Mikrodalga Yöntem Kullanılarak Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	80
3.56	M <sup>2+</sup> (Ba, Sr, Co, Ni)/ MoO <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> /Üre Sisteminde Mikrodalga Yöntem Kullanılarak Gerçekleştirilen Deneyler .....	82
3.57	M <sup>2+</sup> (Ba, Sr, Co, Ni)/ MoO <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> /Üre Sisteminde Mikrodalga Yöntem Kullanılarak Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	82
3.58	M <sup>2+</sup> (Ba, Sr, Co, Ni)/ Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler .....	83
3.59	M <sup>2+</sup> (Ba, Sr, Co, Ni)/ Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları .....	83
3.60	M <sup>2+</sup> (Ba, Sr, Co, Ni)/ MoO <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler .....	84
3.61	M <sup>2+</sup> (Ba, Sr, Co, Ni)/ MoO <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları .....	84
3.62	M <sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba)/ZrO <sub>2</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler .....	85
3.63	M <sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba)/ZrO <sub>2</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları .....	86
3.64	Li <sup>+</sup> / M <sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba)/ Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> / H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler .....	87
3.65	Li <sup>+</sup> / M <sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba)/ Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> / H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	87
3.66	M <sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba)/ ZrO <sub>2</sub> / H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> / NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler .....	88

3.67	$M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	88
3.68	$M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler .....	91
3.69	$M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	91
3.70	$M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Süreyle Gerçekleştirilen Deneyler .....	94
3.71	$M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	94
3.72	$M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler .....	97
3.73	$M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	97
3.74	$M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler .....	100
3.75	$M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	100
3.76	$M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler .....	103
3.77	$M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Süreyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	103
3.78	$M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler .....	106
3.79	$M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	106
3.80	$M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler .....	109
3.81	$M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	109
3.82	$M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler .....	112
3.83	$M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	112
3.84	$Zr:M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler .....	115
3.85	$Zr:M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	115
3.86	$RE(Y, Er, Gd, La, Nd):CaCO_3$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler .....	116
3.87	$RE(Y, Er, Gd, La, Nd):CaCO_3$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	116
3.88	$RE(Y, Er, Gd, La, Nd, Sm, Dy):SrCO_3$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler .....	126
3.89	$RE(Y, Er, Gd, La, Nd, Sm, Dy):SrCO_3$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	126
3.90	$RE(Y, Er, Gd, La, Nd, Sm, Dy):BaCO_3/H_3BO_3/NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler .....	137

3.91	<i>RE</i> (Y, Er, Gd, La, Nd, Sm, Dy):BaCO <sub>3</sub> / H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> / NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları.....	137
<b>4.</b>	<b>SONUÇ VE ÖNERİLER .....</b>	<b>145</b>
<b>5.</b>	<b>KAYNAKLAR.....</b>	<b>149</b>
<b>6.</b>	<b>EKLER.....</b>	<b>163</b>

## ŞEKİL LİSTESİ

### Sayfa

Şekil 1.1: Hafif kovalent bileşikler .....	6
Şekil 1.2: Süper boroksit yapısı [30] .....	10
Şekil 1.3: Ürenin kristal yapısı .....	15
Şekil 1.4: Glisinin molekül yapısı .....	15
Şekil 1.5: Fotolüminesans madde için kısmi enerji diyagramı.....	19
Şekil 1.6: Mikrodalga ile ısıtmanın şematik gösterimi [101] .....	22
Şekil 2.1: Cam sistemine ait fotoğraflar .....	26
Şekil 2.2: Cam sistemine ait şematize edilmiş fotoğraflar .....	26
Şekil 3.1: MD1, MD2, MD3, MD4, MD5 ve MD6 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	29
Şekil 3.2: MD7, MD8, MD9, MD10, MD11, MD12 ve MD13 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.....	30
Şekil 3.3: MD13, MD14, MD15, MD16, MD17, MD18, MD19, MD20, MD21, MD22, MD23 ve MD24 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	32
Şekil 3.4: MD18 deneyine ait FTIR spektrumu.....	33
Şekil 3.5: MD25 deneyine ait X-ışınları toz kırınım deseni.....	34
Şekil 3.6: MD26, MD27 ve MD28 deneyleri sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri.....	35
Şekil 3.7: MD26, B ve B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ' e ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	35
Şekil 3.8: MD26 deneyine ait FTIR spektrumu.....	35
Şekil 3.9: MD29, MD30 ve MD31 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.....	37
Şekil 3.10: MD32, MD33 ve MD34 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	38
Şekil 3.11: MD34 deneyine ait FTIR spektrumu.....	38
Şekil 3.12: MD35, MD36 ve MD37 deneyleri sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	40
Şekil 3.13: MD37' ye ait FTIR spektrumu.....	40
Şekil 3.14: MD38, MD39 ve MD40 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	42
Şekil 3.15: MD41, MD42 ve MD43 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	43
Şekil 3.16: MD44, MD45 ve MD46 deneyleri sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	44
Şekil 3.17: MD44' e ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	44
Şekil 3.18: MD47, MD48 ve MD49 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	45
Şekil 3.19: MD50, MD51 ve MD52 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	46
Şekil 3.20: MD26, MD35 ve MD44' e ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	47
Şekil 3.21: MD53, MD54, MD55, MD56, MD57, MD58, MD59, MD60, MD61 ve MD62 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri ..	49
Şekil 3.22: MD63, MD64, MD65, MD66, MD67, MD68, MD69, MD70, MD71 ve MD72 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri ..	52

<b>Şekil 3.23:</b> MD72 deneyine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.....	53
<b>Şekil 3.24:</b> MD72 deneyine ve başlangıç maddelerine ait FTIR spektrumu....	54
<b>Şekil 3.25:</b> MD72 kodlu numuneye ait SEM görüntüsü.....	55
<b>Şekil 3.26:</b> MD72' ye ait EDX analizi sonuçları.....	56
<b>Şekil 3.27:</b> MD72' ye ait TG/DTA analizi sonuçları .....	57
<b>Şekil 3.28:</b> MD73, MD74, MD75, MD76, MD77 ve MD78 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	58
<b>Şekil 3.29:</b> MD79, MD80, MD,81, MD 82, MD83, MD84, MD85, MD86, MD87 ve MD88 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri ..	60
<b>Şekil 3.30:</b> MD89 deneyine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.....	61
<b>Şekil 3.31:</b> MD90, MD91, MD92, MD93, MD94, MD95, MD96, MD97 ve MD98 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.....	63
<b>Şekil 3.32:</b> MD99' a ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	65
<b>Şekil 3.33:</b> MD99' a ait FTIR spektrumu .....	66
<b>Şekil 3.34:</b> Numune MD99' a ait SEM fotoğrafı .....	67
<b>Şekil 3.35:</b> MD99' a ait TG/DTA grafiği .....	67
<b>Şekil 3.36:</b> MD100, MD101, MD102, MD103 ve MD104 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	68
<b>Şekil 3.37:</b> MD105, MD106, MD107, MD108, MD109, MD110, MD111, MD112 ve MD113 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	69
<b>Şekil 3.38:</b> MD114, MD115, MD116, MD117, MD118, MD119, MD120 ve MD121 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	71
<b>Şekil 3.39:</b> MD122, MD123, MD124, MD125, MD126, MD127, MD128, MD129 ve MD130 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	72
<b>Şekil 3.40:</b> MD125, elementel bor ve glisine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	73
<b>Şekil 3.41:</b> MD126, elementel bor ve glisin' e ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	73
<b>Şekil 3.42:</b> MD126' ya ait SEM fotoğrafı .....	74
<b>Şekil 3.43:</b> MD131, MD132, MD133, MD134, MD135, MD136, MD137 ve MD138 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	75
<b>Şekil 3.44:</b> MD139, MD140, MD141, MD142, MD143, MD144 MD145 ve MD146 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	76
<b>Şekil 3.45:</b> MD147, MD148, MD149, MD150, MD151 ve MD152 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.....	77
<b>Şekil 3.46:</b> MD153, MD154, MD155, MD156, MD157, MD158, MD159, MD160, MD161, MD162 ve MD163 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.....	79
<b>Şekil 3.47:</b> MD164, MD165, MD166, MD167, MD168, MD169, MD170, MD171 ve MD172 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	81
<b>Şekil 3.48:</b> MD173, MD174, MD175 ve MD176 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.....	83
<b>Şekil 3.49:</b> KF1, KF2, KF3 ve KF4 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	84
<b>Şekil 3.50:</b> KF5, KF6, KF7 ve KF8 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	85

<b>Şekil 3.51:</b> KF9, KF10, KF11, KF12 ve KF13 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.....	86
<b>Şekil 3.52:</b> KF14, KF15, KF16, KF17 ve KF18 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.....	87
<b>Şekil 3.53:</b> KF19, KF20, KF21, KF22, KF23, KF24, KF25, KF26, KF27, KF28, KF29, KF30, KF31, KF32 ve KF33 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	90
<b>Şekil 3.54:</b> KF34, KF35, KF36, KF37, KF38, KF39, KF40, KF41, KF42, KF43, KF44, KF45, KF46, KF47 ve KF48 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	93
<b>Şekil 3.55:</b> KF49, KF50, KF51, KF52, KF53, KF54, KF55, KF56, KF57, KF58, KF59, KF60, KF61, KF62 ve KF63 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	96
<b>Şekil 3.56:</b> KF64, KF65, KF66, KF67, KF68, KF69, KF70, KF71, KF72, KF73, KF74, KF75, KF76, KF77 ve KF78 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	99
<b>Şekil 3.57:</b> KF79, KF80, KF81, KF82, KF83, KF84, KF85, KF86, KF87, KF88, KF89, KF90, KF91, KF92 ve KF93 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	102
<b>Şekil 3.58:</b> KF94, KF95, KF96, KF97, KF98, KF99, KF100, KF101, KF102, KF103, KF104, KF105, KF106, KF107 ve KF108 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.....	105
<b>Şekil 3.59:</b> KF109, KF110, KF111, KF112, KF113, KF114, KF115, KF116, KF117, KF118, KF119, KF120, KF121, KF122 ve KF123 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.....	108
<b>Şekil 3.60:</b> KF124, KF125, KF126, KF127, KF128, KF129, KF130, KF131, KF132, KF133, KF134, KF135, KF136, KF137 ve KF138 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.....	111
<b>Şekil 3.61:</b> KF139, KF140, KF141, KF142, KF143, KF144, KF145, KF146, KF147, KF148, KF149, KF150, KF151, KF152 ve KF153 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.....	114
<b>Şekil 3.62:</b> KF154, KF155, KF156, KF157 ve KF158 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	116
<b>Şekil 3.63:</b> KF159, KF160, KF161, KF162 ve KF163 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	118
<b>Şekil 3.64:</b> KF159, KF160, KF161, KF162 ve KF163 deneylerine ait Fourier haritaları.....	121
<b>Şekil 3.65:</b> KF159, KF160, KF161, KF162 ve KF163 deneylerine ait FTIR spektrumları .....	122
<b>Şekil 3.66:</b> KF159, KF160, KF161, KF162 ve KF163 deneylerine ait VUV-PL spektrumları .....	122
<b>Şekil 3.67:</b> Y:CaBPO <sub>5</sub> ve CaBPO <sub>5</sub> bileşiklerine ait VUV-PL spektrumları ..	123
<b>Şekil 3.68:</b> KF159, KF160, KF161, KF162 ve KF163 deneylerine ait ışınma görüntüleri .....	124
<b>Şekil 3.69:</b> KF159, KF160, KF161, KF162 ve KF163 deneylerine ait SEM yüzey görüntüleri.....	125
<b>Şekil 3.70:</b> KF164, KF165, KF166, KF167, KF168, KF169 ve KF170 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.....	128
<b>Şekil 3.71:</b> KF164, KF165, KF166, KF167, KF168, KF169 ve KF170 kodlu deneylerine ait Fourier haritaları.....	132

<b>Şekil 3.72:</b> KF164, KF165, KF166, KF167, KF168, KF169 ve KF170 deneylerine ait FTIR spektrumları .....	133
<b>Şekil 3.73:</b> KF164, KF165, KF166, KF167, KF168, KF169 ve KF170 deneylerine ait VUV-PL spektrumları .....	134
<b>Şekil 3.74:</b> Nd:SrBPO <sub>5</sub> ve SrBPO <sub>5</sub> bileşiklerine ait VUV-PL spektrumları ..	135
<b>Şekil 3.75:</b> KF164, KF165, KF166, KF167, KF168, KF169 ve KF170 deneylerine ait ışıma görüntüleri.....	136
<b>Şekil 3.76:</b> KF171, KF172, KF173, KF174, KF175 ve KF176 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri .....	139
<b>Şekil 3.77:</b> KF171, KF173 ve KF174 deneylerine ait Fourier haritaları .....	141
<b>Şekil 3.78:</b> KF171, KF173 ve KF174 deneylerine ait FTIR spektrumları .....	142
<b>Şekil 3.79:</b> KF171, KF173 ve KF174 deneylerine ait VUV-PL spektrumları.....	143
<b>Şekil 3.80:</b> Gd:BaBPO <sub>5</sub> ve BaBPO <sub>5</sub> bileşiklerine ait VUV-PL spektrumları	143
<b>Şekil 3.81:</b> KF171, KF173 ve KF174 deneylerine ait ışıma görüntüleri.....	144

## TABLO LİSTESİ

### Sayfa

<b>Tablo 1.1:</b> Elmas benzeri yarı iletkenlerin özellikleri .....	5
<b>Tablo 1.2:</b> Hafif kovalent elementlerden oluşan sert seramikler .....	7
<b>Tablo 1.3:</b> Hafif kovalent elementlerden oluşabilecek kuramsal olarak varolan bileşikler .....	7
<b>Tablo 1.4:</b> CaBPO <sub>5</sub> , SrBPO <sub>5</sub> ve BaBPO <sub>5</sub> bileşiklerine ait hücre parametreleri	16
<b>Tablo 1.5:</b> CaBPO <sub>5</sub> , SrBPO <sub>5</sub> ve BaBPO <sub>5</sub> bileşiklerine ait kristal yapı ve hücre parametreleri değerleri .....	17
<b>Tablo 1.6:</b> Taguchi yöntemine göre deneysel tasarım.....	18
<b>Tablo 1.7:</b> Toprak alkali borofosfatlara dope edilmiş ve edilmemiş olan nadir toprak metalleri .....	20
<b>Tablo 3.1:</b> B/Aktif C sisteminde süre etkisinin incelenmesi için gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	28
<b>Tablo 3.2:</b> B/Aktif C sisteminde güç etkisinin incelenmesi için gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	29
<b>Tablo 3.3:</b> B/Aktif C sisteminde mol oranı etkisinin incelenmesi için gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	30
<b>Tablo 3.4:</b> MD18 deneyine ait FTIR verileri .....	33
<b>Tablo 3.5:</b> B/B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.....	34
<b>Tablo 3.6:</b> MD26 deneyine ait FTIR spektrumu verileri .....	36
<b>Tablo 3.7:</b> B/H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.....	36
<b>Tablo 3.8:</b> B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	37
<b>Tablo 3.9:</b> MD34 deneyine ait FTIR spektrum verileri .....	38
<b>Tablo 3.10:</b> % 6' lık H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> içerisinde B/B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	39
<b>Tablo 3.11:</b> MD37' ye ait FTIR spektrum verileri.....	40
<b>Tablo 3.12:</b> % 6' lık H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> içerisinde B/H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	41
<b>Tablo 3.13:</b> % 6' lık H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> içerisinde B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	42
<b>Tablo 3.14:</b> Etanol içerisinde B/B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.....	43
<b>Tablo 3.15:</b> Etanol içerisinde B/H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.....	44
<b>Tablo 3.16:</b> Etanol içerisinde B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	45
<b>Tablo 3.17:</b> Çözücü etkisinin karşılaştırıldığı MD26, MD35 ve MD 44 kodlu deneyler .....	46
<b>Tablo 3.18:</b> B/Aktif C/B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları..	48
<b>Tablo 3.19:</b> B/Aktif C/Üre sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları....	50
<b>Tablo 3.20:</b> MD72' nin X-ışını toz kırınım verileri .....	54
<b>Tablo 3.21:</b> MD72' ye ait FTIR verileri .....	55
<b>Tablo 3.22:</b> MD72' ye ait elementlerin kütlece yüzde bileşimi .....	56
<b>Tablo 3.23:</b> B/Aktif C/Glisin sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları	57
<b>Tablo 3.24:</b> B/B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Üre sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.....	59
<b>Tablo 3.25:</b> B/Üre sisteminde gerçekleştirilen deney ve kodu .....	61



<b>Tablo 3.26:</b> B/Üre (kütlece yüzde) sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.....	62
<b>Tablo 3.27:</b> B/Glisin sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	64
<b>Tablo 3.28:</b> MD99' un X-ışını toz kırınım verileri .....	66
<b>Tablo 3.29:</b> MD99' a ait FTIR verileri .....	66
<b>Tablo 3.30:</b> B/Glisin (kütlece yüzde) sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.....	68
<b>Tablo 3.31:</b> B/Glisin (kütlece yüzde 22-38 glisin) sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	70
<b>Tablo 3.32:</b> B/Glisin (kütlece yüzde 22-38 glisin) sisteminde azot atmosferinde gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	71
<b>Tablo 3.33:</b> H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> /C sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	74
<b>Tablo 3.34:</b> H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> /C sisteminde azot atmosferinde gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	75
<b>Tablo 3.35:</b> B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /C sisteminde azot atmosferinde gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	76
<b>Tablo 3.36:</b> Mg/B (elementel B veya H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> ) ve/veya aktif karbon sisteminde oksijen veya azot atmosferinde gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	77
<b>Tablo 3.37:</b> M <sup>2+</sup> (Ba, Sr, Co, Ni)/ Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> üre sisteminde mikrodalga yöntemi kullanılarak gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	80
<b>Tablo 3.38:</b> M <sup>2+</sup> (Ba, Sr, Co, Ni)/ MoO <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> /üre sisteminde mikrodalga yöntemi kullanılarak gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	82
<b>Tablo 3.39:</b> M <sup>2+</sup> (Ba, Sr, Co, Ni)/ Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	83
<b>Tablo 3.40:</b> M <sup>2+</sup> (Ba, Sr, Co, Ni)/ MoO <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	84
<b>Tablo 3.41:</b> M <sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba)/ ZrO <sub>2</sub> / H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	85
<b>Tablo 3.42:</b> Li <sup>+</sup> / M <sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba)/ Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> / H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	87
<b>Tablo 3.43:</b> M <sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / ZrO <sub>2</sub> / H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> / NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	88
<b>Tablo 3.44:</b> M <sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba)/ZrO <sub>2</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> /NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle 900 °C sıcaklık ve 3 saat süreyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler .....	89
<b>Tablo 3.45:</b> M <sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / ZrO <sub>2</sub> / H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> / NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	91
<b>Tablo 3.46:</b> M <sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / ZrO <sub>2</sub> / H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> / NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle 900 °C sıcaklık ve 5 saat süreyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler .....	92
<b>Tablo 3.47:</b> M <sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / ZrO <sub>2</sub> / H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> / NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	94
<b>Tablo 3.48:</b> M <sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / ZrO <sub>2</sub> / H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> / NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle 900 °C sıcaklık ve 7 saat süreyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler .....	95
<b>Tablo 3.49:</b> M <sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / ZrO <sub>2</sub> / H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> / NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	97

<b>Tablo 3.50:</b> $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ sisteminde kül fırını yöntemiyle 950 °C sıcaklık ve 3 saat süreyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler .....	98
<b>Tablo 3.51:</b> $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.....	100
<b>Tablo 3.52:</b> $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ sisteminde kül fırını yöntemiyle 950 °C sıcaklık ve 5 saat süreyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler .....	101
<b>Tablo 3.53:</b> $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.....	103
<b>Tablo 3.54:</b> $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ sisteminde kül fırını yöntemiyle 950 °C sıcaklık ve 7 saat süreyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler .....	104
<b>Tablo 3.55:</b> $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.....	106
<b>Tablo 3.56:</b> $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ sisteminde kül fırını yöntemiyle 1000 °C sıcaklık ve 3 saat süreyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler .....	107
<b>Tablo 3.57:</b> $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.....	109
<b>Tablo 3.58:</b> $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ sisteminde kül fırını yöntemiyle 1000 °C sıcaklık ve 5 saat süreyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler .....	110
<b>Tablo 3.59:</b> $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.....	112
<b>Tablo 3.60:</b> $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ sisteminde kül fırını yöntemiyle 1000 °C sıcaklık ve 7 saat süreyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler .....	113
<b>Tablo 3.61:</b> $Zr:M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	115
<b>Tablo 3.62:</b> $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve ürünler .....	115
<b>Tablo 3.63:</b> $RE(Y, Er, Gd, La, Nd):CaCO_3$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları .....	116
<b>Tablo 3.64:</b> $RE(Y, Er, Gd, La, Nd):CaCO_3$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve ürünler .....	117
<b>Tablo 3.65:</b> KF159-163 deneylerine ait X-ışını toz kırınım verileri .....	119
<b>Tablo 3.66:</b> KF159, KF160, KF161, KF162 ve KF163 kodlu deneylere ait hesaplanan hücre parametre verileri ve saf $CaBPO_5$ ile karşılaştırılması .....	120
<b>Tablo 3.67:</b> $RE(Y, Er, Gd, La, Nd, Sm, Dy):SrCO_3$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve ürünler .....	126

<b>Tablo 3.68:</b> RE(Y, Er, Gd, La, Nd, Sm, Dy):SrCO <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> /NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler.....	127
<b>Tablo 3.69:</b> KF164-170 deneylerine ait X-ışını toz kırınım verileri.....	129
<b>Tablo 3.70:</b> KF164, KF165, KF166, KF167, KF168, KF169 ve KF170 kodlu deneylere ait hesaplanan hücre parametre verileri ve saf SrBPO <sub>5</sub> ile karşılaştırılması.....	131
<b>Tablo 3.71:</b> RE(Y, Er, Gd, La, Nd,Dy):BaCO <sub>3</sub> /H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> /NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.....	137
<b>Tablo 3.72:</b> RE(Y, Er, Gd, La, Nd,Dy):BaCO <sub>3</sub> / H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> / NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve ürünler.....	138
<b>Tablo 3.73:</b> KF171, KF173 ve KF174 deneylerine ait X-ışını toz kırınım verileri .....	140
<b>Tablo 3.74:</b> KF171, KF173 ve KF174 kodlu deneylere ait hesaplanan hücre parametre verileri ve saf BaBPO <sub>5</sub> ile karşılaştırılması.....	141

## SEMBOL LİSTESİ

- XRD** : X-ışınları Toz Kırınımı
- FTIR** : Fourier Geçişli İnfrared Spektroskopisi
- SEM** : Taramalı Elektron Mikroskopu
- EDX** : Enerji Dağılımlı X-ışınları Analizi
- TG/DTA**: Termogravimetrik/Diferansiyel Termal Analiz
- AAS** : Atomik Absorpsiyon Spektrofotometresi
- VUV-PL** : Vakum-Fotoluminesans Spektroskopisi
- ICDD** : International Center for Diffraction Data
- ICSD** : Inorganic Crystal Structure Database
- MD** : Mikrodalga Fırın ile Gerçekleştirilmiş Deneyi
- KF** : Kül Fırını ile Gerçekleştirilmiş Deneyi
- RE** : Nadir Toprak Metali
- B<sub>6</sub>O** : Süper Boroksit
- cBN** : Kübik Bor Nitrür
- B** : Elementel Bor
- C** : Aktif Karbon

## ÖNSÖZ

Doktora tez çalışmalarım esnasında bilgi, öneri ve tecrübelerini benimle paylaşarak, çalışmalarına yön veren çok kıymetli danışmanım Doç. Dr. Figen KURTULUŞ'a,

Deneyimlerinden çok büyük destek aldığım saygıdeğer hocalarım Prof. Dr. Halil GÜLER' e ve Prof. Dr. Yüksel ABALI' ya,

Laboratuvar çalışma ekibimizden Burçin ORHAN SAVRAN' a, Balıkesir Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Kimya Bölümü personeline ve sevgili Mevlüt ALNIAÇIK' a,

Maddi desteklerinden dolayı TÜBİTAK-BİDEB ve 2211 Yurtiçi Doktora Burs Programı' na teşekkürlerimi sunarım.

Bugüne gelmemde büyük emeklerinin yanı sıra maddi ve manevi olarak özverilerde bulunan canım anne-babam Nazmiye-Aziz ÇELİK'e ve çok değerli eşim Metin GÜL' e sevgi ile teşekkür ederim.

## 1. GİRİŞ

Süper sert malzemeler, Knoop skalasına göre mikrosertliği  $4000 \text{ kgmm}^{-2}$  değerini geçen malzemeler olarak tanımlanabilir. Bu tanıma uyan sadece iki tane süper sert malzeme mevcuttur;  $9000 \text{ kgmm}^{-2}$  sertliğe sahip elmas ve  $4800 \text{ kgmm}^{-2}$  civarında bir sertliğe sahip kübik bor nitrür [1]. Süper sert malzemeler; genellikle bor, karbon, azot ve oksijen gibi hafif elementlerin bir araya gelmesiyle oluşurlar [2-6]. Bu hafif elementlerin doğaları gereği sahip oldukları güçlü ve doğrusal kovalent bağlar, çizilmeye karşı olağanüstü bir dirence sahip sıkı, üç boyutlu ağları meydana getirir [7]. Hafif elementler arasında oluşan süper sert malzemeler, temel bilimler kadar günümüz teknolojisi tarafından da ilgi gören çeşitli olağan dışı özellikler sergilemektedirler. Bu özelliklere yüksek sertlik, düşük kütle yoğunluğu, iyi mekanik dayanım, yüksek termal iletkenlik, kimyasal inertlik ve mükemmel aşınma direnci örnek olarak verilebilir. Ayrıca, yarı iletkenlerin de dâhil olduğu bu tür bileşikler, yüksek sıcaklıklarda nötron absorplayıcı malzeme olarak kullanılabilirler [8]. Araştırmacıların çoğu, süper sert malzemeleri; 40 GPa' dan büyük Vickers sertliğine sahip malzemeler olarak tanımlar [7]. Bilinen en sert malzeme olan elmas, çok eski zamanlarda keşfedilmiş olup, ilk olarak doğada bulunmuştur. General Elektrik şirketi çalışanı Tracy Hall tarafından ilk kez 1954 yılında laboratuvar ortamında sentezlenmiştir. Bilinen ikinci sert malzeme kübik bor nitrür ise, sadece yapay olarak elde edilebilir. Yine General Elektrik şirketinin bir çalışanı olan Robert Wentorf tarafından 1959 yılında ilk kez sentezlenmiştir [1].

Süper sert malzemeler, birçok üstün özelliğe sahiptirler. Yüksek sertlikleri ile bilinmelerinin yanı sıra, yüksek sıkışma gücüne, termal iletkenliğe, spektral geçirgenliğe, hücresel iletkenliğe ve ses hızına sahiptirler. Ayrıca, refraktif indeksleri ve kimyasal inertlikleri de oldukça yüksektir. Bu üstün özelliklere, bir de düşük termal genleşme katsayısı ve mekanik sürtünme eşlik etmektedir. Bu eşsiz özelliklerin karışımı, süper sert malzemeleri, endüstriyel olarak oldukça dikkat çekici hale getirmektedir. Bu nedenle, süper sert malzemeler; değerli taş, ısı emici, radyasyon penceresi, ses emici, mekanik çekici, ameliyat bıçağı, kaplama malzemesi ve yarı iletkenler olarak kullanılırlar. Süper sert malzemelerin günümüze kadar olan

endüstriyel uygulamaları, süper aşındırıcılıkları üzerine gerçekleşmekteydi. Bugün dünya genelinde süper aşındırıcıların yıllık tüketimi iki yüz bin ton olup maddi değeri bir milyon dolardır. Ancak, kimyasal buharlaşma-bozunma tekniği ile metastabil filmlerin sentez sürecinin hızlanması sayesinde süper sert malzemelerin başka uygulama alanlarında da kullanılması tasarlanmaktadır. İçinde bulunduğumuz yüzyılın sonunda, süper sert malzemelerin aşındırıcı olmayan uygulamalarının, aşındırıcı olanlardan daha fazla olacağı tahmin edilmektedir [1].

### 1.1 Sertliğin İfadesi

Bir malzemenin sertliği, deformasyona karşı gösterdiği dirençtir. Sertliğin üst limiti, bir malzemenin kristal yapısının esnekliği ile belirlenir. Kristal yapının esnekliğini belirleyen üç faktör mevcuttur: (1) atomların yüksek koordinasyon sayısı (CN), (2) bağların yüksek kovalent karakteri ve (3) yapıdaki atomlar arası kısa mesafe yani küçük atomlar [1].

Yüksek koordinasyon sayısı, atomların fazla sayıda atom tarafından çevrelenmesini sağlar; böylece her atom, daha çok bağ yapar. Bu bağların dayanıklılığı, kovalent olma derecesi ile artar; böylece birim hücredeki her atom yerini sabitleyebilir. Küçük atomik boyut, bağların kısa olmasını; bu durumda, destekleme etkisini artırır. Bu üç faktörün etkilerinin birleşmesi, bağ enerjisinin küçük bir hacimde yoğunlaşmasına neden olur, bu durum ise kristal örgünün deformasyonu için yüksek basınç gerektirir. Bu basınç, malzemenin sertliğinin kesin bir göstergesidir [9].

Sertlik üzerine koordinasyon sayısının etkisi, elmas ve grafitin sertliklerinin tezatlığı sonucu ortaya çıkmıştır. Bu iki yapı, karbonun polimorfları ve kovalent bağlı olmalarına rağmen, koordinasyon sayıları farklıdır. Elmas yapısındaki karbon atomları, dördü koordinasyona (tetrahedral veya  $sp^3$  hibriti) sahiptir. Bu bağlar,  $109^{\circ}47'$  açı ile simetrik olarak yerleşmişlerdir. Bunun sonucu olarak, birim hücre, tüm yönlerden desteklenmektedir. Tam tersine, grafitte bulunan karbon atomları, üçlü koordinasyona (düzlem üçgen veya  $sp^2$ ) sahiptir. Bu atomlar, üç boyutlu bir ağ oluşturmaya yetecek kadar bağa sahip olmadıklarından iki boyutlu tabakalar meydana getirirler. Bu tabakalar, zayıf Van der Waals kuvvetleri ile bir arada

tutulurlar. Bunun bir sonucu olarak da grafit, bilinen en yumuşak malzeme durumuna gelir [1].

Sertlik üzerine bağ kovalentliğinin etkisi, bir örnekle açıklanabilir. Sodyum klorür (kaya tuzu), oldukça iyonik, alüminyum metalik ve gri kalay ( $\alpha$ -fazı) ise tamamen kovalenttir. Hepsisi yaklaşık olarak 2.80 Å civarında bağ uzunluğuna sahiptir. Knoop sertliği, sodyum klorürden ( $30 \text{ kgmm}^{-2}$ ) alüminyuma ( $100 \text{ kgmm}^{-2}$ ), ondan da gri kalaya ( $450 \text{ kgmm}^{-2}$ ) doğru artar. Bu durumda, bu üç yapının içerisinde, atomları başına en az bağ sayısına sahip olmasına rağmen en sert olanı kovalent bağlara sahip olan gri kalaydır (gri kalayda 4, sodyum klorürde 6 ve alüminyumda 12) [1].

Sertlik üzerine atom boyutunun etkisi, 4. grup elementlerinin sertlikleri karşılaştırılarak ifade edilebilir. C, Si ve Ge elementlerinin  $\alpha$  fazları, elmas yapısında kristallenir ve bağları tamamen kovalent karakterlidir. Farklı sertliğe sahip olmaları ise sahip oldukları farklı atomik boyuttan kaynaklanır. Bunun sonucu olarak, atom boyutunun artmasıyla sertlik azalır, yani bu elementler içerisinde en küçük boyuta sahip karbondan meydana gelen elmas en sert malzemedir [1].

Sertlik, enerji yoğunluğunun bir ölçüsüdür. Einstein'ın izafiyet teorisine göre,  $E = mc^2$  denkleminde göre kütle, enerjiye dönüşebilir. Bundan dolayı, kütle yoğunluğu, aynı zamanda enerji yoğunluğu olarak ifade edilebilir. Tüm bu enerji yoğunlukları, yaygın bir basınç birimi olan kilobar (kb) ile ifade edilebilir. 1 kb; 0.1 GPa veya 1000 atmosfer basıncına eşittir [1].

## 1.2 Elmas

Bilinen en sert malzeme olan elmas; kristallerinin kalitesine göre 70 ila 100 GPa değerinde sertliğe sahiptir [6]. Elmas çok yüksek bir sertliğe sahip olmasına rağmen bazı alanlarda kullanımı kısıtlıdır. Elmas; ne oksijen varlığında kararlılığını koruyabilir ne de demir içerikli alaşımların işlenmesi esnasında yapısal bir kararlılık sergiler [8]. Elmasın 1954 yılındaki ilk laboratuvar sentezi, elmasın özelliklerine yakın veya ondan daha iyi özelliklere sahip malzemeleri keşfetmek ve geliştirmek üzere yapılacak olan çalışmaları ateşlemiştir [9].



### 1.3 Elmas Benzeri Yarı İletkenler

Kovalent bağ, bağ türleri arasında en kuvvetli olanıdır. Kovalent bağlar oldukça güçlü olduklarından atomlar arasındaki yer değiştirmeleri mümkün kılmazlar. Bu yüzden, kovalent bağlar, yönlü bağlardır. Kıvrılma veya katlanmadan ziyade kırılmayı tercih ederler. Bu durum, kovalent bağlı bileşiklerin sert ama kırılğan olmasını açıklar [1].

Koordinasyon sayısı doğal olarak oluşan bileşiklerde; metalik bağlarda 12, iyonik bağlarda 8 iken kovalent bağlarda 4' tür. Dört bağ, üç boyutlu yapının oluşabilmesinde bir atom için gerekli olan bağ sayısının alt limitidir. Bunun nedeni, dört bağın bir tetrahedrali yani en basit polihedrali oluşturmasıdır. Tetrahedral koordinasyonlu atomlar, 12 koordinasyonlu atomların, üst üste gelerek sıkı istiflenme yapmasıyla oluşur. Bunun için her bir sıkı istiflenme, diğerinin oluşturduğu boşlukları doldurur. Sıkı istiflenmenin hekzagonal veya kübik olmasına bağlı olarak, kristal yapı sırasıyla ya wurtzit ya da çinko bilend yapıyı benimser. Bu iki alternatif yapı, her atomun birinci koordinasyon küresi için aynıdır, ancak yapıyı farklılandıran ikinci küredir. Tetrahedral yapılar, süper sert malzemelerin temelini oluştururlar. Örneğin; wurtzit yapısındaki C ve BN, sırasıyla hekzagonal elmas ve hekzagonal BN olarak adlandırılırlar ve kısaca elmas (sfalerit) ve kübik BN olarak bilinirler [1].

Eğer bir sfalerit yapısı, tek tür atom içeriyorsa elması oluşturur. Bu yüzden sfalerit yapısı, elmas benzeri olarak da adlandırılır. Elmas benzeri yapılar genel olarak, grup 3, 4 ve 5 elementlerinin oluşturduğu kovalent yarı iletkenlerdir. Bu yarı iletkenler, elmas, kübik BN ve diğer süper sert malzemelerdir. Tablo 1.1' de elmas benzeri yarı iletkenlerin atomlar arası uzaklıkları ( $D$ ), enerji yoğunlukları, hacim modülü ( $B$ ), Knoop mikrosertliği ( $H$ ), bağ derecesi ( $S$ ) ve ortalama birinci iyonlaşma enerjisi ( $I$ ) değerleri verilmiştir. Elmas benzeri bileşiklerde, birim hücredeki tetrahedral birimde bulunan bir atomun uzaklaştırılması için gerekli olan enerji, bağ kuvvetine eşittir. Her atom dört bağ elektronu içerdiği için, tekli bağın kopması için gerekli olan enerji, bağ kuvvetine eşittir [1].

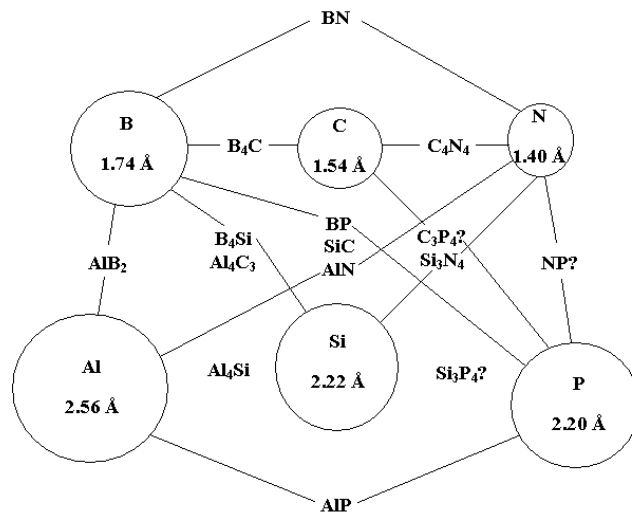
**Tablo 1.1:** Elmas benzeri yarı iletkenlerin özellikleri.

Faz	$D$ (Å)	$B$ (kb)	$H$ (kb)	$S$ (kb)	$I$ (kb)
Grup IV-IV elementlerinden oluşan fazlar					
C	1.54	4430	882	5518	4939
SiC ( $\beta$ -3C)	1.88	2110	248	2256	2340
Si	2.34	980	140	847	1019
Ge	2.44	772	88	602	871
Sn	2.80	530	45	296	536
Grup III-V elementlerinden oluşan fazlar					
BN ( $\beta$ )	1.57	3670	480	3337	4726
BP	1.97	1650	320	1506	1968
AlP	2.36	860	94	547	1004
AlAs	2.45	770	50	458	860
AlSb	2.66	582	40	382	622
GaP	2.36	887	95	580	1005
GaAs	2.45	748	75	473	861
GaSb	2.65	570	44	373	630
InP	2.54	710	54	401	795
InAs	2.61	600	38	375	703
InSb	2.81	474	22	227	521
Grup II-VI elementlerinden oluşan fazlar					
ZnS	2.34	771	17	531	1235
ZnSe	2.45	624	13	386	1043
ZnTe	2.64	510	9	212	801
CdS	2.52	620	6	433	969
CdSe	2.62	530	-	236	835
CdTe	2.81	424	6	150	650
HgSe	2.63	500	-	264	889
HgTe	2.78	423	3	219	725

## 1.4 Hafif Kovalent Seramik Malzemeler

Tablo 1.1’ de verilen elmas benzeri yarıiletkenlerin hacim modülü, atomlar arası mesafenin (D) azalmasıyla, yapıyı oluşturan elementin ortalama periyodik numarası (P) ve bağ kovalentliğinin derecesi (C) ile artar. Bu yüzden yüksek hacim modülü için, düşük P ve D değeri, yüksek C değeri gereklidir. Bunun bir sonucu olarak, bu tür malzemeler periyodik cetvelin üst ve merkezine yakın kısımda bulunan elementlerden oluşmalıdır. Ancak, birinci periyot elementleri, üç boyutlu yapıyı oluşturan kovalent bağların oluşumu için gerekli olan elektrona sahip değildirler. Bu yüzden, yüksek hacim modülüne sahip olan bileşikler, ikinci periyot elementlerinden olan B, C ve N elementlerini içermelidir. Bundan dolayı, elmas ve kübik bor nitrürün süper sert malzeme olması tesadüf değildir [1].

Üçüncü periyot elementlerinden Al, Si ve P’ un, özellikle B, C ve N ile oluşturduğu bileşikler de benzer şekilde serttirler (Şekil 1.1). Bu altı adet hafif kovalent element, elmas benzeri yapıdaki  $\alpha$ -C,  $\beta$ -BN,  $\alpha$ -Si,  $\beta$ -SiC (3C),  $\alpha$ -BP,  $\alpha$ -AlP ve wurtzit yapısındaki  $\alpha$ -SiC (2H) ve  $\alpha$ -AlN yarı iletkenlerini içeren birçok tetrahedral yapı meydana getirir. Bu elementler aynı zamanda,  $\text{Si}_3\text{N}_4$  gibi kısmi tetrahedral bağlanmaya sahip olan yapıları da oluşturabilirler [1]. Şekil 1.1’ de verilen bu hafif kovalent bileşiklerin hepsi sert malzemelerdir. Hafif kovalent elementlerin meydana getirdiği bazı bileşikler Tablo 1.2’ de verilmiştir [1].



Şekil 1.1: Hafif kovalent bileşikler.

**Tablo 1.2:** Hafif kovalent elementlerden oluşan sert seramikler.

Element	Bileşik
B	B, BN, B <sub>4</sub> C, B <sub>10</sub> C, B <sub>13</sub> C <sub>2</sub> , B <sub>6</sub> , Si, B <sub>4</sub> Si, AlB <sub>2</sub> , AlB <sub>12</sub> , AlB <sub>13</sub> , B <sub>12</sub> P <sub>2</sub>
C	C, SiC, Si <sub>3</sub> C, Si <sub>2</sub> C, Si <sub>2</sub> C <sub>3</sub> , Al <sub>4</sub> C <sub>3</sub>
N	AlN, NP, N <sub>5</sub> P <sub>3</sub> , Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>

Sertlikleri ile bilinen bu bileşiklerin dışında bu hafif elementlerin kuramsal olarak oluşturabileceği bileşiklerin bir listesi Tablo 1.3' te verilmiştir [1].

**Tablo 1.3:** Hafif kovalent elementlerden oluşabilecek kuramsal olarak varolan bileşikler.

Bileşik
BCN, BC <sub>2</sub> N, BC <sub>3</sub> N, BC <sub>3</sub> , C <sub>3</sub> Si, BC <sub>2</sub> P, BSi <sub>2</sub> N, AlC <sub>2</sub> N, AlC <sub>2</sub> P, AlSi <sub>2</sub> P, BAlN <sub>2</sub> , BAIP <sub>2</sub> , B <sub>4</sub> C <sub>3</sub> , C <sub>3</sub> P <sub>4</sub> , C <sub>5</sub> N, C <sub>3</sub> N <sub>4</sub>

## 1.5 Borca Zengin Süper-Sert Malzemeler

Borca zengin katılar, süper sert malzeme olmak için iyi birer adaydırlar. Bunlar sahip oldukları kısa atomlar arası bağlar ve güçlü kovalent karakterlerinden kaynaklanan ilgi çekici fiziksel ve kimyasal özelliklere sahiptirler. Ayrıca, benzersiz bir kristal yapı gösteren, ısıya dayanıklı bileşikler ailesini meydana getirirler [12, 13]. Borca zengin fazlar bor karbür ve bor süper oksiti içeren  $\alpha$ -rombohedral B yapısına dayanır. Bu yapıların düşük yoğunluklu, yüksek sertliğe sahip ve kimyasal olarak inert olmaları taşıma malzemesi olarak kullanılmalarını sağlar. Ayrıca, bu bileşikler yüksek sıcaklıkta termoelektrik güç üretici olabilecek termal ve elektronik özelliklere sahiptirler [14].

## 1.6 Kübik Bor Nitrür (cBN)

Elmas ve cBN dışındaki süper sert malzemelerin oluşumu hakkında çeşitli tahminlerde bulunmaktadır. cBN elde edilinceye kadar geçen sürede oluşturulan bileşikler BCN ve BC<sub>2</sub>N yapılarıdır. B<sub>x</sub>C<sub>y</sub>N<sub>z</sub> yapısındaki grafit benzeri fazlar, basınç altında gerçekleştirilen kimyasal reaksiyonlar sonucunda sentezlenebilir [15, 16].

Ancak, grafitin öncü olarak kullanılmasıyla gerçekleşmesi amaçlanan bu yapıların sentezine yönelik çalışmaların büyük çoğunluğu başarısızlıkla sonuçlanmıştır. Ancak bu denemelerden ikisi, elmas ve cBN elde etmek için kullanılan normal sentez yöntemlerinin ötesinde basınç ve sıcaklık ile gerçekleştirilmiştir. Bu çalışmalar da, kübik  $B_xC_yN_z$  sentezi, şok dalgası kullanılarak [17] veya 3000 °C gibi yüksek bir sıcaklık kullanılarak [18] gerçekleştirilmiştir.

Elmas ve cBN, eş yapıdadırlar ve hücre parametreleri arasında sadece % 1,3 oranında bir fark vardır. Bu yüzden bu bileşiklerin yaygın bir katı çözelti oluşturmaları beklenir. Birçok elmas benzeri yarı iletken, AlP ve AlAs veya ZnS ve CdS gibi bazı katı çözeltileri herhangi bir sınırlama olmaksızın oluştururlar [19]. Ancak, literatürde var olan tüm katı çözeltiler, en az bir ortak element içeren iki bileşikten meydana gelmiştir. Böyle bir durumda, kolay bir yer değiştirme ile bir atom diğerinin yerine geçebilir. Aksine, elmas ve cBN' de C-C atom çifti yerine B-N atom çifti geçer. Bu eşzamanlı yer değiştirme yüksek bir aktivasyon enerjisi gerektirdiği için, reaksiyon çok yavaş gerçekleşir. İlaveten, farklı yüklere sahip atomların yer değiştirmesi bölgesel yük denkliliğini değiştirebilir. Bunun bir sonucu olarak da atomik yer değiştirme ölçüsü de yaygın olarak görülmeyebilir. Bu yüzden elmas ve cBN arasındaki çözünürlükler sınırlıdır. Dolayısıyla ara bileşimlerin oluşumu mümkün değildir [1].

Elmas veya cBN, kendi denge koşullarında yüksek basınç altında büyütülebilir. Çünkü faz sınırları pozitifdir, yani sentezleri için ne kadar yüksek sıcaklık kullanılırsa o kadar yüksek basınca ihtiyaç duyulur. Kullanılan basıncı ve sıcaklığı düşürmek için reaksiyonu hızlandıran katalizörler kullanılabilir. Sentez sıcaklığı, genel olarak katalizörün erime noktasının üzerindedir. Erimiş katalizör, başlangıç maddelerini, aşırı doymuş bir çözelti oluşuncaya kadar çözebilir. Sonuç olarak, başlangıç maddelerinden daha az çözünürlüğe sahip elmas veya cBN çökelti meydana getirir [20].

Elmastan sonraki en sert malzeme olan cBN (45-50 GPa), elmasa göre daha kararlı bir yapıda olduğundan çeliği kesmede kullanılabilir. Ancak bu bileşiğin yüksek basınç (> 5GPa) ve yüksek sıcaklıkta (> 1500 °C) sentezleniyor olması, bu malzemeyi endüstride kullanılamayacak kadar pahalı bir hale getirmektedir [21].

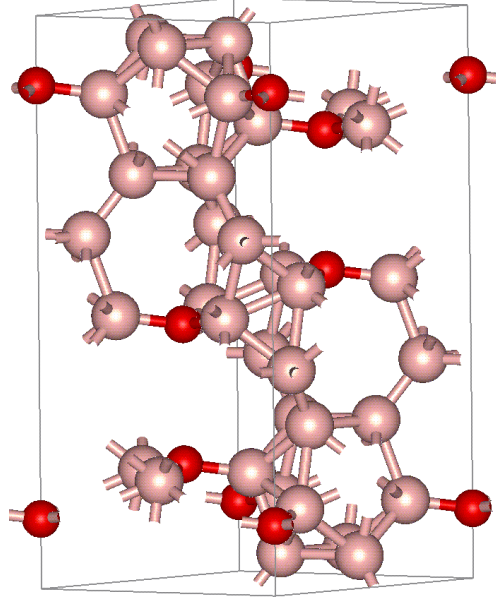
## 1.7 Elmas ve cBN Dışındaki Süper-Sert Malzemeler

Yüksek basınç altında karbon oktahedral koordinasyon meydana getirebiliyorsa, diğer elementler de meydana getirebilir [1].

### 1.7.1 Süper Boroksit ( $B_6O$ )

$B_6O_{1-x}$ , bor atomlarından oluşan ikozahedral grupların bağlanmasıyla meydana gelen diğer bir süper sert malzemedir [21]. Süper boroksit genel olarak  $B_6O$  formülü ile temsil edilse de yaygın olarak non-stokiyometrik ( $B_6O_{0.72}$ - $B_6O_{0.86}$ ) olarak kabul edilir [12, 13, 22-25]. La Place ve Post [23], bir rombohedral birim hücreyi temel alarak  $B_6O$  bileşiğinin X-ışınları toz kırınım desenlerini indekslemiştir. Yapı ilk olarak oksijen noksanlığı olmadığı farz edilerek belirlenmiş, ancak daha sonraki incelemeler oksijen miktarının 0.72' den 0.84' e kadar değişen bir aralıkta olduğunu meydana çıkarmıştır [12, 13, 26-28]. Bu nedenle,  $B_6O$  ile ifade etmekten ziyade  $B_6O_{1-x}$  ile ifade etmek daha doğrudur, fakat stokiyometriyi tartışmaksızın " $B_6O$ " temsili gösterimi kullanılacaktır [29].

$B_6O$  yapısı, bir rombohedral birim hücrenin köşelerinde bulunan sekiz adet ikozahedral  $B_{12}$  biriminden meydana gelir (Şekil 1.2). Kristal yapı, ikozahedral  $B_{12}$  birimlerinin bozulmuş kübik sıkı istiflenme yapmasıyla oluşmuştur. İki oksijen atomu [111] düzlemi boyunca var olan boşluklara yerleşmiştir. İki oksijen arasındaki 0.307 nm' lik uzaklık oksijenlerin doğrudan bağlanmasını engellemiştir [26] .



**Şekil 1.2:** Süper boroksit yapısı [30].

Süper boroksit, 38 GPa aralığında sertliğe sahip bir süper-sert malzeme olarak tanımlanabilir ve elmasla rekabet edebilecek kesicilik özelliklerine sahiptir [31-33]. Bazı çalışmalarda süper boroksitin, bor karbürden daha sert olduğu ifade edilmişken bazılarında ise bunun tam tersi olduğu söylenmiştir [33, 34]. Stokiyometrik tek kristallerinin elde edilmesindeki güçlüklerden dolayı birçok deneysel sonuç birbirine ters düşmektedir [35].

Küçük miktarlarda  $B_6O$  eldesi platin katalizörlüğünde elementel bor' un oksijen atmosferinde 1100-1400 °C sıcaklık ve uygun basınç altında oksidasyonu ile sağlanabilir. Alternatif olarak uygun basınç ve 1000-2000 °C sıcaklık altında aşırı  $B_2O_3$  ortamında toz haldeki elementel borun sinterleştirilmesiyle elde edilebilir. Son yıllarda ise elementel bor' un  $ZnO$ ,  $CuO$ ,  $Bi_2O_3$  ve  $In_2O_3$  gibi çeşitli oksitlerle reaksiyonu ile sentezlenmektedir [36-40].

$B_6O$  sentezi esnasında gerçekleştirilen yüksek basınç uygulamaları; kristallenmeyi, oksijen miktarını ve ürünün boyutunu arttırmaktadır [6, 29, 41].  $B_6O$  sentezine yönelik olarak kullanılan çeşitli yöntemlerde genel olarak bor ve bor oksit toz karışımları kullanılır. Sıcaklık-basınç şartları kritik bir noktaya ulaştığında  $B_6O$  çekirdek oluşumu, örnek içerisinde kendiliğinden başlar. Ondan hemen sonra ya komşu tanecikler birbirleriyle birleşir ya da her bir çekirdek eş zamanlı olarak bir

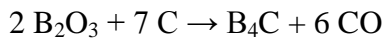
büyüme gösterir. Her iki durumda da B<sub>6</sub>O kristallerinin büyümesi engellenir. B<sub>6</sub>O kristalleri yüksek basınç altında bile olsa bu koşullarla elde edildiğinde boyutu 40 µm'den küçük olmaktadır [29, 41, 42]. Tüm sentezlerde, iyi kristallenmiş bir fazın yanında amorf bir faz da elde edilmiştir [22, 33, 36].

2002 yılında He ve diğ., yüksek basınç ve yüksek sıcaklık altında B<sub>6</sub>O kristallerini büyötmeye yönelik farklı bir yöntem üzerinde çalışmalar yapmıştır. Bu yöntemde bir yığın bor kristali, hBN kapsülü içerisindeki bor oksit ile sarılmıştır. Borun önce bor oksit içerisinde çözündüğünü ve bu karışımın uygun bir sıcaklık ve basınç altında B<sub>6</sub>O-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> eriyiğini meydana getirdiğini keşfetmişlerdir. B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> eriteni içindeki B<sub>6</sub>O bileşimi arttıkça B<sub>6</sub>O-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> çözeltisi aşırı doymuş bir hale gelmiş ve bu da B<sub>6</sub>O'nun çökmesine neden olmuştur. B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> eriteni içindeki B<sub>6</sub>O kristal büyümesi boyunca borun eritende sürekli olarak çözünmesi, B<sub>6</sub>O-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> çözeltisini aşırı doymuş hale getirmiş ve böylece B<sub>6</sub>O kristallerinin büyümesi devam etmiştir. Böylece 100 µm'den büyük boyuttaki B<sub>6</sub>O kristalleri yukarıdaki metot ile elde edilmiştir. Bu boyuttaki tek kristallerde Vickers sertliği ölçümleri gerçekleştirilmiş ve sertlik değeri 40 GPa olarak belirlenmiştir [43].

B<sub>6</sub>O'nun özelliklerini incelemeye yönelik çalışmalar, iyi kristallenmiş saf malzemenin elde edilmiş zorluğundan dolayı sekteye uğramıştır. İlaveten, hafif elementleri içeren bileşiklerin kalitatif analizleri, elektron mikroprob analizi (EMPA) gibi geleneksel teknikler yoluyla gerçekleştirilemez. Bu özellikte iyi tanecikli heterojen örneklerde net bir şekilde görülür [22, 27, 28, 33].

## 1.8 Bor Karbür (B<sub>4</sub>C)

Bor karbür ilk olarak 1899 yılında, Henri Moissan tarafından elektrik ark ocağında karbon içerisindeki bor trioksidin karbon ya da magnezyumla beraber yükseltgenmesiyle sentezlenmiştir [44]. Karbon halinde, reaksiyon B<sub>4</sub>C erime noktasının üzerindeki bir sıcaklıkta, büyük miktarda karbonmonoksidin açığa çıkmasıyla meydana gelir [45].





Bor karbür ( $B_4C$ ); tank zırhlarında, kurşungeçirmez yeleklerde, motor sabotaj tozları gibi birçok endüstri kolunda kullanılabilen süper-sert seramik malzemedir. 30 MPa'lık bir Vickers sertlik değeri ile kübik bor nitrür ve elmastan sonra bilinen en sert malzemelerden biridir [46].

1930 yıllarına kadar kimyasal bileşimi  $B_4C$  olarak tahmin edilen ancak net kimyasal formülü bilinmeyen bor karbür, 19. yy' da metal borür içeren reaksiyonların yan ürünü olarak elde edilmekteydi [47]. Uygulamada, stokiometrik oranı 4:1 olarak kabul edilmesine rağmen, her zaman bir miktar karbon noksanlığının söz konusu olduğu bilinmektedir. X-ışınları kırınımı ile yapısı incelendiğinde; C-B-C zincirleri ve ikozahedral  $B_{12}$  birimlerini içeren son derece karmaşık bir yapıya sahip olduğu belirlenmiştir. Bu sonuç, bileşiği basit olarak sembolize etmemize yarayan  $B_4C$  formülüne biraz zıtlık göstermektedir [48]. İkozahedral  $B_{12}$  yapısından dolayı, bor karbür bileşiğini  $B_4C$  olarak değil,  $B_{12}C_3$  olarak ifade etmek daha doğrudur. Bu durumda karbon noksanlığı, bileşiğin  $B_{12}C_3$  ve  $B_{12}CBC$  kombinasyonları ile ifade edilmesi ile giderilebilir.

Bor karbür, uzun ömürlü radyonüklitler oluşturmadan nötronları emme yeteneği sayesinde nötron bombalarından ve nükleer santrallerde oluşan nötron radyasyonu emici olarak dikkat çekmektedir. Ayrıca bor karbür, nükleer uygulamaları perdeleme, toz haline getirilerek kontrol çubuğu oluşturma ve kapatma peletlerinde de kullanılabilir [49].

Bor karbür, ikozahedral temelli tipik karmaşık borür yapısına sahiptir. İkozahedral  $B_{12}$  birimlerinin oluşturduğu tabakasal yapı, karbonlar ile köprü oluşturarak c doğrultusu boyunca uzanan bir ağ örgüsü meydana getirir. Birim hücre, ikozahedral  $B_{12}$  ve oktahedral  $B_6$  temel birimlerinden meydana gelmektedir. Oktahedral  $B_6$  birimleri, yapısal olarak küçük olmalarından dolayı birbirleriyle bağlanma gerçekleştiremezler. Bunun yerine, ikozahedral  $B_{12}$  birimleri ile bağlanarak c doğrultusundaki bağ kuvvetini arttırmaları [50].

Bor karbür, atlamalı tip iletme sahip elektronik özellikleri ile ideal bir yarı iletken malzemedir. Malzeme tipik olarak p-tipi yarı iletken malzemedir. Enerji bandı boşluğu, bileşimin düzen derecesine bağlı olarak değişir. Band boşluğu

tahminen 2.09 eV deęerinde olup, oklu band bořluęu seviyeleri fotolüminesans spektrumundan görülebilmektedir [51].

### 1.9 Magnezyum Borür (MgB<sub>2</sub>)

Magnezyum borür (MgB<sub>2</sub>) ucuz ve kullanışlı süper-iletken malzeme olduęu kanıtlanmış basit iyonik bir bileřiktir. Hekzagonal sistemde kristallenmekte olup uzay grubu P6/mmm' dir. Mol kütlesi 45.93 g/mol olan magnezyum borür, 830 °C' de erir [52].

Süperiletkenlięi 2001 yılında Akimitsu grubu tarafından keřfedilmiřtir [52]. Magnezyum borür' ün kritik sıcaklıęı 39 K (-234 °C, -389 °F) olduęu için geleneksel süperiletkenler arasında en yüksek deęere sahiptir. İlk olarak 1953' te sentezlenip yapısı doęrulanmasına raęmen [53], süper-iletken özellikleri 2001 kadar keřfedilememiřtir [54]

Genelde geleneksel bir süperiletken olduęuna inanılmasına raęmen oldukça sıra dıřı özellikler sergilemektedir. Elektronik yapısında iki eřit elektron mevcuttur; sigma elektronları, pi elektronlarına göre ok daha fazla süperiletken özellięine sahiptir. Bu durum, tüm elektronların aynı řekilde davranış sergiledięini varsayan fonon aracılı süperiletkenlik teorilerine karřıt bir durumdur [55].

Magnezyum borür, birkaç yolla sentezlenebilir. Bunlardan en basiti bor ve magnezyum tozları arasında gerekleřen yüksek sıcaklık reaksiyonudur [55].

Süper iletkenlik özellikleri ve ucuz maliyetli sentezinden dolayı magnezyum borür eřitli uygulamalarda yer alabilmektedir [56]. Bu tür uygulamalarda, toz haldeki MgB<sub>2</sub>, gümüş metali ile sıkıřtırılmak sureti ile kullanılır.

MgB<sub>2</sub>, her fermi enerji düzeyi farklı deęere sahip olduęu için oklu banda sahip bir süperiletkendir. Magnezyum borürde, borun sigma baęı kuvvetlidir ve geniř s-dalga süperiletkenlik bořluęunu uyarırken; zayıf olan pi baęı da küçük s-dalga bořluęunu uyarır [57].

## 1.10 Yakıt (Fuel) Olarak Kullanılan Üre ve Glisin

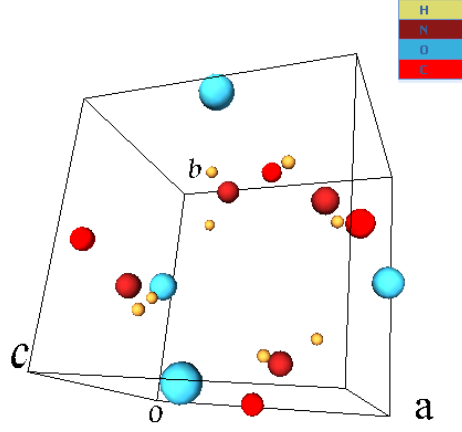
Üre ve glisinin yakıt olarak kullanılmaya uygun olmalarının nedeni, bozunma basamaklarının ekzotermik olmasından dolayıdır. Bozunmaları sırasında ortaya çıkan yüksek ısı sayesinde hedef reaksiyonun gerçekleşmesi tetiklenir. Termal bozunma sonrasında açığa çıkan  $\text{NH}_3$  ve  $\text{CO}_2$  ile birlikte sıcaklığın  $600\text{ }^\circ\text{C}$ ' ye kadar yükseldiği tespit edilmiştir [58-61].

### 1.10.1 Ürenin Kristal Yapısı

Üre molekülü düzlemsel bir yapıya sahiptir (Şekil 1.3). Ancak gaz fazında olduğunda azot atomları, piramidal bir geometriyi benimsediklerinden dolayı düşük enerjili bir yapı meydana gelir. Katı üre yapısında ise, oksijen merkezi, iki tane hidrojen bağı ile azot atomuna bağlanır. Üre yapısında bulunan karbon atomu,  $\text{sp}^2$  hibriti yapmış iken, C-N bağları çift bağ karakterlidir. Ürenin sudaki yüksek çözünürlüğü, su ile arasında meydana gelen yoğun hidrojen bağlarından kaynaklanmaktadır [62].

Üre (Latince Urea Pura), organik bir bileşik olup, formülü  $\text{H}_2\text{N-CO-NH}_2$ ' dir. Karbonik asidin diamidi olan üre, aynı zamanda karbamik asidin de amidi olduğundan karbamid adı ile de bilinir.

Ürenin ilk defa 1773 yılında keşfedildiği bilinir. Ancak şüpheden uzak kesin sentezi 1828' de Wöhler tarafından gerçekleştirilmiştir. Keşfinden itibaren 50' den fazla tepkimede üre, bir ürün olarak elde edilmiştir. Amonyum karbonatın  $150\text{-}200\text{ }^\circ\text{C}$ ' ye kadar ısıtılmasından üre elde edilir. En çok gübre ve hayvan yemi olarak kullanılan üreden, ilaç ve plastik yapımında da faydalanılır. Üre; asit ve tuzlarla bir takım katılma bileşikleri, bazı asitlerle de kondensasyon ürünleri veya üreidleri verir. Naftalinin türevleriyle verdiği bileşikleri terapide kullanılır. Boya üretiminde de kullanılan üre aynı zamanda bitkiler için bir besin kaynağıdır. Nitrik asitle gübre ve patlayıcı madde olarak kullanılan üre nitrat adı verilen bir tuz oluşturur [63-67].

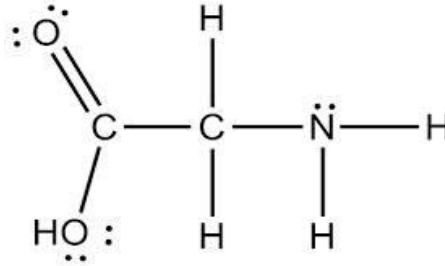


Şekil 1.3: Ürenin kristal yapısı.

### 1.10.2 Glisinin Kristal Yapısı

Glisin (Gly), formülü  $\text{NH}_2\text{CH}_2\text{COOH}$  olan apolar bir aminoasittir (Şekil 1.4). Yapısal olarak proteinlerde bulunan 20 aminoasit arasında en basit olanıdır. Yan zinciri sadece bir hidrojen atomundan ibarettir. Glisindeki  $\alpha$ -karbon atomu da bir hidrojene bağlı olduğu için, glisin optik olarak aktif değildir, diğer bir deyişle optik izomeri bulunmamaktadır.

Yan zincirinin olmamasından dolayı iki polipeptid ana zincirinin (veya aynı polipeptid segmentinin) birbirlerine oldukça yaklaşabilecekleri bölümleri oluştururlar. Glisin en küçük aminoasit olması nedeniyle diğer aminoasitlerin sığamadığı birçok yere sığabilmektedir. Örnek olarak, kollajen heliksinin içinde aminoasitlerden sadece glisin bulunabilmektedir [68, 69].



Şekil 1.4: Glisinin molekül yapısı.

### 1.11 Borofosfatlar

Borofosfat bileşiklerinin yapısal karmaşası, temel bileşenleri olan  $B_2O_3$  ve  $P_2O_5$  gruplarının lokalize bağlanma düzeninden etkilenmektedir [70]. Borat yapısında; bor atomları, trigonal  $sp^2$  bağlarıyla 3 oksijen atomu üzerinden bağlanarak düzlemsel veya piramidal  $BO_3$  yapısını oluşturur veya tetragonal  $sp^3$  bağlarıyla 4 oksijen atomu üzerinden bağlanarak tetrahedral  $BO_4$  grubunu oluşturur [71]. Bunun dışında, boratlar sadece yukarıda bahsedilen iki basit grubu içermezler, aynı zamanda  $B_3O_6$ ,  $B_3O_7$  veya  $(BO_3)_n$  gibi çok daha karmaşık yapıları içerebilirler [72-74]. Fosfat yapısı temel olarak, daha basit olan tetrahedral  $PO_4$  grubu ve non-lineer P-O-P bağıyla bağlanmış iki bozulmuş tetrahedral  $PO_4$  grubunu içeren daha karmaşık  $P_2O_7$  gibi iki gruptan oluşmaktadır [75]. Levesseur ve diğ. [76] borofosfatların temel olarak, yapılarında bulunan oksijenlerin birbiriyle köprü oluşturması sonucu meydana gelen dörtlü koordinasyona sahip B ve P atomlarının silika benzeri bir ağ oluşturmasıyla meydana getirdiği “BPO<sub>7</sub>” grubundan oluştuğunu bildirmiştir. Bu nedenle, borofosfat bileşiklerinin önemli bir kristal yapı çeşitliliğine sahip olması, yeni fonksiyonel malzemelerin keşfini amaçlayan çalışmalar için geniş bir yelpaze sağlamaktadır [77]. Toprak alkali metallere yapıya ilave edilmeleri yeni yapısal birimler oluşturarak özellikle non-lineer optik malzemeler gibi yeni fonksiyonel malzemelerin elde edilmesini amaçlayan çalışmalar için temel oluşturabilirler [56].

Susuz yapıya sahip olan borofosfat bileşiklerinden olan  $MBPO_5$  ( $M = Ca, Sr, Ba$ ) ilk olarak termal yöntemle Bauer [78, 79] tarafından elde edilmiş ve X-ışınları toz kırınım verilerinden yola çıkılarak hekzagonal sistemde kristallendikleri belirlenmiş ve hücre parametreleri tablodaki gibi hesaplanmıştır (Tablo 1.4).

**Tablo 1.4:**  $CaBPO_5$ ,  $SrBPO_5$  ve  $BaBPO_5$  bileşiklerine ait hücre parametreleri.

Bileşik	a (Å)	c (Å)
$CaBPO_5$	6.688	13.234
$SrBPO_5$	6.857	13.657
$BaBPO_5$	7.111	13.977

Bu bileşikler başta geleneksel yüksek sıcaklık katı hal yöntemi olmak üzere, hidrotermal yöntem gibi yenilikçi yöntemler de kullanılarak sentezlenmiştir [80]. Literatürde 400 °C sıcaklıkta çeşitli sürelerle ön kalsinasyon işlemi uygulanıp karışım yeniden homojenize edildikten sonra 800-1150 °C sıcaklık aralıklarında çeşitli sürelerle bileşiklerin sentezleri gerçekleştirilmiştir [70, 77, 80-82]. Gözel [83] 1993 yılında tamamladığı doktora tezinde bileşiklerin sentezini geleneksel katı hal yöntemi ile gerçekleştirerek Rietveld metodu ile çeşitli hücre parametrelerini hesaplamıştır (Tablo 1.5).

**Tablo 1.5:** CaBPO<sub>5</sub>, SrBPO<sub>5</sub> ve BaBPO<sub>5</sub> bileşiklerine ait kristal yapı ve hücre parametreleri değerleri.

Bileşik Formülü	CaBPO <sub>5</sub>	SrBPO <sub>5</sub>	BaBPO <sub>5</sub>
Kristal Sistem	hekzagonal	hekzagonal	hekzagonal
M <sub>A</sub>	161.86	209.40	259.11
a (Å)	6.6799(2)	6.8488(1)	7.1026
c (Å)	6.6121(3)	6.8159(2)	6.9822
V (Å <sup>3</sup> )	255.51	276.88	305.04
d (g/cm <sup>3</sup> )	2.53	4.04	4.23
Z	3	3	3

### 1.12 Taguchi Yöntemi

Taguchi yöntemi, Dr. Genichi Taguchi tarafından 1950' lerde süreç en iyileme tekniği olarak geliştirilmiştir [84]. Taguchi yöntemi farklı parametrelerin, farklı seviyeleri arasından en iyi kombinasyonu saptamak için oldukça kullanışlı bir yöntemdir. Her bir parametrenin, her bir seviyesini içeren tüm kombinasyonlar için oldukça fazla deneysel çalışma yapılması gereken durumlarda Taguchi yönteminde ortogonal dizi tablosu kullanılarak çok daha az sayıda deneysel çalışmayla sonuca ulaşmak mümkündür [85]. Araştırma konumuz ile ilgili olarak Taguchi yöntemine göre oluşturduğumuz dizi tablosu aşağıda verilmiştir (Tablo 1.6). Literatür incelendiğinde Taguchi yöntemiyle gerçekleştirilen birçok çalışmaya rastlanmaktadır. Örneğin; Kumar ve diğerleri [85] Taguchi yöntemini kullanarak

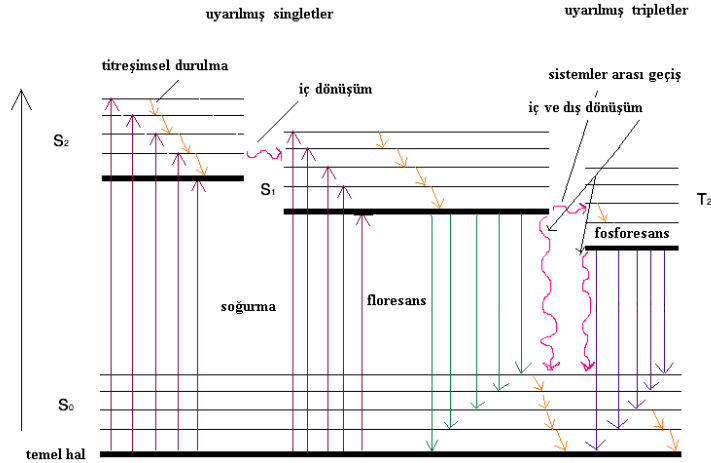
döküm prosesinin parametrelerinin eniyilendiği bir çalışma gerçekleştirmişlerdir. Diğer taraftan Dovey ve Matthews [84] çalışmalarında matkap uçlarının PVD (Physical Vapor Deposition) tekniği kullanılarak TGN (Titanium Nitrit) kaplaması uygulamasında performans istatistiği olarak kayıp fonksiyonunu ele almışlardır. Taguchi yöntemi uygulaması sonucunda, kaplama maliyetlerinde %25 oranında bir artış olmasına rağmen matkap uçlarının paslanmaya karşı olan dayanımlarında %40' lık bir kalite artışı sağlanmıştır.

**Tablo 1.6:** Taguchi yöntemine göre deneysel tasarım.

Deney kodu	Parametreler		
	Sıcaklık	Süre	Mol oranı
KF29	900 °C	3	1:1:1:1
KF30	900 °C	3	1:1:1:2
KF31	900 °C	3	1:1:2:1
...	...	...	...
KF44	900 °C	5	1:1:1:1
KF45	900 °C	5	1:1:1:2
KF46	900 °C	5	1:1:2:1
...	...	...	...
KF59	900 °C	7	1:1:1:1
KF60	900 °C	7	1:1:1:2
KF61	900 °C	7	1:1:2:1
...	...	...	...
KF74	950 °C	3	1:1:1:1
KF75	950 °C	3	1:1:1:2
KF76	950 °C	3	1:1:2:1
...	...	...	...
KF89	950 °C	5	1:1:1:1
KF90	950 °C	5	1:1:1:2
KF91	950 °C	5	1:1:2:1
...	...	...	...
KF104	950 °C	7	1:1:1:1
KF105	950 °C	7	1:1:1:2
KF106	950 °C	7	1:1:2:1
...	...	...	...
KF119	1000 °C	3	1:1:1:1
KF120	1000 °C	3	1:1:1:2
KF121	1000 °C	3	1:1:2:1
...	...	...	...
KF134	1000 °C	5	1:1:1:1
KF135	1000 °C	5	1:1:1:2
KF136	1000 °C	5	1:1:2:1
...	...	...	...
KF149	1000 °C	7	1:1:1:1
KF150	1000 °C	7	1:1:1:2
KF151	1000 °C	7	1:1:2:1
...	...	...	...

### 1.13 Nadir Toprak Metalleri ve Lüminesans Özellikleri

Fotolüminesans kelimesinin anlamı, ışık yayımında uyarıcı kaynak olarak fotonların kullanımı olarak tanımlanabilir. Lüminesans olayını anlayabilmek için, molekül orbitallerinin nasıl oluştuğuna bakmak gerekir. İki atomik orbitalin kombinasyonu ile bağlayıcı ve karşıt bağlayıcı molekül orbitalleri meydana gelir. Bağlayıcı orbitaller daha düşük enerjili olduklarından dolayı, elektronlar tarafından tercih edilirler. Oluşan her bir molekül orbitalin titreşim alt enerji seviyeleri vardır. Şekil 1.5’ te lüminesans özellik gösteren bir molekülün kısmi enerji seviyesi diyagramı verilmiştir [86]. Bazı moleküllerde bu seviyeler arası enerji boşluğu çok fazla olduğundan bu geçişler mümkün olamamaktadır. Ancak yine de bu geçişleri mümkün kılmamızın çeşitli yolları vardır. Bu yollardan bir tanesi anorganik lüminesans malzemeler oluşturmaktır. Bu malzemeler; konak (host) molekül, bu molekülün kristal boşlukları ve bu boşluklara yerleşebilecek olan katkı (dopant) adı verilen elementlerden oluşmaktadır. Konak molekül; uyarılma enerjisi, soğurma gücü, kimyasal çevresi ve sıcaklığı gibi parametreler göz önünde bulundurularak seçilen  $Y_2O_3$ ,  $Y_3Al_5O_{12}$  vb. anorganik yapılardır. Katkı ise, uygulama alanı ve konak moleküle göre seçilen, sabit bir yükseltgenme basamağına sahip olan  $Cr^{3+}$ ,  $Mn^{3+}$ ,  $Eu^{3+}$ ,  $Ce^{3+}$  gibi elementlerdir [83].



Şekil 1.5: Fotolüminesans madde için kısmi enerji diyagramı.

Lantanitler; periyodik cetvelin 6. periyodunda yer alır ve La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb ve Lu elementlerini içeren nadir toprak metallere aittir. Lantanit iyonları; görüntüleme teknolojileri, lazerler ve sintilatörler için



yaygın olarak kullanılan lüminesans malzemelerdir. Lantanit iyonlarının  $4f^N$  konfigürasyonundaki enerji seviyelerini belirlemek için kullanılan parametrik kristal alan modeli ilk olarak 1960' lı yıllarda geliştirilmiştir [87]. Kristal alan modeli, düşük [88] veya yüksek [89] simetriden oluşan çeşitli lantanit sistemlerine başarılı bir şekilde uygulanmıştır.  $4f^N \rightarrow 4f^{N-1}5d$  geçiş spektrumunu analiz etmek için model, iki [90, 91] ve üç değerlikli [92] iyonları kullanarak konfigürasyonu  $4f^{N-1}5d$  ye uzatmıştır [93].

#### 1.14 Nadir Toprak Metalleri ve Toprak Alkali Borofosfatlar

Nadir toprak metali katkılanmış toprak alkali borofosfatlar, hem borofosfatların yapısal çeşitliliğinin çok olmasından hem de nadir toprak metallerinin ilavesi bu bileşiklerin kayda değer ölçüde lüminesans özellik göstermelerinden dolayı son yıllarda sıklıkla çalışılan konular arasına girmiştir. Ayrıca, nadir toprak metali dope edilmiş malzemelerin spektral boşluk şiddeti (SHB), yüksek yoğunluklu hazırlanan cihazlarında optik data deposu olarak potansiyel bir kullanıma sahip olduğu için hatırı sayılır derecede ilgi görmektedir [94]. Toprak alkali borofosfatlara dope edilmiş olan lantanit grubu nadir toprak metalleri Tablo 1.7' de verilmiştir [93-98].

**Tablo 1.7:** Toprak alkali borofosfatlara dope edilmiş ve edilmemiş olan nadir toprak metalleri.

Bileşik	CaBPO <sub>5</sub>	SrBPO <sub>5</sub>	BaBPO <sub>5</sub>
Dope edilmiş nadir toprak metalleri [93-98]	Eu, Yb, Ce, Sm, Tb, Dy	Eu, Yb, Ce	Eu, Yb, Ce, Sm, Tb

## 1.15 Mikrodalga Enerjiyle Sentez

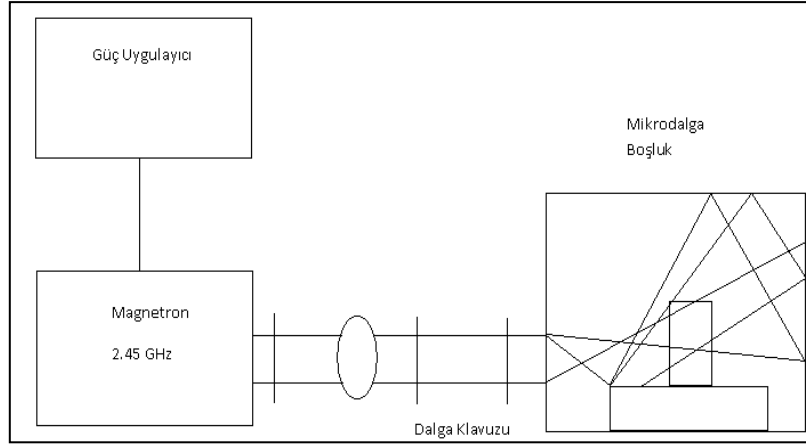
Mikrodalga enerji; 300 MHz ile 300 GHz aralığında frekansa sahip iyonize olmamış elektromanyetik radyasyondur. Metalik bir levha benzeri aynadan yansıyan mikrodalgalar, dielektrik ara yüzeyde kırılır ve parabolik yansıtıcı ile odaklanır. Mikrodalga enerji, belli bir frekansta yüzdelik bir dönüşüm verimiyle elektrik enerjisinden elde edilir. Mikrodalgalar; görünür, ultraviyole gibi elektromanyetik enerji şekillerinden daha yüksek dalga boylarına ve daha düşük enerji miktarına sahiptirler. Mikrodalga enerji; ısıtma, kurutma, liç işlemi, kavurma, ergitme, oksitli minerallerin karbotermik redüksiyonu gibi işlemlerin uygulanmasında kullanılır [99]. Endüstriyel işlemler için mikrodalga ısıtma; işlem zamanının azaltılması ve düşük enerji maliyetinden dolayı tercih edilmektedir [100].

Mikrodalganın başlangıçta gıda, kimya ve kâğıt sanayisine yönelik araştırma ve uygulamaları söz konusuysen daha sonraları cevher hazırlama ve metalurji sanayinde de kullanımına başlanmıştır. Mikrodalga ile ısıtma, numunenin derinliklerine nüfuz edebilen elektromanyetik enerji formunda olduğu için klasik ısıtmadan farklıdır. Klasik ısıtma sistemleri taşınım (konveksiyon), iletim (kondüksiyon) ve yayılma gibi standart ısı transfer mekanizmasından geçerek numuneyi dışarıdan ısıtırken, mikrodalga ile ısıtma seçimli ve matristeki bazı fazların diğerlerinden çok daha hızlı ısınabilmesi avantajına sahiptir. Bu avantajlar ise mikrodalga enerjinin cevher/kömür hazırlama ve ekstraktif metalurji endüstrisinde kullanımını teşvik etmektedir [101, 102].

### 1.15.1 Mikrodalga ile Isıtma Sistemi

Mikrodalga ısıtma sistemi dört temel bileşenden oluşmaktadır. Bunlar [101];

- 1- Güç uygulayıcı,
- 2- Güç kaynağı, mikrodalga üreten (elektrik enerjisini mikrodalgaya dönüştüren) vakum tüpü, magnetron,
- 3- Jeneratörden gelen mikrodalgaları aplikatöre ileten dalga-rehberi,
- 4- Hedef malzemenin ısıtılmasını sağlayan rezonans boşluk (örneğin fırın).



**Şekil 1.6:** Mikrodalga ile ısıtmanın şematik gösterimi [101].

### 1.16 Yüksek Sıcaklık Katı-Hal Sentez Yöntemi

Katıları hazırlamak için en basit ve yaygın yöntem olan yüksek sıcaklık katı hal sentez yönteminde, istenilen ürüne ulaşmak için uçucu olmayan en az iki katı madde birlikte ısıtılır. Bu metot, hem endüstride hem de laboratuarlarda geniş çaplı bir kullanım alanı bulmaktadır. Metal oksitler, sülfürler, nitritler, alüminasilikatlar ve diğer birçok türün sentezinde kullanılabilir. Yaygın kullanımına rağmen yüksek sıcaklık katı-hal sentez yönteminin dezavantajları da mevcuttur. Genellikle 500-2000 °C aralığında yüksek sıcaklık gereksinimi ve bu gereksinim dolayısıyla yüksek enerji tüketimi söz konusudur. Bunun nedeni, ikili iyonik bileşiklerin, iyonun boyutu ve yüküne göre 4' ten 12' ye kadar değişen yüksek koordinasyon numaralarına sahip olması dolayısıyla örgü enerjisini karşılamanın çok zor olmasıdır. Ayrıca böylesi yüksek sıcaklıklarda, istenen bileşik kararsız olabilir veya bozunabilir. Bu tür reaksiyonlar yavaştır ve sıcaklığı arttırma hızı, iyonların difüzyon oranını arttırır. Genellikle katılar, erime noktalarına kadar ısıtılamadıklarından reaksiyonlar katı-halde meydana gelir. Katı-hal reaksiyonları, sadece iki katının ara yüzeyinde gerçekleşir ve hemen yüzey tabakası reaksiyona girer. Reaksiyon, reaktanlar ara yüzeye girdiği sürece devam eder. Sıcaklığı arttırmak, ara yüzdeki reaksiyona olanak sağlar ve difüzyon, oda sıcaklığına göre daha hızlı meydana gelmiş olur. En önemli kural katıyı, erime noktasının iki-üç katı sıcaklığa ısıtarak uygun bir reaksiyon zamanı sağlamaktır. Buna rağmen, difüzyon, sınırlayıcı basamaktır. Bu yüzden, başlangıç maddelerinin küçük tanecik boyutuna getirilmesi önemlidir ve iyi

homojenize edilmiş karışım yüzey temas alanını artırır ve reaktanların nüfuz etmesi gereken mesafeyi kısaltır [103].

Küçük taneciklerin homojen karışımını elde etmek için reaktanları öğütme işlemi oldukça önemlidir. Bir kristalin yüzeyinin bir diğeriyle teması, hidrolik bir pres ile toz karışımı pelet haline getirmekle arttırılabilir. Reaksiyon karışımı, ısıtma süreci boyunca birkaç kez alınarak, yeni yüzeyler oluşturup reaksiyon hızını arttırmak için genellikle tekrar homojenize edilir [103].

### **1.17 Çalışmanın Amacı**

Günümüz kesme, aşındırma ve parlatma teknolojisinde yaygın olarak kullanılan süper-sert malzemeler hayati önem taşımaktadır. Geleneksel olarak kullanılan elmas ve son yıllarda alternatif kullanıma sahip olan cBN, gün geçtikçe ve teknoloji ilerledikçe bazı sıkıntılar doğurmuştur. Bu yüzden hem elmas gibi sert ve aşınma direnci yüksek hem de kübik bor nitrür gibi yüksek termal kararlılığa sahip ve kimyasal olarak inert yeni bir süper sert malzeme elde etmek, deneysel ve teorik araştırmalar açısından büyük bir önem taşımaktadır. Yeni prosedürlerin ve malzemelerin geliştirilmesi kadar üretimdeki verimliliği artırma ve üretimi günlük kullanım seviyesine çekebilmek için minimum maliyete düşürme gereksinimi, aşınmaya dayanıklı seramik malzemelere olan ilgide sürekli bir artışa neden olmuştur. Bu nedenlerin yanı sıra, yeni potansiyel uygulama alanlarının varlığı bu tür malzemelerin geliştirilmesini teşvik etmiştir.

Borofosfatlar, kataliz ve seramik mühendisliğinin yanı sıra iyon ileten malzemeler gibi pek çok teknolojik alanda yaygın kullanıma sahiptirler. Borofosfatlar, yapılarına dope edilen (kristal birim hücre boşluklarına yerleşen) nadir toprak metalleri sayesinde, ilave bir lüminesans özellik göstererek; aynı zamanda fosfor malzeme olarak da kullanılabilirler. Borofosfatların kristal boşluklarına nadir toprak metallerinin dope edilmesiyle, bilim ve teknoloji dünyasında kaybettikleri yerlerini geri kazanmaları ve ileri teknoloji alanında da ivmeli olarak uygulama imkanı bulmaları amaçlanmıştır.

## 2. MATERYAL VE YÖNTEM

### 2.1 Kullanılan Kimyasal Maddeler

B, aktif C, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>, etanol, üre, glisin, şerit Mg, toz Mg, Mg(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>.6H<sub>2</sub>O, Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, Sr(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, Co(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>.6H<sub>2</sub>O, Ni(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>.6H<sub>2</sub>O, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MoO<sub>3</sub>, ZrO<sub>2</sub>, BeO, MgO, CaO, SrCO<sub>3</sub>, BaCO<sub>3</sub>, NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>, LiNO<sub>3</sub>, Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kimyasal maddeleri Merck, Riedel ve Sigma firmalarından temin edilmiştir.

### 2.2 Kullanılan Cihazlar

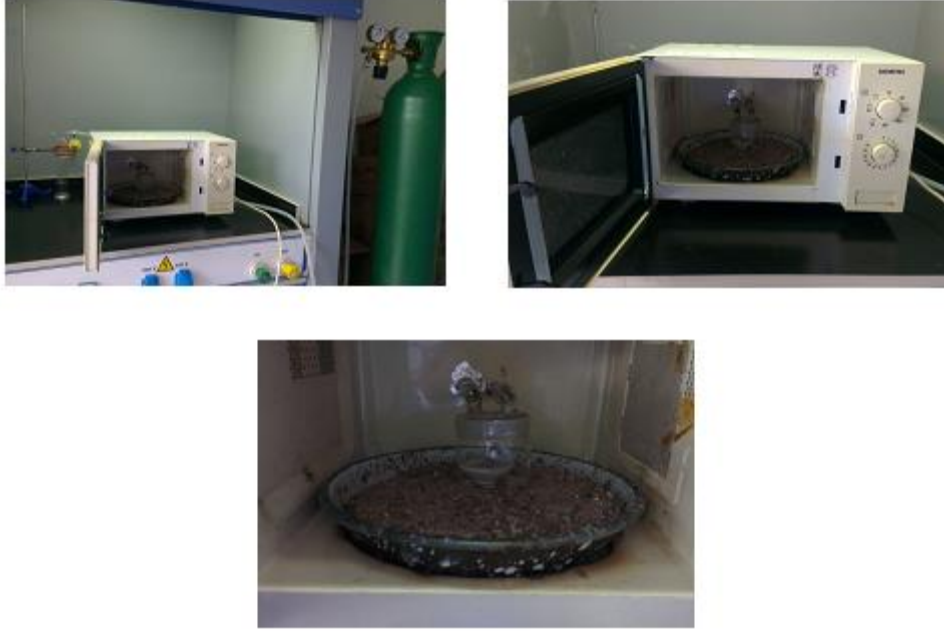
Mikrodalga enerji yöntemi kullanılarak yapılan sentezlerde Siemens V12 model, 2.45 GHz gücünde ev tipi mikrodalga fırın kullanılmıştır. Geleneksel katı-hal reaksiyonları Proterm marka kül fırınında gerçekleştirilmiştir. X-ışınları toz kırınım çekimleri CuK<sub>α</sub> = 1.54056 Å, 30 mA, 45 kV radyasyonunda PANalytic X'Pert PRO marka X-ışınları difraktometresi (XRD) ile elde edilmiştir. İnfrared spektrumları, Perkin Elmer Diamond 100 Fourier Transform İnfrared (FTIR) spektrofotometresi ile ölçülmüştür. Rietveld analizleri High Score Plus (Lisans kodu= 92000096) programı ile gerçekleştirilmiştir. SEM fotoğrafları Field Emission Scanning Electron Microscopy (FESEM-Carl Zeiss Supra 40VP ile görüntülenmiştir. Rafine edilmiş birim hücre parametreleri ise POWD programı kullanılarak hesaplanmıştır. Termal analiz ise, Perkin Elmer Diamond marka Diferansiyel Taramalı Termal Analiz (TG/DTA) cihazı ile gerçekleştirilmiştir. Fotolüminesans analizleri (PL) Andor Solis Sr 500i spektrofotometresi ile tamamlanmıştır.

### **2.3 İner Ortam Mikrodalga Fırın Deneylerinde Kullanılan Sistem**

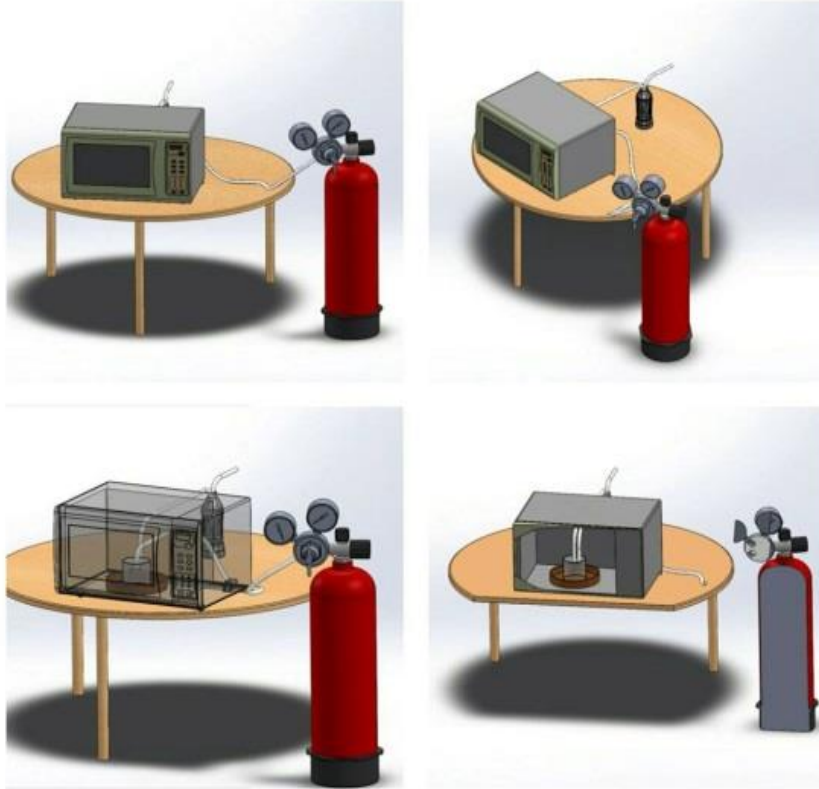
Reaksiyon ortamdan oksijen uzaklaştırmaya yönelik bir gereksinim meydana gelmesi sonucunda mikrodalga fırın içerisinde azot gazının geçirilebileceği bir sistem tasarlanmış ve tasarımı ürüne ulaşılması için gerekenler yapılmıştır. İçerisine kroze yerleştirilebilecek boyutta, ısıya dayanıklı borosilikat camdan, kapağında bir gaz girişi ve bir gaz çıkışı bulunan cam kap mikrodalga fırın içerisine yerleştirilerek gerekli bağlantılar yapılmıştır. Yüksek saflıktaki azot gazı sistemden geçirilerek oksijensiz ortam sağlanmıştır. Dışarıdan hava girişini önlemek için ise gaz çıkış borusuna gaz tuzakı bağlanmıştır. Sisteme ait fotoğraflar ve şematize edilmiş çizimleri sırasıyla Şekil 2.1 ve Şekil 2.2' de görülmektedir.

### **2.4 Mikrodalga Yöntem**

Başlangıç maddeleri, reaksiyon denklemlerine uygun mol oranlarında tartılmış, agat havanda homojenize edilerek öğütülmüştür. Öğütülen karışımlardan yaklaşık 1 gram tam tartım alınarak krozelere konulmuştur. Karışımlar, çeşitli güç değerlerinde uygun sürelerle reaksiyona maruz bırakılmışlardır. Elde edilen ürünler havanda öğütülerek, X-ışınları toz kırınımı desenlerinin alınması için desikatöre konulmuştur. Mikrodalga yöntemi kullanılarak yapılan bütün deneylerde aynı işlemler uygulanmıştır.



**Şekil 2.1:** Cam sistemine ait fotoğraflar.



**Şekil 2.2:** Cam sistemine ait şematize edilmiş fotoğraflar.

## 2.5 Yüksek Sıcaklık Katı-Hal Sentez Prodesürü

Başlangıç maddeleri, reaksiyon denklemlerine uygun mol oranlarında tartılmış, agat havanda homojenize edilerek öğütülmüştür. Öğütülen karışımlardan yaklaşık 1 gram tam tartım alınarak porselen krozelere konulmuştur. KF1-28 kodları arasındaki deneyler, 900 °C sıcaklık ve 4 saat süre parametreleri kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Taguchi yönteminin kullanıldığı KF29-163 kodları arasındaki deneyler ise borofosfatların ilk oluşum sıcaklığı olan 900 °C' den başlanarak toplamda üç farklı sıcaklık parametresi olacağı için 950 ve 1000 °C sıcaklıklarda gerçekleştirilmiştir. KF164-186 kodları arasındaki deneyler ise, literatür göz önünde bulundurularak 400 °C' de 2 saatlik ön kalsinasyon işleminin ardından tekrar homojenize edilerek 10 °C/dk ısıtma hızı ile 900 °C' ye çıkarılarak bu sıcaklıkta 10 saat kalsine edildikten sonra dakikada 10 °C' lik soğuma ile oda sıcaklığına getirilmek suretiyle gerçekleştirilmiştir [70, 77, 94].



### 3. BULGULAR VE TARTIŞMA

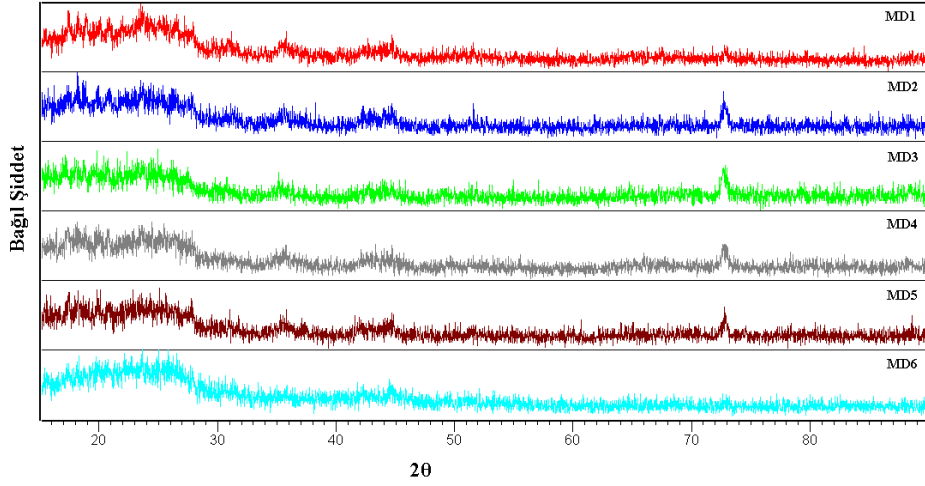
#### 3.1 B/Aktif C Sisteminde Süre Etkisinin İncelenmesi İçin Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.1:** B/Aktif C sisteminde süre etkisinin incelenmesi için gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Süreler	Hedeflenen ürün
MD1	B + C	1:1	(5 dk)	B <sub>6</sub> O
MD2	B + C	1:1	(10 dk)	B <sub>6</sub> O
MD3	B + C	1:1	(15 dk)	B <sub>6</sub> O
MD4	B + C	1:1	(20 dk)	B <sub>6</sub> O
MD5	B + C	1:1	(25 dk)	B <sub>6</sub> O
MD6	B + C	1:1	(30 dk)	B <sub>6</sub> O

#### 3.2 B/Aktif C Sisteminde Süre Etkisinin İncelenmesi İçin Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.1’ de verilen deneylerde aynı mol oranına sahip giriş maddeleri farklı sürelerde 850 Watt güçteki mikrodalga enerjiye maruz bırakılmıştır. MD1, MD2, MD3, MD4, MD5 ve MD6 deneyleri sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri Şekil 3.1’ de verilmiştir. Bu deneylere ait XRD desenleri incelendiğinde sürenin 30 dakika olduğu MD6 deneyinde başlangıç maddelerine ait piklerin kaybolduğu görülmüştür. Fakat hedef ürünün sentezi gerçekleştirilememiştir. Bundan sonra yapılan deneylerde mikrodalga enerjiye maruz bırakılma süresi olarak 30 dakika alınmıştır.



Şekil 3.1: MD1, MD2, MD3, MD4, MD5 ve MD6 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.3 B/Aktif C Sisteminde Güç Etkisinin İncelenmesi İçin Gerçekleştirilen Deneyler

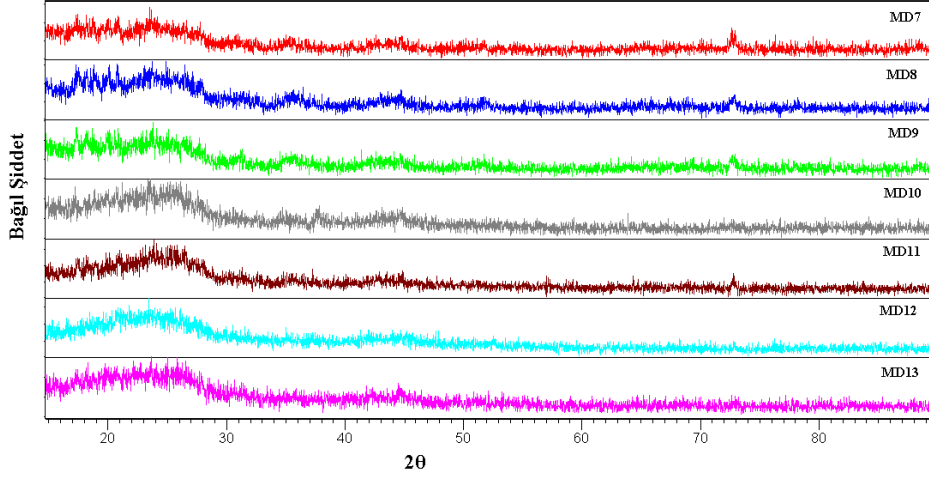
Tablo 3.2: B/Aktif C sisteminde güç etkisinin incelenmesi için gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Güç değerleri	Hedeflenen ürün
MD7	B + C	1:1	(100 W)	B <sub>6</sub> O
MD8	B + C	1:1	(200 W)	B <sub>6</sub> O
MD9	B + C	1:1	(300 W)	B <sub>6</sub> O
MD10	B + C	1:1	(450 W)	B <sub>6</sub> O
MD11	B + C	1:1	(600 W)	B <sub>6</sub> O
MD12	B + C	1:1	(700 W)	B <sub>6</sub> O
MD13	B + C	1:1	(850 W)	B <sub>6</sub> O

### 3.4 B/Aktif C Sisteminde Güç Etkisinin İncelenmesi İçin Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.2’ de verilen deneylerde aynı mol oranında hazırlanan numuneler, farklı güç değerlerinde 30 dk mikrodalga enerjiye maruz bırakılmıştır. MD7, MD8, MD9, MD10, MD11, MD12 ve MD13 deneyleri sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri Şekil 3.2’ de verilmiştir. Bu deneylere ait XRD desenleri incelendiğinde güç değeri yükseldikçe reaksiyonun gerçekleşme oranında

bir artışın olduğu, başlangıç maddelerinin piklerinin kaybolduğu görülmüştür. Fakat hedef ürün sentezlenememiştir. Bu durumda en uygun güç değerinin 850 Watt olduğu belirlenmiştir. Bundan sonraki deneyler 850 W güç değerinde yapılmıştır.



Şekil 3.2: MD7, MD8, MD9, MD10, MD11, MD12 ve MD13 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

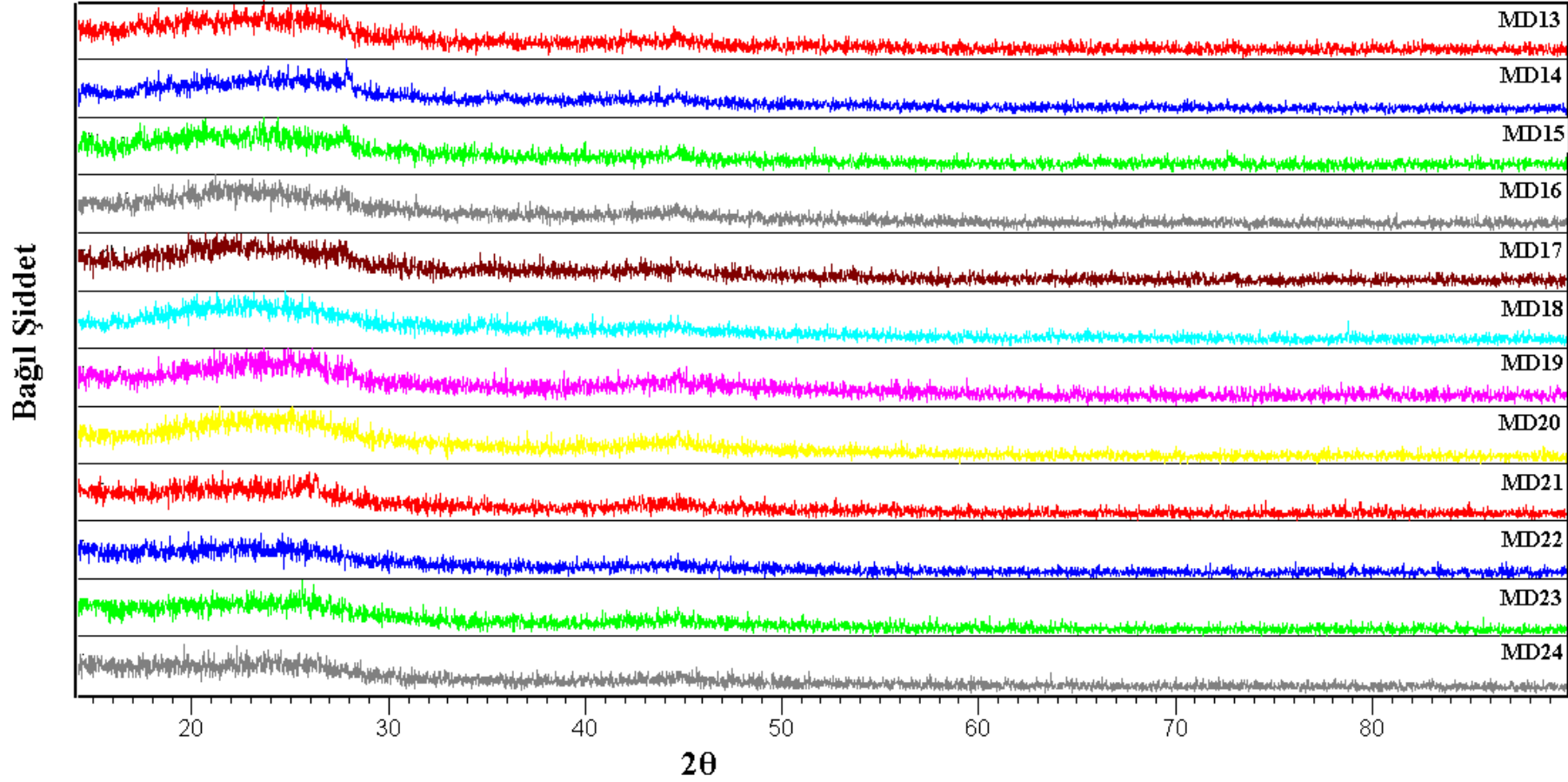
### 3.5 B/Aktif C Sisteminde Mol Oranı Etkisinin İncelenmesi İçin Gerçekleştirilen Deneyler

Tablo 3.3: B/Aktif C sisteminde mol oranı etkisinin incelenmesi için gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

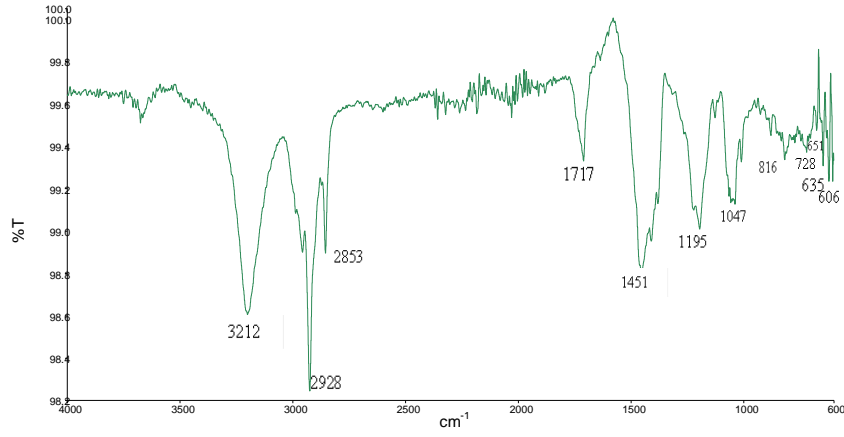
Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan İşlem	Hedeflenen ürün
MD13	B + C	1:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD14	B + C	2:2	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD15	B + C	3:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD16	B + C	4:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD17	B + C	5:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD18	B + C	6:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD19	B + C	1:2	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD20	B + C	1:3	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD21	B + C	1:4	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD22	B + C	1:5	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD23	B + C	1:6	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD24	B + C	1:7	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD25	B + C	16:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O

### **3.6 B/Aktif C Sisteminde Mol Oranı Etkisinin İncelenmesi İçin Gerçekleştirilen Deneilerin Sonuçları**

Tablo 3.3' te verilen deneylerde farklı mol oranlarındaki giriş maddeleri 30 dakika 850 W gücünde mikrodalga enerjiye maruz bırakılmışlardır. MD13, MD14, MD15, MD16, MD17, MD18, MD19, MD20, MD21, MD22, MD23 ve MD24 deneyleri sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri Şekil 3.3' te verilmiştir. Bu ürünlere ait XRD desenleri incelendiğinde amorf yapıya benzer özellik gösterdikleri görülmektedir. En uygun mol oranının hedef bileşiminin bileşim oranı olan 6:1 olduğu belirlenmiştir. MD18 deneyine ait FTIR spektrumu Şekil 3.4' te ve literatür verileri Tablo 3.4' te verilmiştir. FTIR spektrumunda gözlenen titreşimler amorf yapıda B-C-O içerikli ürünlerin oluştuğunu göstermektedir.



Şekil3.3: MD13, MD14, MD15, MD16, MD17, MD18, MD19, MD20, MD21, MD22, MD23 ve MD24 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.



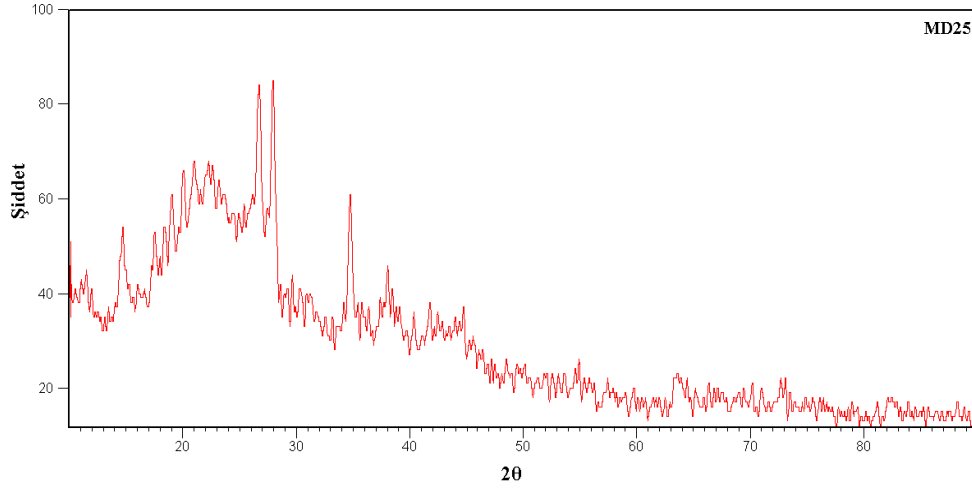
**Şekil 3.4:** MD18 deneyine ait FTIR spektrumu.

**Tablo 3.4:** MD18 deneyine ait FTIR verileri.

Gözlemlenen Dalga Sayısı, $\text{cm}^{-1}$	Titreşim Türü
1195	OBO [104]

Bor miktarının aşırı olarak alındığı (16:1) MD25 kodlu deneye ait X-ışınları toz kırınım desenleri Şekil 3.5’ te verilmiştir. XRD desenleri literatür değerleri ile karşılaştırıldığında, başlangıç maddelerinden B (ICDD:31-0207) elementinin reaksiyona girmeden ortamda kaldığı belirlenmiştir.

B/Aktif C sisteminde farklı mol oranları, farklı güçte mikrodalga enerji ve farklı süreler kullanılarak yapılan deneylerde hedeflenen kristal yapılı  $\text{B}_6\text{O}$  bileşiği elde edilememiştir.



Şekil 3.5: MD25 deneyine ait X-ışınları toz kırınım deseni.

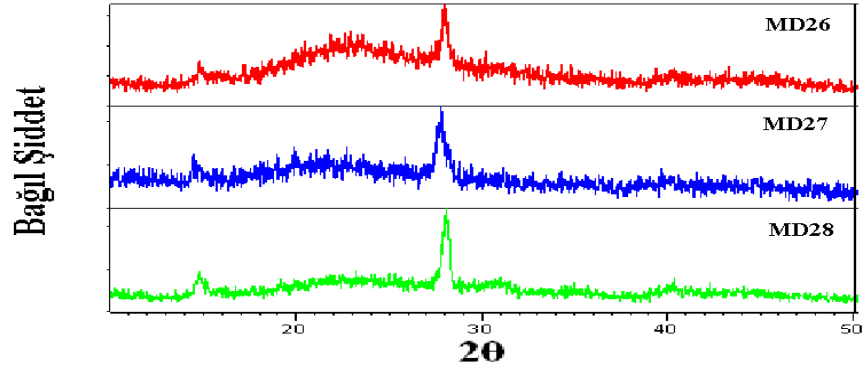
### 3.7 B/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler

Tablo 3.5: B/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

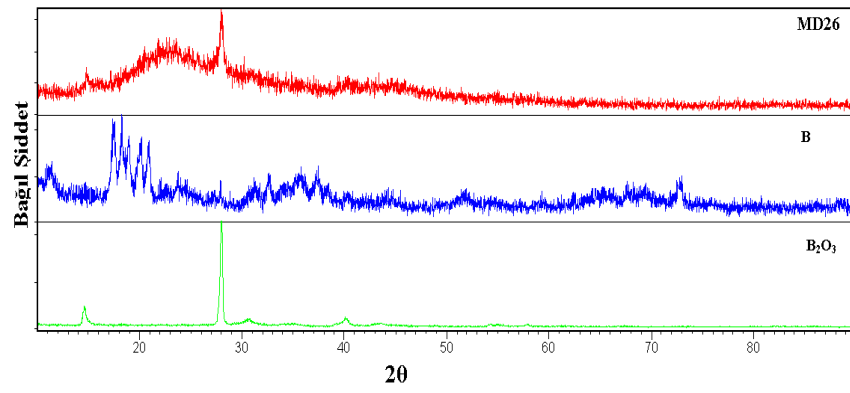
Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan İşlem	Hedeflenen ürün
MD26	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1:3	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD27	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3:2	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD28	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1:5	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O

### 3.8 B/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

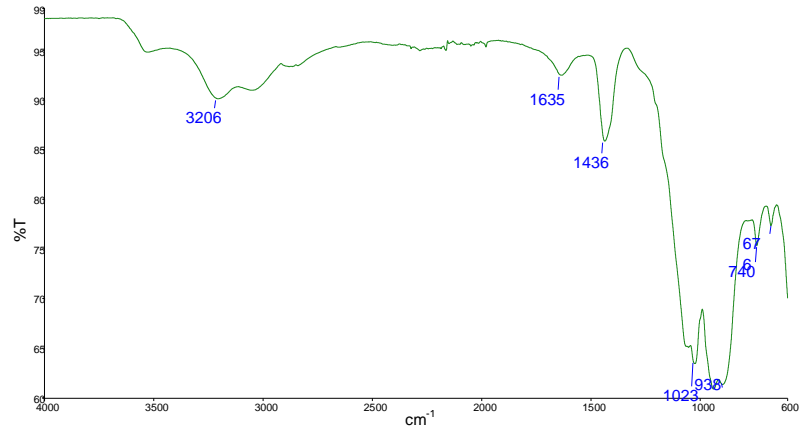
Tablo 3.5’ te verilen deneylerde başlangıç maddesi olarak elementel bor ve B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bileşikleri farklı mol oranlarında kullanılarak B<sub>6</sub>O’ nun sentezlenmesi hedeflenmiştir. Şekil 3.6’ da verilen MD26, MD27 ve MD28 deneyleri sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri incelendiğinde gözlemlenen iki tane pikin başlangıç maddelerinden olan B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>’ e ait karakteristik pikler olduğu belirlenmiştir. Şekil 3.7’ de başlangıç maddeleri ile MD26’ ya ait XRD desenleri birlikte karşılaştırılmıştır. Başlangıç maddelerinden B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>’ ün reaksiyona girmeden ortamda kaldığı, diğer başlangıç ürünü olan elementel bor’ un ise bor oksit ile amorf bir faz meydana getirdiği belirlenmiştir. Şekil 3.8’ de MD26 deneyine ait FTIR spektrumu verilmiştir. Tablo 3.6’ da verilen FTIR spektrumu verileri literatür ile uyumludur.



Şekil 3.6: MD26, MD27 ve MD28 deneyleri sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri.



Şekil 3.7: MD26, B ve B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>' e ait X-ışınları toz kırınım desenleri.



Şekil 3.8: MD26 deneyine ait FTIR spektrumu.



**Tablo 3.6:** MD26 deneyine ait FTIR spektrumu verileri.

Gözlemlenen Dalga Sayısı, $\text{cm}^{-1}$	Titreşim Türü
1436	$\nu$ ( $\text{BO}_3$ ) [105]
1023	$\nu_{\text{as}}$ ( $\text{BO}_3$ ) [106]
938	$\nu_s$ ( $\text{BO}_3$ ) [106]
740	$\nu_2$ ( $\text{BO}_3$ ) [107]
676	$\delta_{\text{di}}$ ( $\text{BO}_3$ ) [106]

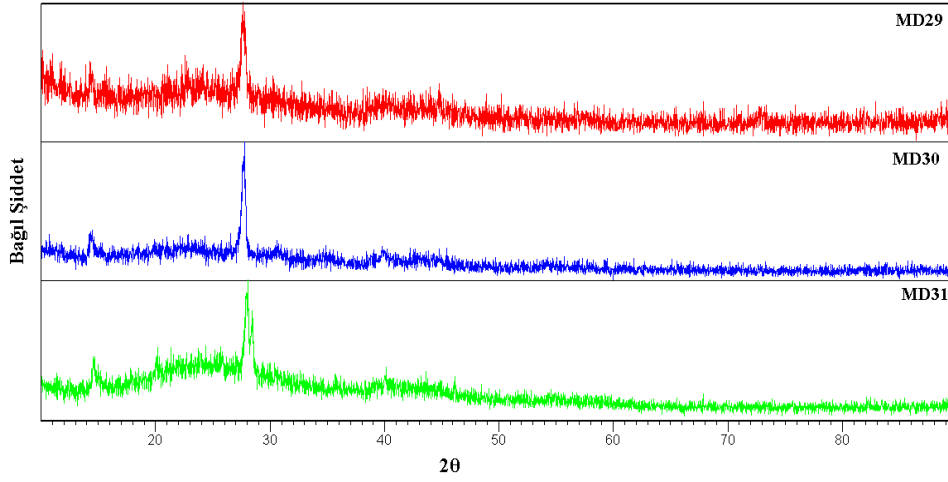
### 3.9 B/ $\text{H}_3\text{BO}_3$ Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.7:** B/ $\text{H}_3\text{BO}_3$  sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan İşlem	Hedeflenen ürün
MD29	B + $\text{H}_3\text{BO}_3$	1:6	850 W/ 30 dk	$\text{B}_6\text{O}$
MD30	B + $\text{H}_3\text{BO}_3$	3:4	850 W/ 30 dk	$\text{B}_6\text{O}$
MD31	B + $\text{H}_3\text{BO}_3$	1:10	850 W/ 30 dk	$\text{B}_6\text{O}$

### 3.10 B/ $\text{H}_3\text{BO}_3$ Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.7’ de verilen deneylerde farklı mol oranlarında B ve  $\text{H}_3\text{BO}_3$  giriş maddeleri, 850 W güçte mikrodalga ışına 30 dakika süreyle maruz bırakılmıştır. Şekil 3.9’ da verilen MD29, MD30 ve MD31 deneyleri sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri incelendiğinde başlangıç maddelerinden olan  $\text{H}_3\text{BO}_3$ ’ ün (ICDD:30-0199) reaksiyona girmeden ortamda kaldığı belirlenmiştir.



Şekil 3.9: MD29, MD30 ve MD31 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.11 B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler

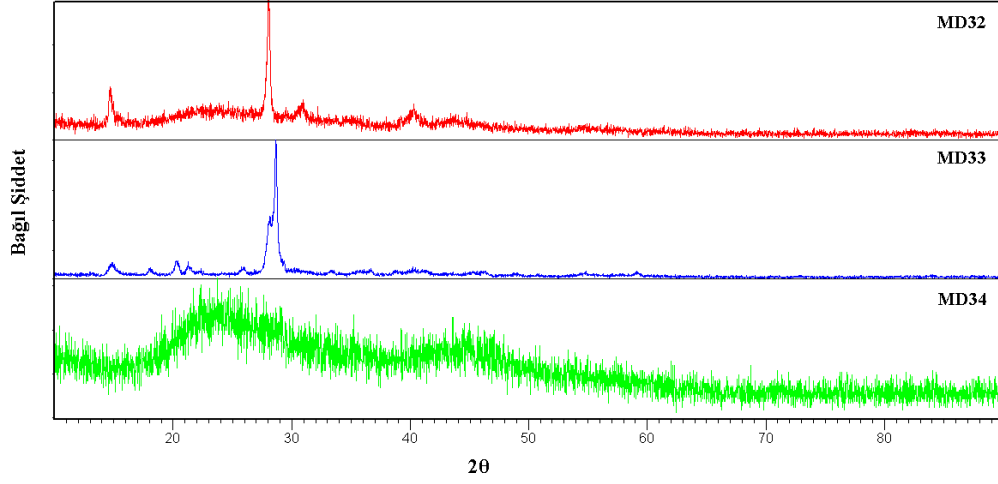
Tablo 3.8: B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan İşlem	Hedeflenen ürün
MD32	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	2:3	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD33	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	1:5	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD34	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	5:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O

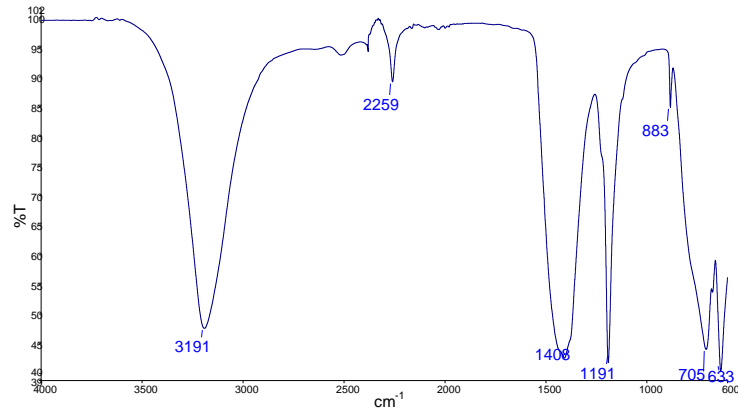
### 3.12 B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.8’ de verilen deneylerde farklı mol oranlarına sahip B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> başlangıç maddeleri 30 dakika süreyle 850 W güçte mikrodalga enerjiye maruz bırakılmıştır. MD32, MD33 ve MD34 deneyleri sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri Şekil 3.10’ da verilmiştir. MD32’ ye ait XRD deseni incelendiğinde, başlangıç maddelerinden H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> (ICDD:30-0620) bileşiğinin reaksiyona girmeden ortamda kaldığı görülmüştür. MD33’ e ait XRD desenleri literatür verileri ile karşılaştırıldığında, HBO<sub>2</sub> (ICDD:77-0425) bileşiğine ait piklerin yanı sıra başlangıç maddelerinden H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> (ICDD:30-0199) bileşiğine ait piklerin de olduğu görülmüştür. MD34 deneyine ait XRD deseninden ürün ise karakteristik amorf özellik sergileyen bor-oksijen içerikli bir malzemenin oluştuğu

görülmektedir. MD34 deneyine ait FTIR spektrumu Şekil 3.11’ de ve FTIR spektrum verileri Tablo 3.9’ da verilmiştir. FTIR spektrum verileri bor ve oksijen içerikli amorf özellikte ürün oluşumunu desteklemektedir.



Şekil 3.10: MD32, MD33 ve MD34 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.



Şekil 3.11: MD34 deneyine ait FTIR spektrumu.

Tablo 3.9: MD34 deneyine ait FTIR spektrum verileri.

Gözlemlenen Dalga Sayısı, $\text{cm}^{-1}$	Titreşim Türü
1408	$\nu$ ( $\text{BO}_3$ ) [105]
1191	$\nu_{\text{as}}$ ( $\text{BO}_3$ ) [106]
883	$\nu_{\text{s}}$ ( $\text{BO}_3$ ) [106]
705	$\nu_2$ ( $\text{BO}_3$ ) [107]
633	$\delta_{\text{di}}$ ( $\text{BO}_3$ ) [106]

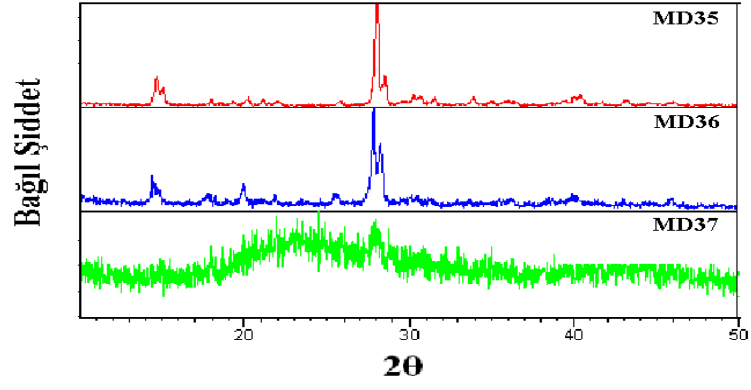
### 3.13 % 6' lık H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> İçerisinde B/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.10:** % 6' lık H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> içerisinde B/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

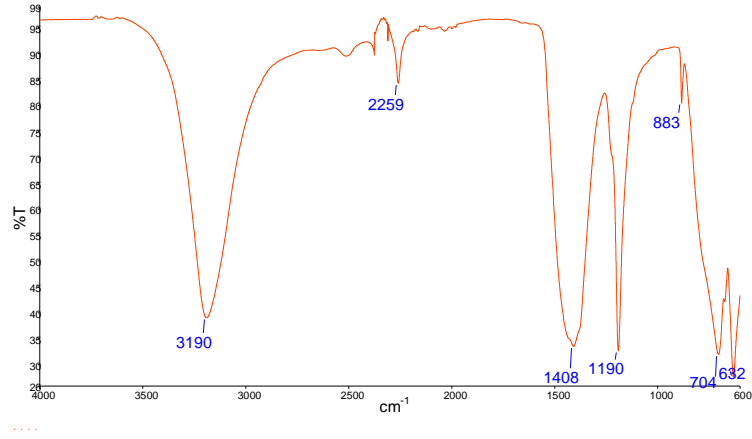
Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan İşlem	Hedeflenen ürün	Homojenleştirici çözücü
MD35	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1:3	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O	% 6' lık H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> çözeltisi
MD36	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3:2	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O	% 6' lık H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> çözeltisi
MD37	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1:5	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O	% 6' lık H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> çözeltisi

### 3.14 % 6' lık H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> İçerisinde B/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.10' da verilen deneyler % 6' lık H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> çözeltisi içerisinde farklı mol oranlarında, elementel B ve B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> başlangıç maddeleri kullanılarak, 850 W güçteki mikrodalga ışına 30 dakika süreyle maruz bırakılmıştır. MD26, MD27 ve MD28 deneylerinin %6' lık H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> çözeltisi içerisinde hazırlanmasıyla meydana gelen MD35, MD36 ve MD37 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri Şekil 3.12' de verilmiştir. MD35 ve MD36 deneylerine ait XRD desenleri incelendiğinde var olan piklerin başlangıç maddelerinden H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> ve B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>' e ait olduğu belirlenmiştir. MD37' ye ait XRD deseni ise karakteristik amorf özellik gösteren bor ve oksijen içerikli ürünün oluştuğunu göstermektedir. MD37' ye ait FTIR spektrumu Şekil 3.13' te ve FTIR spektrum verileri Tablo 3.11' de verilmiştir. FTIR spektrum verileri, literatür değerleri ile karşılaştırıldığında bor ve oksijen içerikli ürünün oluşumunu desteklemektedir.



Şekil 3.12: MD35, MD36 ve MD37 deneyleri sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri.



Şekil 3.13: MD37' ye ait FTIR spektrumu.

Tablo 3.11: MD37' ye ait FTIR spektrum verileri.

Gözlemlenen Dalga Sayısı, $\text{cm}^{-1}$	Titreşim Türü
1408	$\nu$ ( $\text{BO}_3$ ) [105]
1190	$\nu_{\text{as}}$ ( $\text{BO}_3$ ) [106]
883	$\nu_{\text{s}}$ ( $\text{BO}_3$ ) [106]
704	$\nu_2$ ( $\text{BO}_3$ ) [107]
632	$\delta_{\text{di}}$ ( $\text{BO}_3$ ) [106]

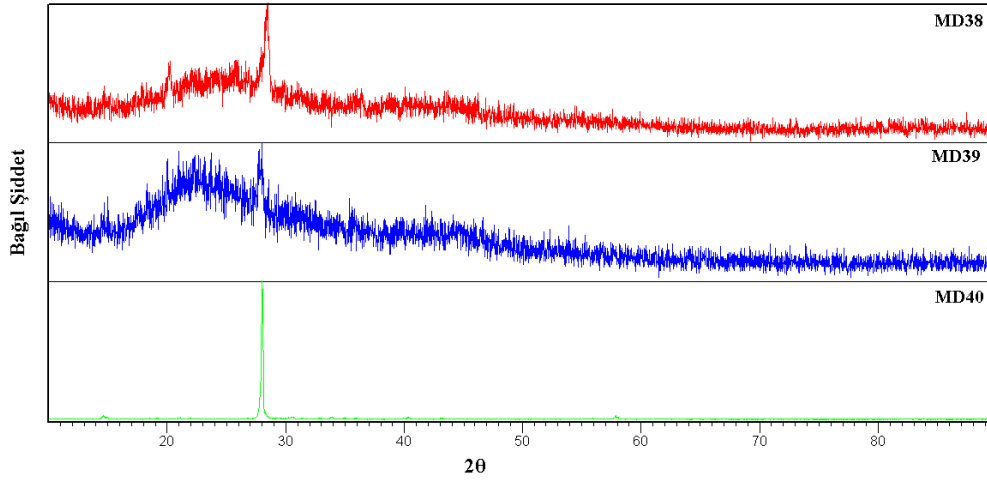
### 3.15 % 6' lık H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> İçerisinde B/H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyle

**Tablo 3.12:** % 6' lık H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> içerisinde B/H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan İşlem	Hedeflenen ürün	Homojenleştirici çözücü
MD38	B + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	1:6	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O	% 6' lık H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> çözeltisi
MD39	B + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	3:4	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O	% 6' lık H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> çözeltisi
MD40	B + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	1:10	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O	% 6' lık H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> çözeltisi

### 3.16 % 6' lık H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> İçerisinde B/H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylein Sonuçları

Tablo 3.12' de verilen deneyler % 6' lık H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> çözeltisi içerisinde farklı mol oranlarında, B ve H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> başlangıç maddeleri kullanılarak 850 W güçteki mikrodalga ışına 30 dakika süreyle maruz bırakılmıştır. MD38, MD39 ve MD40 deneyi sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri Şekil 3.14' te verilmiştir. MD38'e ait XRD deseni incelendiğinde HBO<sub>2</sub> (ICDD:15-0403) bileşiğinin meydana geldiği görülmüştür. MD39' un XRD deseni ise amorf yakın özellik gösterirken, 30° civarındaki tek pik H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> (ICDD:30-0199) bileşiğinin en şiddetli karakteristik pikidir. MD40 deneyine ait XRD desenleri incelendiğinde H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>' ün, H<sub>6</sub>B<sub>2</sub>O<sub>6</sub> (ICDD:25-0097) formuna dönüştüğü belirlenmiştir.



Şekil 3.14: MD38, MD39 ve MD40 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

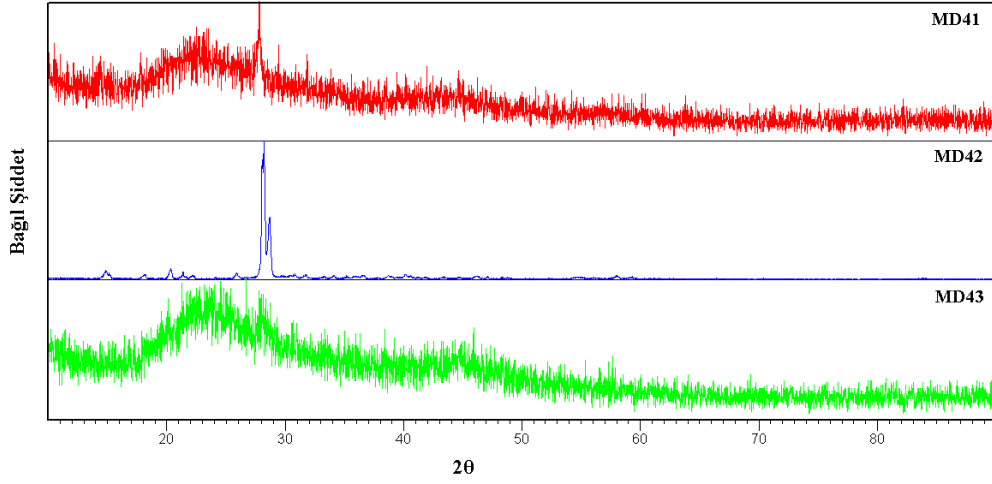
### 3.17 % 6' lık $H_3BO_3$ İçerisinde $B_2O_3/H_3BO_3$ Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler

Tablo 3.13: % 6' lık  $H_3BO_3$  içerisinde  $B_2O_3/H_3BO_3$  sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan İşlem	Hedeflenen ürün	Homojenleştirici çözücü
MD41	$B_2O_3 + H_3BO_3$	2:3	850 W/ 30 dk	$B_6O$	% 6' lık $H_3BO_3$ çözeltisi
MD42	$B_2O_3 + H_3BO_3$	1:5	850 W/ 30 dk	$B_6O$	% 6' lık $H_3BO_3$ çözeltisi
MD43	$B_2O_3 + H_3BO_3$	5:1	850 W/ 30 dk	$B_6O$	% 6' lık $H_3BO_3$ çözeltisi

### 3.18 % 6' lık $H_3BO_3$ İçerisinde $B_2O_3/H_3BO_3$ Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.13' te verilen deneyler % 6' lık  $H_3BO_3$  çözeltisi içerisinde farklı mol oranlarında,  $B_2O_3$  ve  $H_3BO_3$  başlangıç maddeleri kullanılarak 850 W güçteki mikrodalga ışına 30 dakika süreyle maruz bırakılmıştır. MD41, MD42 ve MD43 deneyi sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri Şekil 3.15' te verilmiştir. MD41 ve MD43' e ait XRD desenleri incelendiğinde yapının genel olarak amorf olduğu, 30° civarındaki tek pikin ise  $HBO_2$  (ICDD:15-0403) bileşiğine ait olduğu belirlenmiştir. MD42 deneyinin XRD desenleri literatür ile karşılaştırıldığında başlangıç maddesi  $H_3BO_3$  (ICDD:01-0767) bileşiğinin yanı sıra  $HBO_2$  (ICDD:77-0425) bileşiğinin pikleri gözlemlenmiştir.



Şekil 3.15: MD41, MD42 ve MD43 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.19 Etanol İçerisinde B/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler

Tablo 3.14: Etanol içerisinde B/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

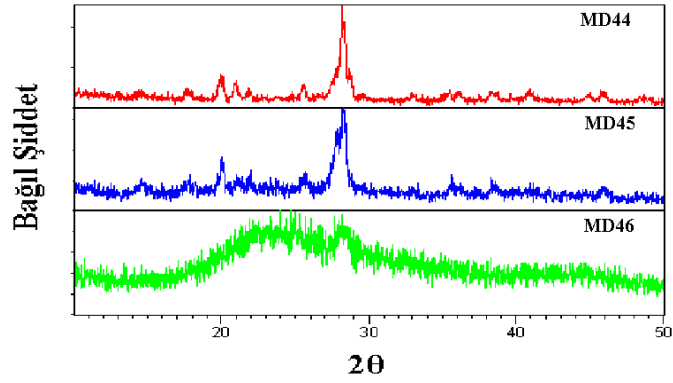
Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan İşlem	Hedeflenen ürün	Homojenleştirici çözücü
MD44	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1:3	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O	etanol
MD45	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3:2	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O	etanol
MD46	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1:5	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O	etanol

### 3.20 Etanol İçerisinde B/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

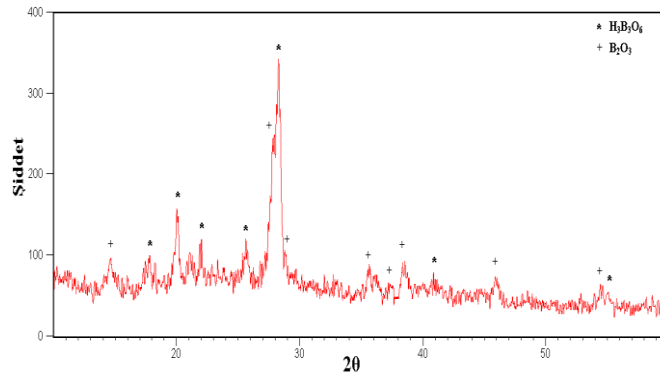
Tablo 3.14' te verilen deneyler etanol içerisinde farklı mol oranlarında, B ve B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> başlangıç maddeleri kullanılarak, 850 W güçteki mikrodalga ışına 30 dakika süreyle maruz bırakılmıştır. MD26, MD27 ve MD28 ile aynı mol oranı kullanılarak etanol içerisinde hazırlanan MD44, MD45 ve MD46 deneyleri sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri Şekil 3.16' da verilmiştir. MD44 ve MD45 deneylerine ait XRD desenlerinin incelenmesi sonucunda başlangıç maddesi olan B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>'e ait pikler ve ortamda bulunan etanol' ün etkisiyle H<sub>3</sub>B<sub>3</sub>O<sub>6</sub> (ICDD:72-1067) bileşiğinin meydana geldiğini gösteren karakteristik pikler belirlenmiştir. Şekil 3.17' de MD44' e ait XRD desenleri üzerinde çift fazlı olarak elde edilen bu



bileşiklere ait pikler işaretlenerek verilmiştir. MD46 deneyine ait XRD desenleri incelendiğinde amorf özellik gösteren ürünün oluştuğu görülmektedir.



Şekil 3.16: MD44, MD45 ve MD46 deneyleri sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri.



Şekil 3.17: MD44' e ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

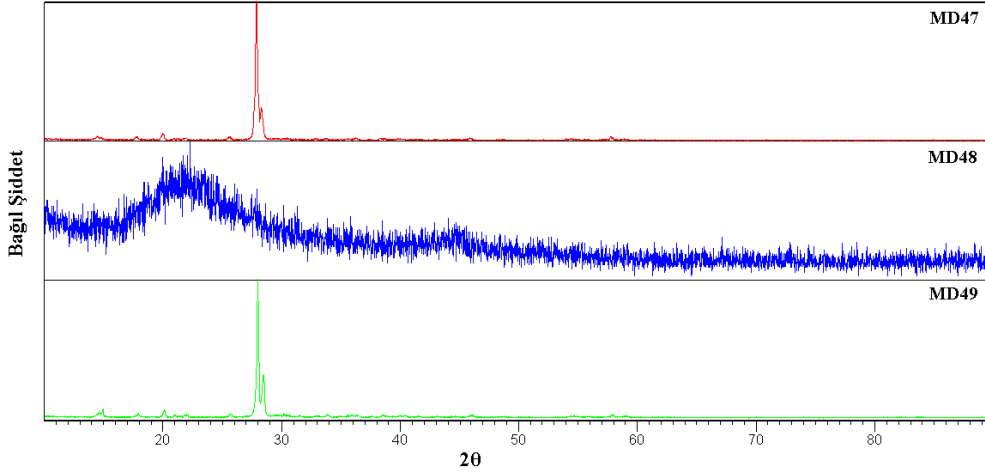
### 3.21 Etanol İçerisinde B/H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler

Tablo 3.15: Etanol içerisinde B/H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan İşlem	Hedeflenen ürün	Homojenleştirici çözücü
MD47	B + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	1:6	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O	etanol
MD48	B + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	3:4	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O	etanol
MD49	B + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	1:10	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O	etanol

### 3.22 Etanol İçerisinde B/H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.15’ te verilen deneyler etanol içerisinde, farklı mol oranlarında B ve H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> başlangıç maddeleri kullanılarak, 850 W güçteki mikrodalga ışına 30 dakika süreyle maruz bırakılarak gerçekleştirilmiştir. MD47, MD48 ve MD49 deneyi sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri Şekil 3.18’ de verilmiştir. MD47 ve MD49 deneyleri sonucu elde edilen bileşiklerin XRD desenleri başlangıç maddesi H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> (ICDD:73-2158)’ ün reaksiyona girmeden ortamda kaldığını göstermektedir. MD48 deneyi sonucu oluşan bileşiğin amorf özellik gösterdiği XRD deseninden görülmektedir.



Şekil 3.18: MD47, MD48 ve MD49 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

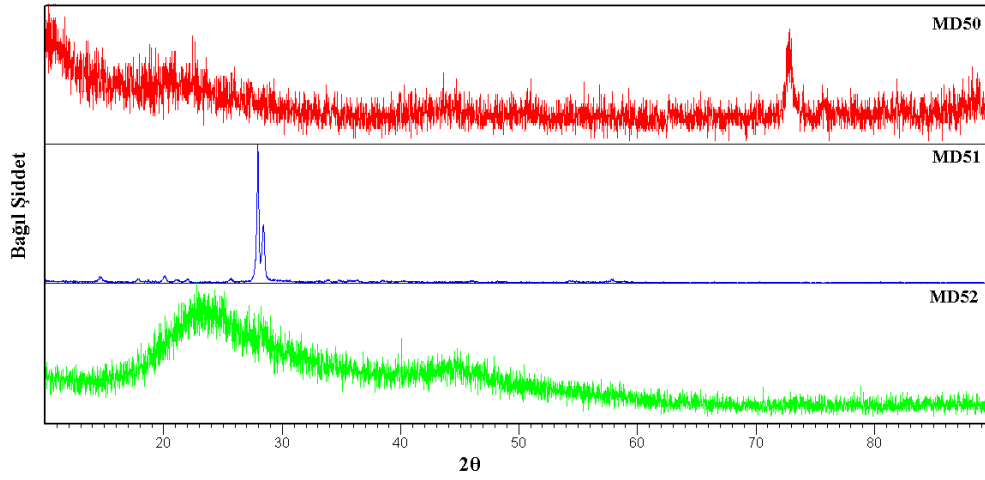
### 3.23 Etanol İçerisinde B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler

Tablo 3.16: Etanol içerisinde B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan İşlem	Hedeflenen ürün	Homojenleştirici çözücü
MD50	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	2:3	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O	etanol
MD51	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	1:5	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O	etanol
MD52	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	5:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O	etanol

### 3.24 Etanol İçerisinde B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneilerin Sonuçları

Farklı mol oranlarında, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> başlangıç maddeleri kullanılarak, 850 W güçteki mikrodalga ışına 30 dakika süreyle, maruz bırakılarak gerçekleştirilen deneyler Tablo 3.16’ da verilmiştir. MD50, MD51 ve MD52 deneylerine ait XRD desenleri Şekil 3.19’ da verilmiştir. MD50 ve MD52 deneylerine ait XRD desenleri amorf özellikte ürünlerin oluştuğunu göstermektedir. MD51 deneyine ait XRD desenlerinden H<sub>3</sub>B<sub>3</sub>O<sub>6</sub> (ICDD:25-0097) bileşiğinin meydana geldiği belirlenmiştir.



Şekil 3.19: MD50, MD51 ve MD52 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.25 Çözücü Etkisinin Karşılaştırılması

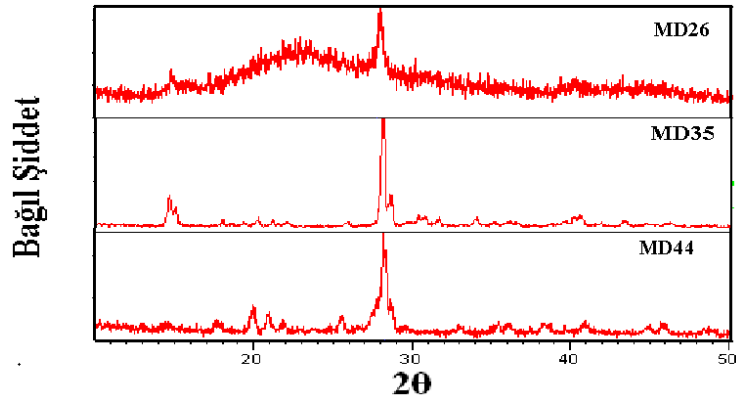
Tablo 3.17: Çözücü etkisinin karşılaştırıldığı MD26, MD35 ve MD 44 kodlu deneyler.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan İşlem	Hedeflenen ürün	Homojenleştirici çözücü
MD26	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1:3	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O	-
MD35	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1:3	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O	% 6’ lık H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> çözeltisi
MD44	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1:3	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O	etanol

Tablo 3.17’ de çözücü etkisinin karşılaştırıldığı MD26, MD35 ve MD 44 kodlu deneyler verilmiştir. Çözücü olmaksızın ve iki farklı çözücü kullanarak gerçekleştirdiğimiz deneylerin XRD desenlerinin bir karşılaştırması Şekil 3.20’ de görülmektedir. Aynı mol oranındaki karışımlar; çözücü olmaksızın (MD26), % 6’ lık  $H_3BO_3$  içerisinde (MD35) ve etanol içerisinde (MD44) olmak üzere üç farklı ortamda denenmiştir. Çözücü kullanılmadan gerçekleştirilen deneyde kristallenme seviyesinin oldukça düşük olduğu kırınım desenlerinden görülmektedir.

Borik asitin çözücü olduğu deneyde, başlangıç maddesi olan bor oksitin piklerinin yanı sıra  $H_3BO_3$ ’ e ait piklere de rastlanması, bu çözücünün reaksiyonun oluşumuna hiçbir etkisinin olmadığını ve çok kararlı bir yapıya sahip olup, mikrodalga ışına karşı aktif olmadığını göstermektedir.

Etanol içerisinde gerçekleştirilen deneyde ise, çözücünün homojenleştirme işlemine katkısının olduğu, hedef madde elde edilemese de, reaksiyonun gerçekleşmesinde büyük bir etkiye sahip olduğu belirlenmiştir. Ancak etanolün yapısında bulunan hidrojenin reaksiyona katılmasıyla hedefimiz dışında bir ürün meydana gelmesinden dolayı etanol kullanımı, hedef bileşiğin eldesinde uygun görünmemektedir. Deneylerin gerçekleştirilmesinde homojenleştirme için herhangi bir çözücünün kullanılmaması en uygun durumdur.



Şekil 3.20: MD26, MD35 ve MD44’ e ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

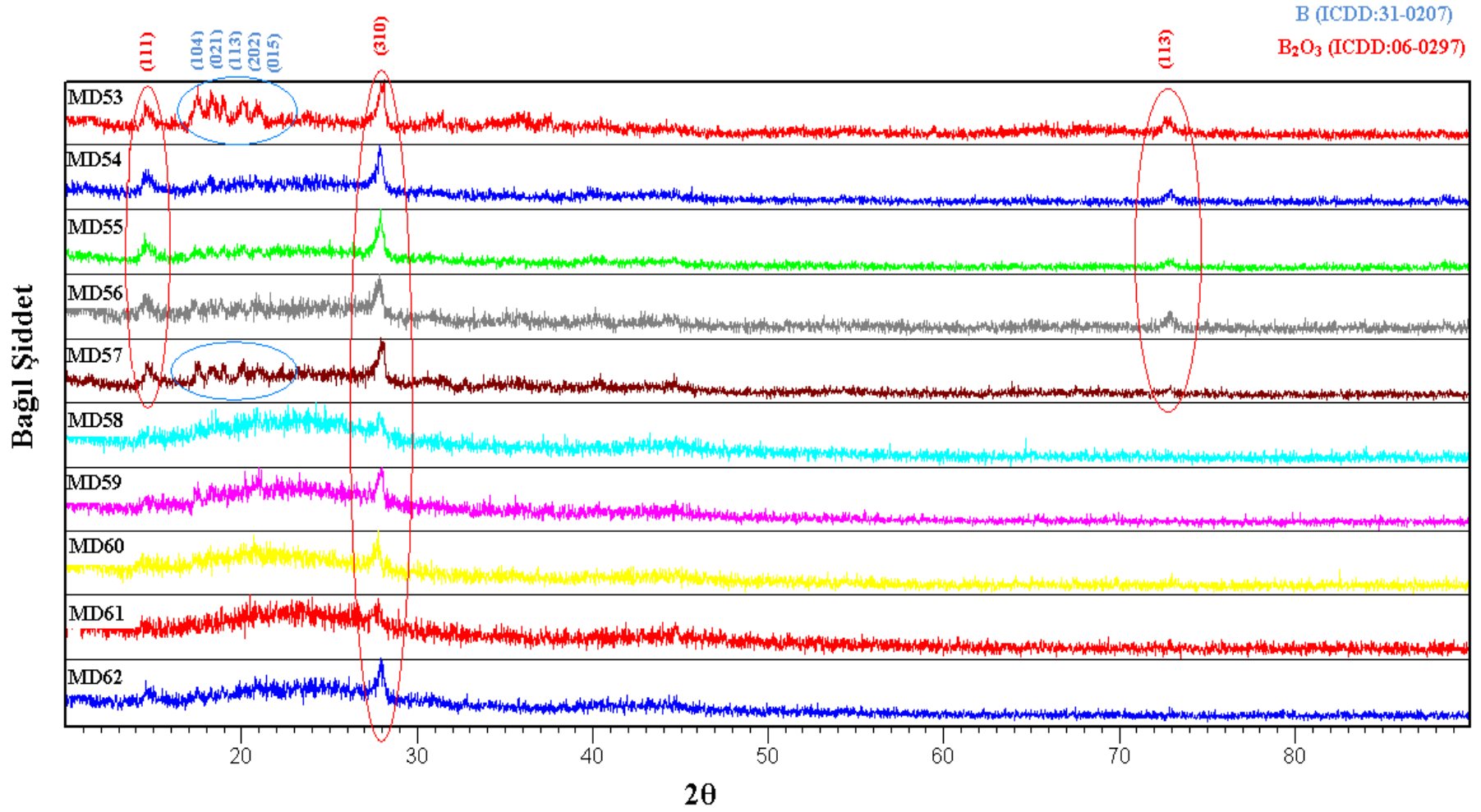
### 3.26 B/Aktif C/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.18:** B/Aktif C/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan İşlem	Hedeflenen ürün
MD53	B + C + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	16:1:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD54	B + C + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3:2:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD55	B + C + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3:1:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD56	B + C + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	5:2:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD57	B + C + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	5:1:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD58	B + C + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	7:1:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD59	B + C + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	7:3:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD60	B + C + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	9:1:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD61	B + C + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	9:2:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD62	B + C + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	9:4:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O

### 3.27 B/Aktif C/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Farklı mol oranlarında, B, C ve B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> başlangıç maddeleri kullanılarak, 850 W güçteki mikrodalga ışına, 30 dakika süreyle maruz bırakılarak gerçekleştirilen deneyler Tablo 3.18’ de verilmiştir. MD53, MD54, MD55, MD56, MD57, MD58, MD59, MD60, MD61 ve MD62 deneyleri sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri Şekil 3.21’ de verilmiştir. XRD desenlerinde kırmızı renkli halka içerisinde alınan pikler 06-0297 numaralı karta sahip B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bileşiğine aitken; mavi renkli halka ile gösterilen pikler B (ICDD:31-0207) elementine aittir. Bor miktarının arttırılmasıyla birlikte MD58, MD59, MD60, MD61 ve MD62 kodlu deneylerde elementel bor’ a ait piklerin kaybolması ile B ve C arasında bir reaksiyonun meydana geldiğini ve karakteristik amorf özellikte ürünün oluştuğunu göstermektedir.



Şekil 3.21: MD53, MD54, MD55, MD56, MD57, MD58, MD59, MD60, MD61 ve MD62 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.28 B/Aktif C/Üre Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler

Tablo 3.19: B/Aktif C/Üre sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

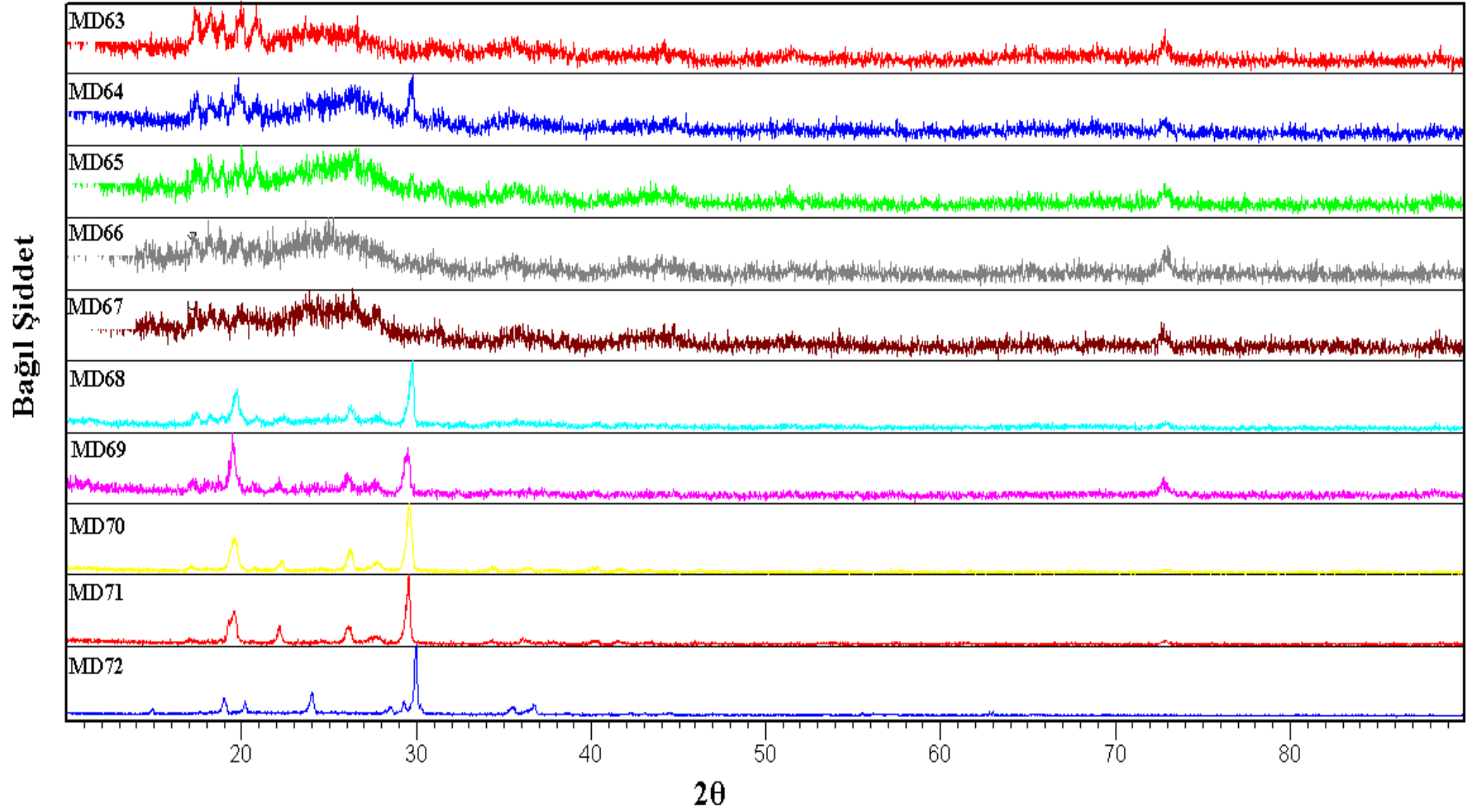
Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan İşlem	Hedeflenen ürün
MD63	B + C + üre	5:1:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD64	B + C + üre	5:2:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD65	B + C + üre	5:3:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD66	B + C + üre	5:4:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD67	B + C + üre	5:5:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD68	B + C + üre	5:1:2	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD69	B + C + üre	5:1:3	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD70	B + C + üre	5:1:4	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD71	B + C + üre	5:1:5	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD72	B + C + üre	1:1:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O

### 3.29 B/Aktif C/Üre Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

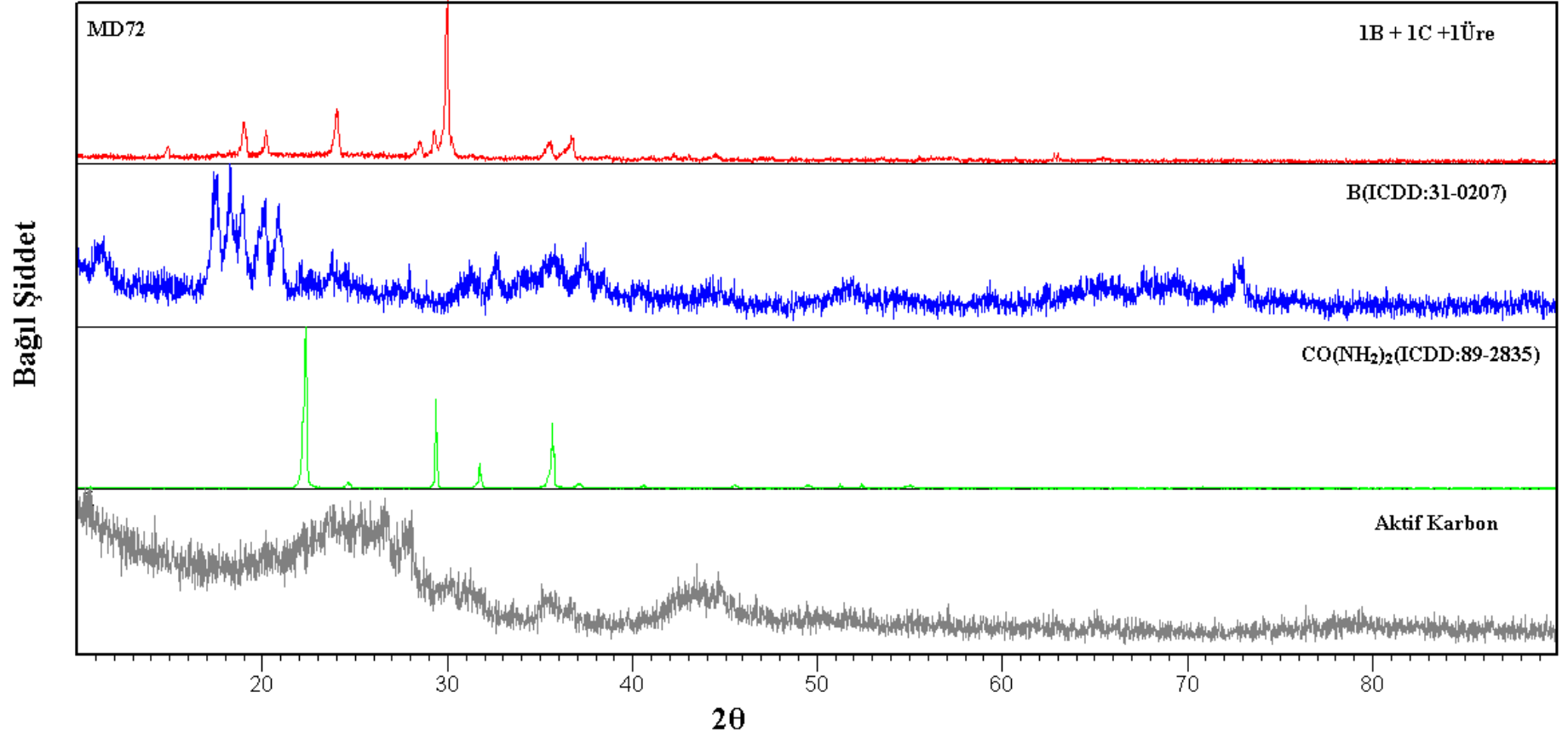
Tablo 3.19’ da farklı mol oranlarında, B, aktif C ve üre başlangıç maddeleri 850 W güçteki mikrodalga ışına, 30 dakika süreyle maruz bırakılarak gerçekleştirilen deneyler verilmiştir. MD63, MD64, MD65, MD66, MD67, MD68, MD69, MD70, MD71 ve MD72 deneyleri sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri Şekil 3.22’ de verilmiştir. MD63-67 kodlu deneyler sonucu elde edilen ürünlerin XRD desenleri literatür verileri ile karşılaştırıldıklarında ana faz olarak başlangıç maddelerinden olan B (ICDD:31-0207) elementinin karakteristik piklerinin olduğu görülmüştür. Bu deneylerde üre miktarı ve bor miktarı sabit tutulup karbon miktarı artışının reaksiyonun üzerine etkisi incelenmiştir. Tüm denemelerde elementel bor’ a ait piklerin varlığını koruması, karbon miktarı ile reaksiyonun bağlantılı olmadığını göstermiştir. Kırınım desenlerinde üre bileşiğine ait piklerin olmaması, reaksiyon ortamında mikrodalga ışına maruz kalması sonucu ürenin yanarak karbon ve azot oksitlere dönüşüp, ortamdan uzaklaşmış olabileceğini desteklemektedir. Bor ve karbon miktarının sabit tutulup üre miktarının reaksiyon üzerine etkisinin incelendiği MD68-71 kodlu deneylerde ise fazlalık olan ürenin reaksiyona girmeden ortamda kaldığı XRD desenlerinden belirlenmiştir. Ancak diğer iki başlangıç maddesinin piklerinin olmaması, bu iki madde arasında bir reaksiyonun meydana geldiğini ve ürünün amorf özellik sergilediğini göstermektedir. Tüm başlangıç maddelerinin aynı mol oranında alındığı MD72 kodlu deneyin XRD

desenleri incelendiğinde başlangıç maddeleriyle ve diğer deneylerle eşleşmeyen pikler bulunmuştur. Bu sebeple, ürüne ait kırınım desenleri ayrıntılı olarak incelenmiştir. MD72 deneyi sonucunda elde edilen ürüne ait X-ışınları toz kırınım desenleri Şekil 3.23' te ve ürüne ait deneysel ve hesaplanan  $d$ ,  $\sin^2\Theta$ ,  $hkl$  değerleri ve pik şiddetleri Tablo 3.20' de verilmiştir. Deneye ait XRD deseni başlangıç maddeleri ile karşılaştırıldığında, herhangi biriyle tam olarak eşleşmediği görülmüştür. POWD yapı çözümüleme programı ile yapılan hesaplamalar sonucunda bileşiğin monoklinik sistemde kristallendiği ve hücre parametrelerinin  $a=12.9575 \text{ \AA}$ ,  $b=9.3264 \text{ \AA}$ ,  $c=9.6529$ ,  $\beta=113.277$  olduğu ilk kez bu çalışma ile belirlenmiştir.





Şekil 3.22: MD63, MD64, MD65, MD66, MD67, MD68, MD69, MD70, MD71 ve MD72 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

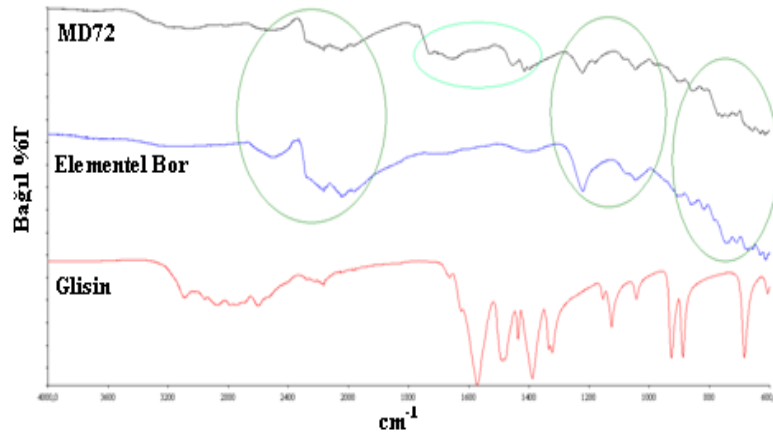


Şekil 3.23: MD72 deneyine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

**Tablo 3.20:** MD72' nin X-ışını toz kırınım verileri.

$I/I_0$	$d_{\text{deneysel}}$ (Å)	$d_{\text{hesaplanan}}$ (Å)	$\text{Sin}^2\Theta_{\text{deneysel}}$	$\text{Sin}^2\Theta_{\text{hesaplanan}}$	hkl	Fark
6,26	5,9514	5,9514	0,0168	0,0167	200	0,000
22,71	4,6632	4,6632	0,0273	0,0273	020	0,000
18,09	4,4336	4,4336	0,0302	0,0302	002	0,000
30,67	3,7035	3,7035	0,0433	0,0433	102	0,000
11,83	3,1300	3,1324	0,0606	0,0605	221	0,023
16,76	3,0507	3,0543	0,0638	0,0636	-411	0,035
100,00	2,9793	2,9757	0,0669	0,0670	400	-0,037
13,81	2,9541	2,9557	0,0680	0,0679	003	0,017
9,45	2,5286	2,5273	0,0928	0,0920	-323	-0,021
16,03	2,4438	2,4463	0,0994	0,0992	411	0,039

Şekil 3.24' te numuneye ve başlangıç maddelerine ait FTIR spektrumu görülmektedir. Bu spektrum incelendiğinde; başlangıç maddelerinden glisine ait piklerin kaybolmuş olması, yapısının mikrodalga ışın ile bozunuma uğradığını ve bunun sonucunda reaksiyon meydana geldiğini desteklemektedir. Elementel bora ait piklerin bir kısmının varlığını sürdürdüğünü ancak bunun yanı sıra MD72 kodlu numunede 1400-2000  $\text{cm}^{-1}$  bölgesinde farklı oluşumların meydana geldiği gözlemlenmektedir. Bu oluşum meydana gelmiş olan yeni bileşiğin varlığını desteklemektedir. Ürüne ait FTIR pik değerleri ve literatür verileri karşılaştırmalı olarak Tablo 3.21' de verilmiştir.

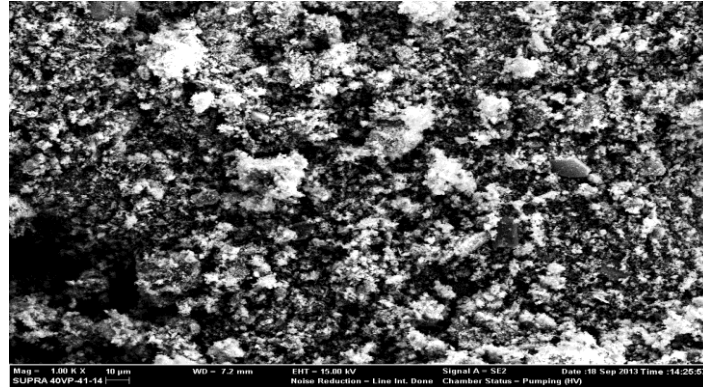


**Şekil 3.24:** MD72 deneyine ve başlangıç maddelerine ait FTIR spektrumu.

**Tablo 3.21:** MD72' ye ait FTIR verileri.

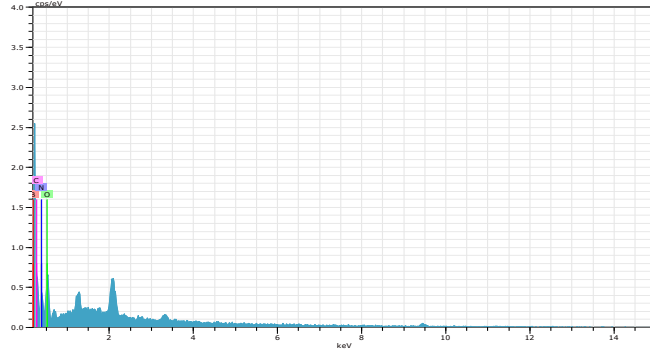
Gözlemlenen Dalga Sayısı, $\text{cm}^{-1}$	Titreşim Türü
2519	$\text{CO}_2$ [105]
3450, 1579	$\text{H}_2\text{O}$ [105]
1331	$\nu$ ( $\text{BO}_3$ ) [105]
1223	$\text{BO}_3^{3-}$ [105]
1110	$\nu_{\text{as}}$ ( $\text{BO}_3$ ) [106]
1032	$\nu$ ( $\text{BO}_3$ ) [107]
908	$\nu_{\text{s}}$ ( $\text{BO}_3$ ) [108]
891	$\delta_{\text{dd}}$ ( $\text{BO}_3$ ) [106]
690	$\nu$ ( $\text{BO}_3$ ) [105]

Şekil 3.25' te numuneye ait SEM görüntüsü verilmiştir. Bu fotoğraf incelendiğinde; numunenin homojen bir dağılıma sahip olduğu, tanecik boyutunun ise 0,1-1  $\mu\text{m}$  civarında olduğu belirlenmiştir.



**Şekil 3.25:** MD72 kodlu numuneye ait SEM görüntüsü.

Numuneye ait EDX analizi sonuçları Şekil 3.26' da verilmiştir. Elementlerin kütlece yüzde bileşimleri ise Tablo 3.22' de görülmektedir. Bu analiz sonucunda bileşiğin B, C, N ve O elementlerini içeren bileşik, empirik olarak  $\text{B}_{26}\text{C}_{20}\text{N}_8\text{O}_4 \cdot (\text{H}_2\text{O})$  formülü ile temsil edilebilir.

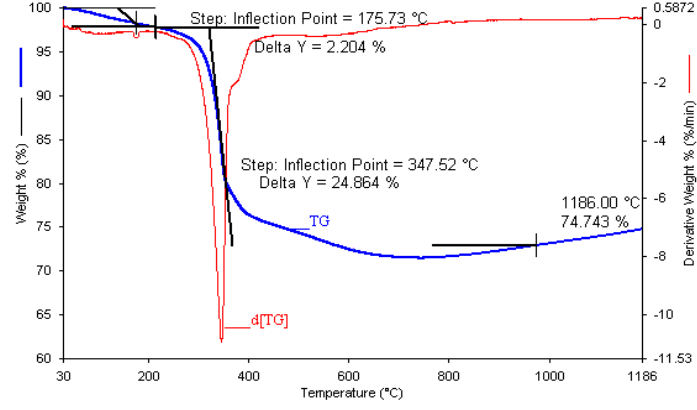


Şekil 3.26: MD72' ye ait EDX analizi sonuçları.

Tablo 3.22: MD72' ye ait elementlerin kütlece yüzde bileşimi.

Element	Kütlece Yüzde
B	%38,54
O	%10,75
N	%16,87
H	%0,28
C	%33,56

Şekil 3.27' de, MD72 kodlu numunenin TG/DTA analizine ait grafik görülmektedir. Yaklaşık 350 °C' de meydana gelen % 25' lik kütle kaybının dışında dikkate değer bir kütle kaybı yoktur. Bu kayıp, yapıya daha sonradan yerleşmiş olan bir mol kristal suya aittir. Sadece kristal sudan meydana gelen bu kayıp, bileşiğin 400-1200 °C' de oldukça kararlı bir yapıda olduğunu göstermektedir.



Şekil 3.27: MD72' ye ait TG/DTA analizi sonuçları.

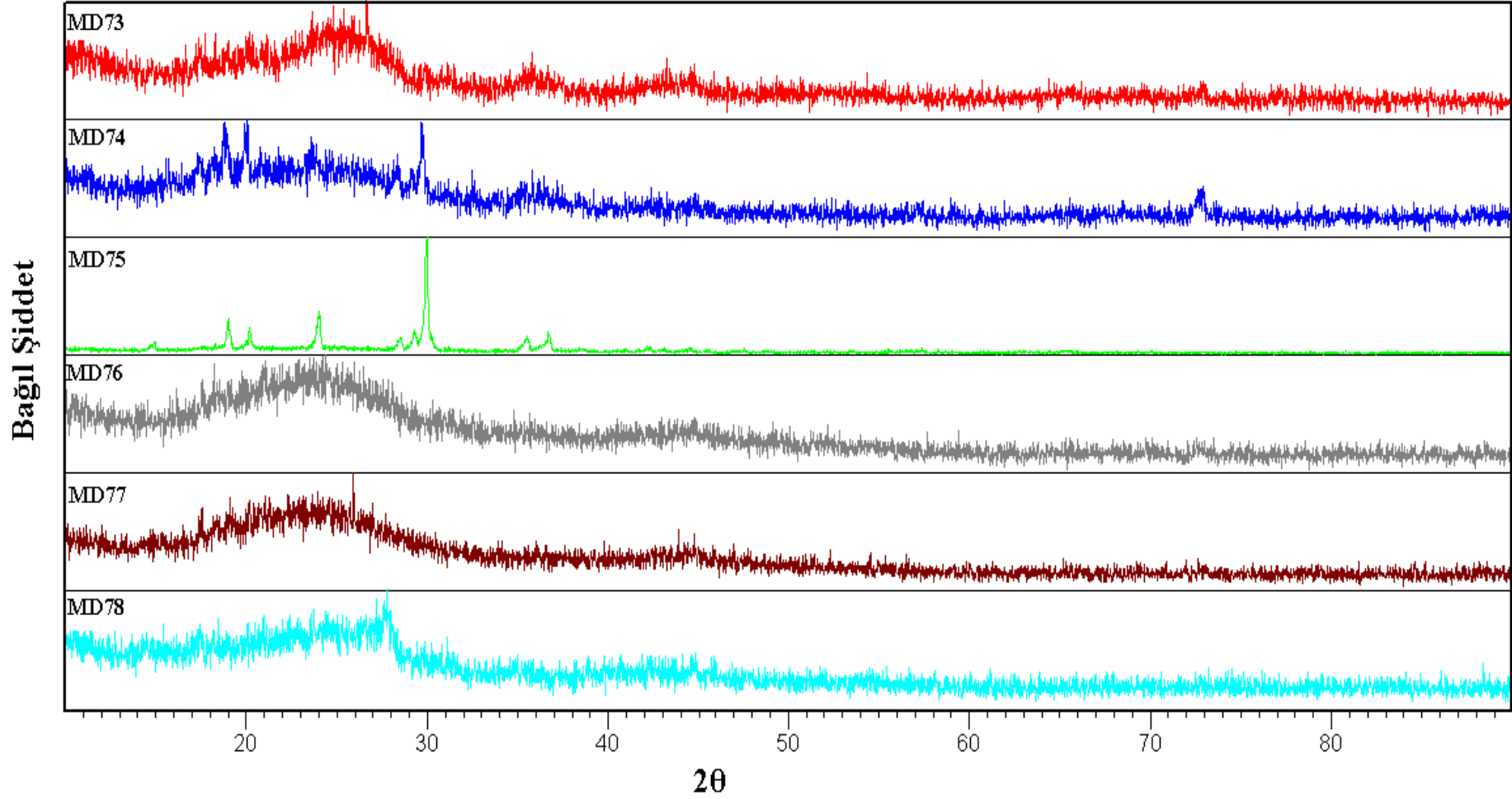
### 3.30 B/Aktif C/Glisin Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler

Tablo 3.23: B/Aktif C/Glisin sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan İşlem	Hedeflenen ürün
MD73	B + C + glisin	5:1:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD74	B + C + glisin	5:1:2	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD75	B + C + glisin	5:1:3	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD76	B + C + glisin	5:1:4	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD77	B + C + glisin	5:1:5	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD78	B + C + glisin	1:1:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O

### 3.31 B/Aktif C/Glisin Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Farklı mol oranlarında, 850 W güçte mikrodalga ışın ile 30 dakika süreyle B, aktif C ve glisin sisteminde gerçekleştirilen deneyler Tablo 3.23' te verilmiştir. MD73, MD74, MD75, MD76, MD77 ve MD78 deneyleri sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri Şekil 3.28' de verilmiştir. Deneylere ait XRD desenleri incelendiğinde, bor ve aktif karbon miktarları sabit tutulup; glisin (ICDD:50-2130) miktarının artması ile reaksiyonun gerçekleşmesinin sağlandığı, MD76 kodlu denemenin amorf yapıya kayması sayesinde anlaşılmıştır. Reaksiyonun yeterince yavaş gerçekleştirilememesinden dolayı kristal yapı oluşmamaktadır. Bu sistemdeki en uygun mol oranı 5:1:4 şeklindedir.



Şekil 3.28: MD73, MD74, MD75, MD76, MD77 ve MD78 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.32 B/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Üre Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler

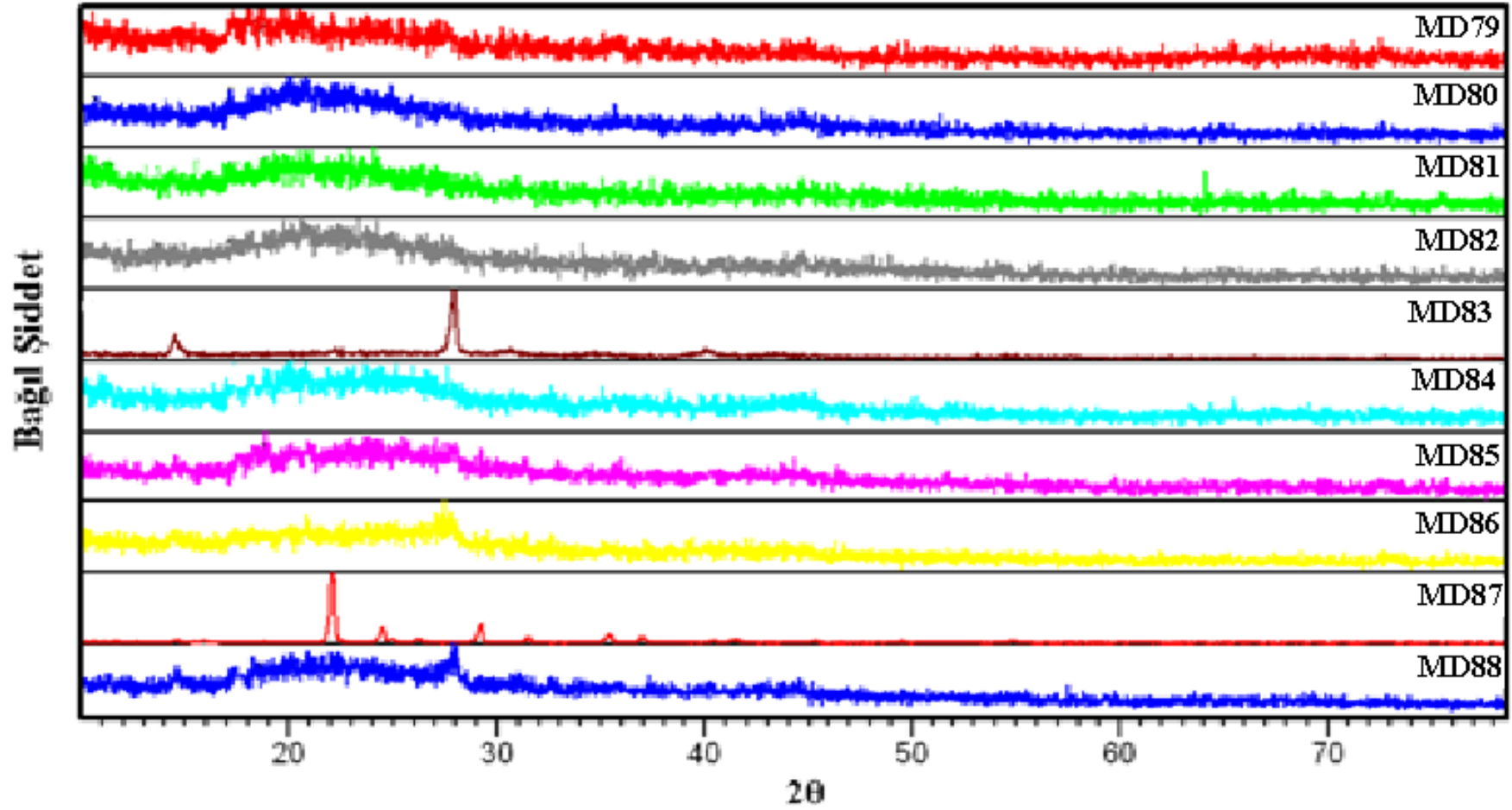
Tablo 3.24: B/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Üre sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan İşlem	Hedeflenen ürün
MD79	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + üre	5:1:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD80	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + üre	5:2:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD81	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + üre	5:3:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD82	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + üre	5:4:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD83	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + üre	5:5:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD84	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + üre	5:1:2	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD85	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + üre	5:1:3	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD86	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + üre	5:1:4	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD87	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + üre	5:1:5	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD88	B + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + üre	16:1:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O

### 3.33 B/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Üre Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

850 W güçte mikrodalga ışın ile 30 dakika süreyle B miktarı sabit tutulup, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve üre miktarlarının değiştirildiği ve B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve üre miktarının 16 katı elementel B' nin kullanıldığı deneyler Tablo 3.24' te verilmiştir. MD79, MD80, MD,81, MD 82, MD83, MD84, MD85, MD86, MD87 ve MD88 deneyleri sonucunda elde edilen ürünlere ait X-ışınları toz kırınım desenleri Şekil 3.29' da verilmiştir. MD79, MD80, MD,81, MD 82, MD84, MD85, MD86 ve MD88 deneylerine ait ürünlerin X-ışınları toz kırınım desenleri incelendiğinde yapıların karakteristik amorf özellikte olduğu görülmektedir. MD83 kodlu numunenin XRD desenleri literatür verileri ile karşılaştırıldığında H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> (ICDD:05-2290)' in oluştuğu görülmüştür. Bu durum, başlangıç maddesi bor oksitin, ürenin yapısında bulunan hidrojenlerle reaksiyon verdiğini göstermektedir. MD87 kodlu numunenin XRD desenleri incelendiğinde H<sub>12</sub>B<sub>5</sub>NO<sub>12</sub> (ICDD:41-0811) ve CH<sub>4</sub>N<sub>2</sub>O (ICDD:01-5432) bileşiklerinin çift fazlı olarak meydana geldiği görülmüştür. H<sub>12</sub>B<sub>5</sub>NO<sub>12</sub> bileşiğinin ana faz olduğu temel piklerin şiddetlerinin yüksekliğinden anlaşılmaktadır.





Şekil 3.29: MD79, MD80, MD,81, MD 82, MD83, MD84, MD85, MD86, MD87 ve MD88 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

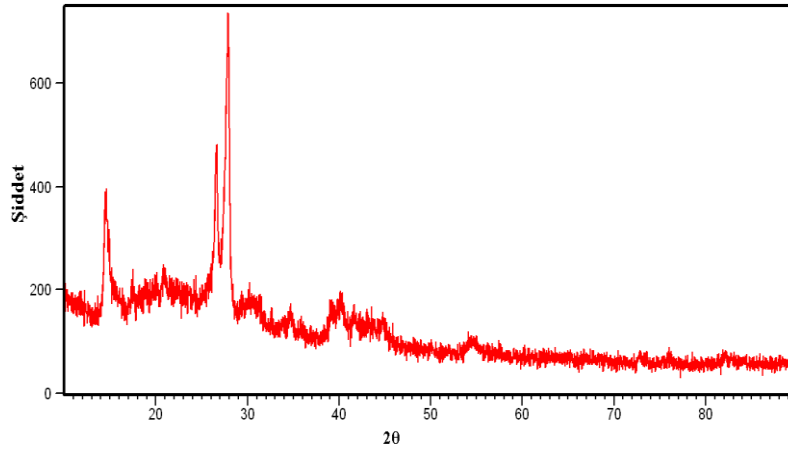
### 3.34 B/Üre Sisteminde Gerçekleştirilen Deney

**Tablo 3.25:** B/Üre sisteminde gerçekleştirilen deney ve kodu.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan İşlem	Hedeflenen ürün
MD89	B + üre	16:1	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O

### 3.35 B/Üre Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyin Sonucu

Tablo 3.25’ de B/Üre sisteminde gerçekleştirilen deney verilmiştir. 16:1 oranında bor ve üre kullanılarak gerçekleştirilen deneye ait X-ışınları toz kırınım desenleri Şekil 3.30’ da verilmiştir. Bu deneye ait XRD desenleri incelendiğinde, başlangıç maddesi borun reaksiyon ortamında yükseltgenerek H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> (ICDD:02-4711) bileşimini oluşturduğu görülmüştür.



**Şekil 3.30:** MD89 deneyine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

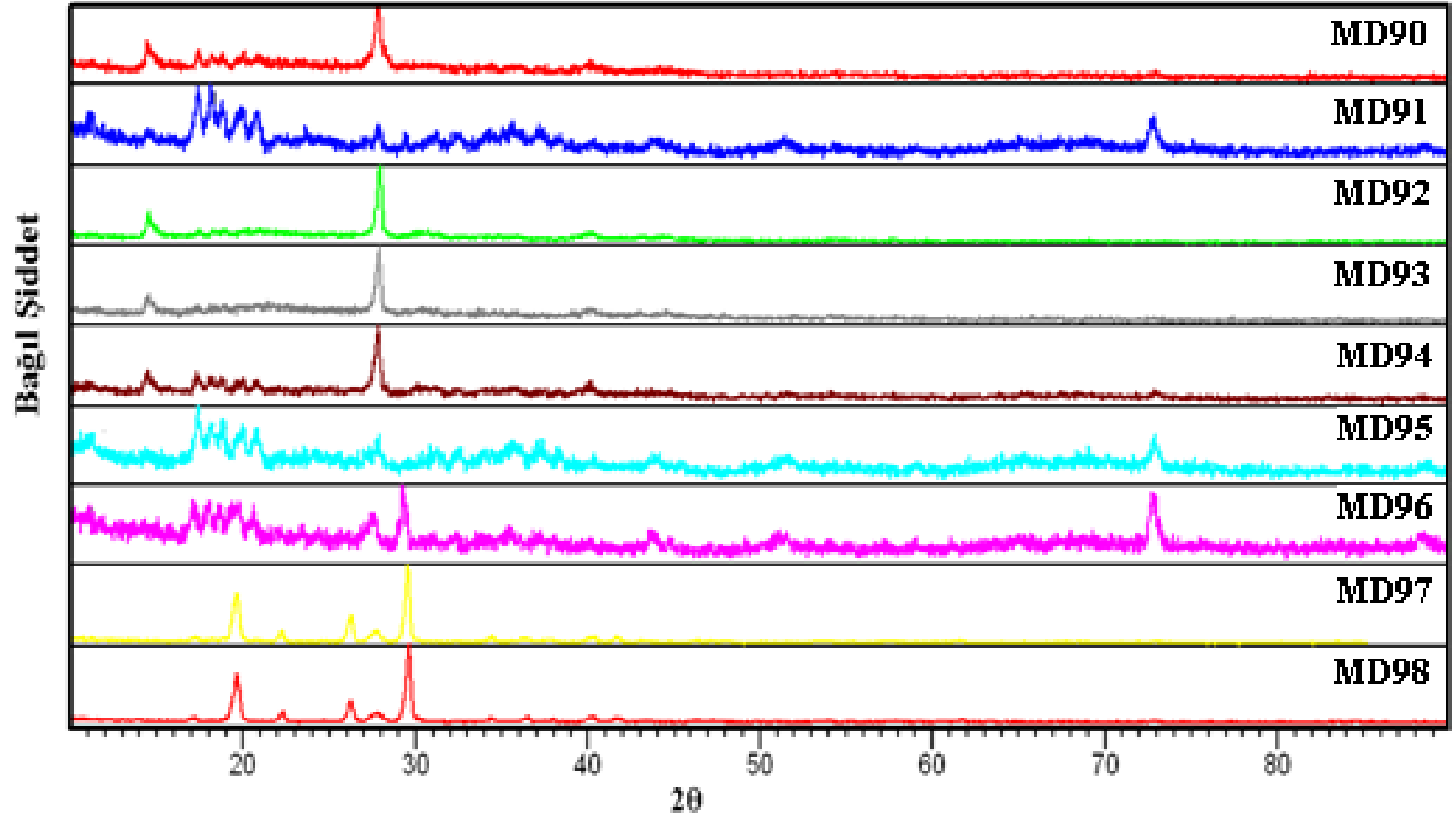
### 3.36 B/Üre (Kütlece Yüzde) Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.26:** B/Üre (kütlece yüzde) sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Kütlece Yüzde	Uygulanan İşlem	Hedeflenen ürün
MD90	B	%10 üre	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD91	B	%20 üre	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD92	B	%30 üre	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD93	B	%40 üre	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD94	B	%50 üre	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD95	B	%60 üre	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD96	B	%70 üre	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD97	B	%80 üre	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O
MD98	B	%90 üre	850 W/ 30 dk	B <sub>6</sub> O

### 3.37 B/Üre (Kütlece Yüzde) Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Bor elementine, kütlece %10-90 arasında ürenin katılarak yapıldığı, mikrodalga enerji deneyleri Tablo 3.26’ da görülmektedir. Şekil 3.31’ de MD90, MD91, MD92, MD93, MD94, MD95, MD96, MD97 ve MD98 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. Üre miktarının %10-50 olduğu aralıkta yeni bir bileşiğin meydana gelmediği, sadece başlangıç maddelerine ait piklerin olduğu gözlemlenmiştir. % 60-90 aralığında ise başlangıç maddelerinden farklı olarak, C<sub>3</sub>H<sub>3</sub>N<sub>3</sub>O<sub>3</sub> (ICDD:00-9046) bileşiğinin oluştuğu belirlenmiştir. Başlangıç maddesi olan elementel bor ise, amorf bir yapıda reaksiyona girmeden ortamda kalmıştır.



Şekil 3.31: MD90, MD91, MD92, MD93, MD94, MD95, MD96, MD97 ve MD98 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

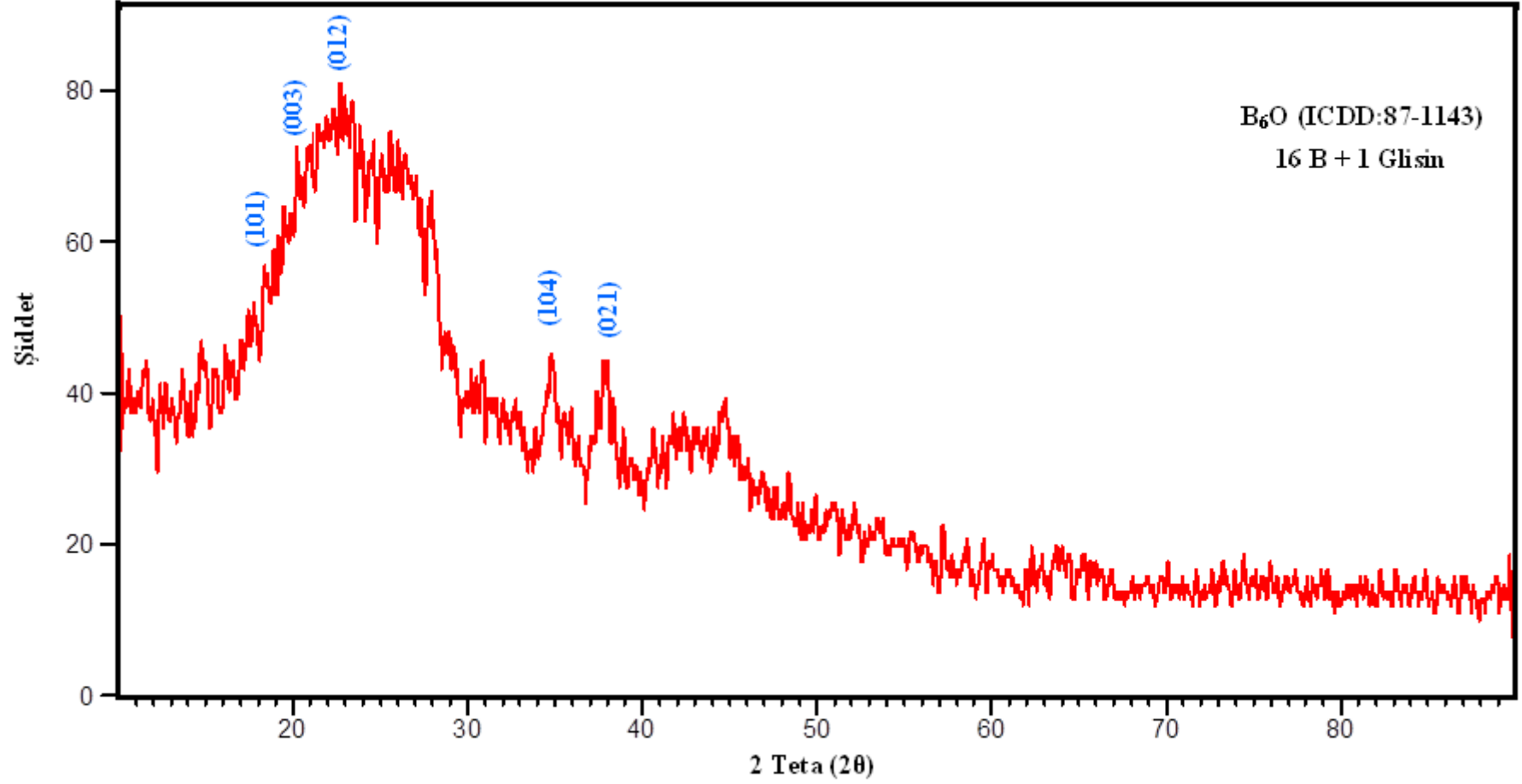
### 3.38 B/Glisin Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler

Tablo 3.27: B/Glisin sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan işlem	Hedeflenen ürün
MD99	B + glisin	16:1	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD100	B + glisin	15:1	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD101	B + glisin	14:1	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD102	B + glisin	13:1	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD103	B + glisin	12:1	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD104	B + glisin	16:1	800 W/ 10+ 10 dk	B <sub>6</sub> O

### 3.39 B/Glisin Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.27' de verilen deneylerde elementel B ve glisin farklı mol oranlarında kullanılarak 20 dakika 800 W güçte mikrodalga enerjiye maruz bırakılmıştır. Bor ve glisinin 16:1 mol oranında kullanılmasıyla gerçekleştirilen deney sonucunda elde edilen ürüne ait X-ışınları toz kırınım desenleri Şekil 3.32' de verilmiştir. MD99 deneyi sonucunda elde edilen ürünün XRD desenleri literatür verileri ile karşılaştırıldığında çok net bir kristallenme olmamasına rağmen B<sub>6</sub>O (ICDD:87-1143) bileşiğine ait pikler ile uyduğu görülmektedir. B<sub>6</sub>O bileşiği rombohedral sistemde kristallenmiş olup, hücre parametreleri  $a = 5.367$  ve  $c = 12,325$  Å ve uzay grubu  $R\bar{3}m(166)$ ' dir. Hedef bileşimimiz olan B<sub>6</sub>O' ya ait piklerin varlığı bu yapının oluştuğunu gösterir. Ayrıca elde edilen bileşik, daha önce literatürde [26] sentezlenmiş olan amorf B<sub>6</sub>O' ya benzer olarak grimsi siyah renkte olup, oldukça sert bir yapıya sahiptir. B<sub>6</sub>O bileşiği literatürde platin katalizör varlığında elementel bor' un oksijen atmosferinde 1100-1400 °C sıcaklık ve uygun basınç altında oksidasyonu ile elde edilmiştir. Ayrıca, çeşitli yüksek sıcaklık ve basınç değerleri altında aşırı B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> varlığında toz haldeki elementel bor' un sinterleştirilmesiyle de sentezlenmiştir [36-40]. Tablo 3.28' de B<sub>6</sub>O bileşiğine ait teorik ve deneysel d değerleri verilmiştir.

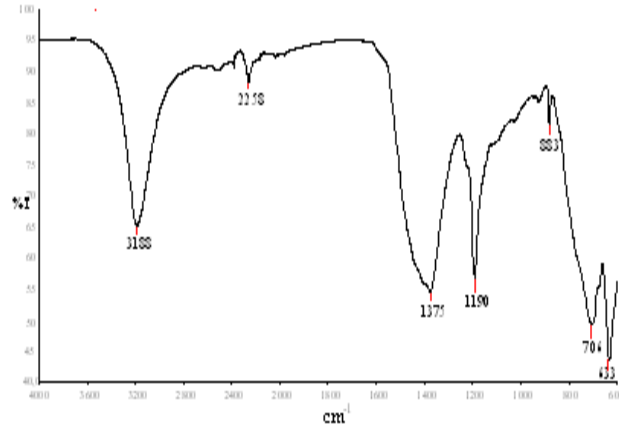


Şekil 3.32: MD99' a ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

**Tablo 3.28:** MD99' un X-ışını toz kırınım verileri.

$I/I_0$	$d_{\text{deneysel}} (\text{Å})$	$d_{\text{teorik}} (\text{Å})$	$h k l$
80.7	4,8010	-	-
87.2	4,6016	4.6172	0 0 3
100	3,9130	3.9241	0 1 2
71.9	2,5742	2.5796	1 0 4
64.2	2,3627	2.4394	0 2 1

Şekil 3.33' te MD99' a ait FTIR spektrumu görülmektedir. Tablo 3.29' da MD99 deneyine ait FTIR değerleri verilmiştir. Bu veriler literatür verileri ile uyuşmaktadır.

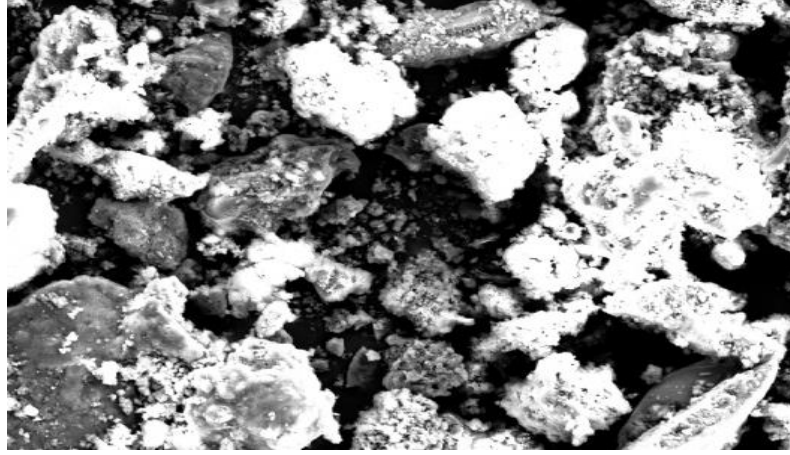


**Şekil 3.33:** MD99' a ait FTIR spektrumu.

**Tablo 3.29:** MD99' a ait FTIR verileri.

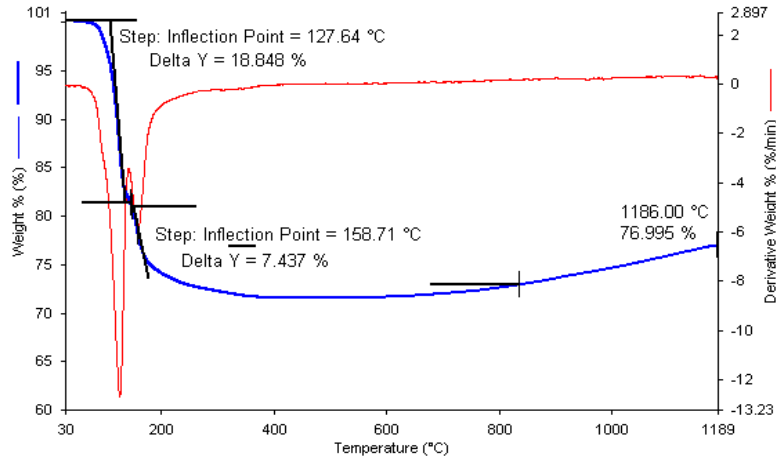
Gözlemlenen Dalga Sayısı, $\text{cm}^{-1}$	Titreşim Türü
1375	$\nu(\text{BO}_3)$ [109]
1190	$\nu_{\text{as}}(\text{BO}_3)$ [110], $\nu_3(\text{BO}_3)$ [108, 107] $\nu(\text{BO}_4)$ [109]
883	$\delta_{\text{dd}}(\text{BO}_3)$ [110], $\nu(\text{BO}_4)$ [109, 104]
706	$\delta_{\text{dd}}(\text{BO}_3)$ [110] $\nu_2(\text{BO}_3)$ [107]
633	$\delta_{\text{di}}(\text{BO}_3)$ [110], $\nu_2(\text{BO}_3)$ [107] $\nu_4(\text{BO}_3)$ [106, 108, 111]

MD99 numunesine ait SEM görüntüsü Şekil 3.34' te verilmiştir. Net bir kristallenme meydana gelmediği için homojen bir dağılım söz konusu değildir.



Şekil 3.34: Numune MD99' a ait SEM fotoğrafı.

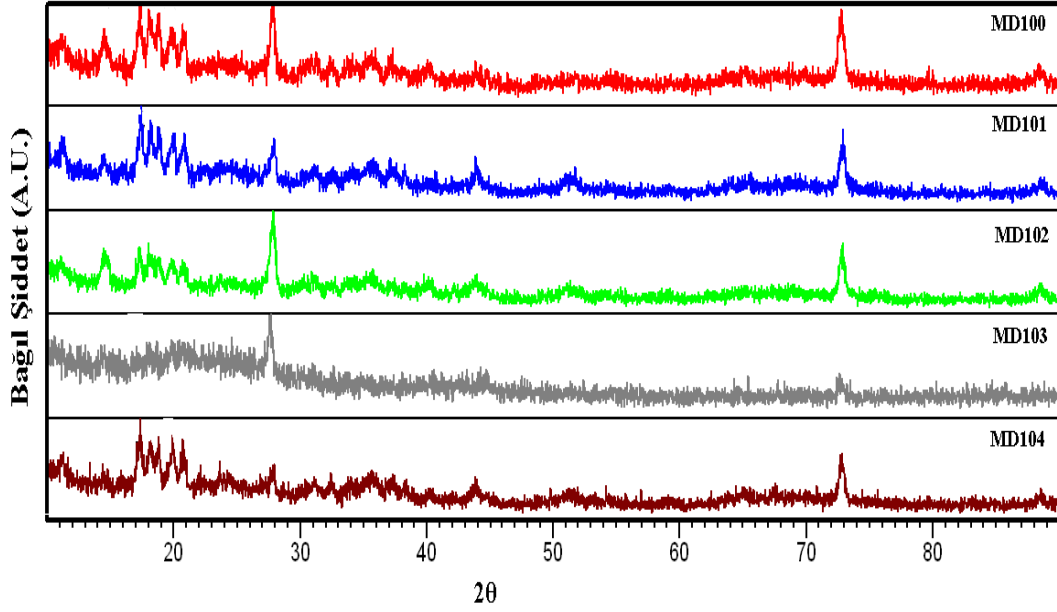
Şekil 3.35' de MD99 kodlu numuneye ait TG/DTA grafiği verilmiştir. 100-150 °C aralığında meydana gelen % 25' lik kütle kaybı, sentezlerin açık havada gerçekleştirilmesinden dolayı bileşiğin yüzeyinde tutunmuş olan sudan meydana gelmiştir. Bu aralıkta meydana gelen kütle kaybının dışında başka herhangi bir kütle kaybının meydana gelmemesi, molekülün 200-1200 °C aralığında son derece kararlı olduğunu göstermektedir.



Şekil 3.35: MD99' a ait TG/DTA grafiği.

MD100, MD101, MD102, MD103 ve MD104 kodlu deneylere ait X-ışınları toz kırınım desenleri Şekil 3.36' da verilmiştir. XRD desenleri literatür ile karşılaştırıldığında başlangıç maddelerinin reaksiyona girmeden ortamda kaldığı görülmektedir.





Şekil 3.36: MD100, MD101, MD102, MD103 ve MD104 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.40 B/Glisin (Kütlece Yüzde) Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler

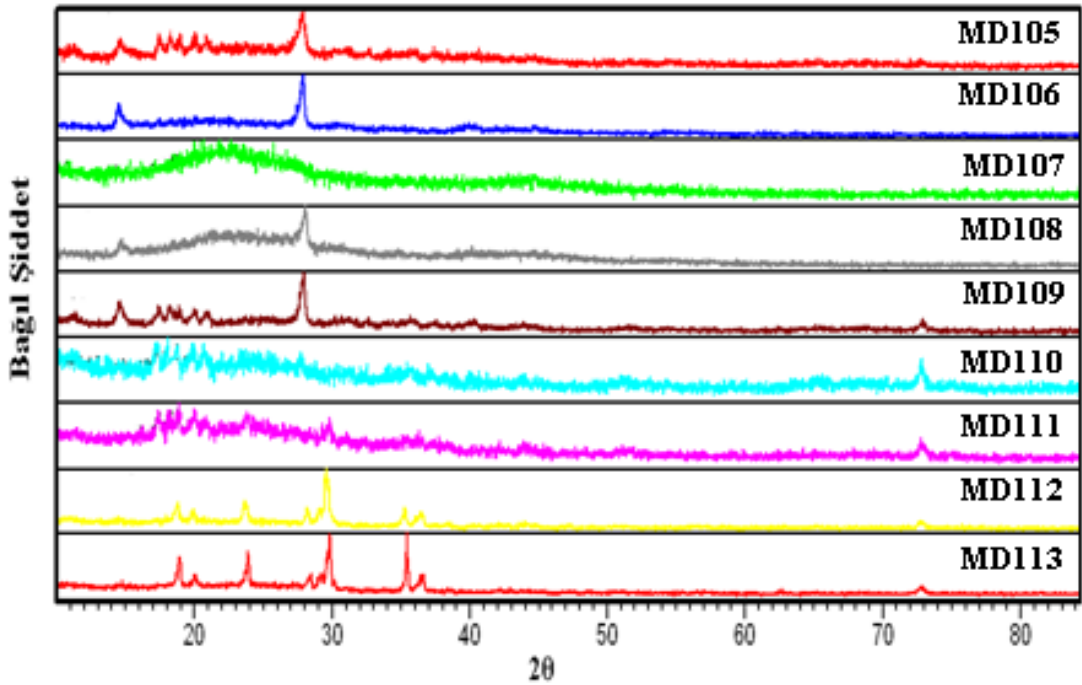
Tablo 3.30: B/Glisin (kütlece yüzde) sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Yüzde oranları	Uygulanan işlem	Hedeflenen ürün
MD105	B	%10 glisin	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD106	B	%20 glisin	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD107	B	%30 glisin	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD108	B	%40 glisin	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD109	B	%50 glisin	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD110	B	%60 glisin	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD111	B	%70 glisin	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD112	B	%80 glisin	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD113	B	%90 glisin	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O

### 3.41 B/Glisin (Kütlece Yüzde) Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.30' da verilen deneylerde, B elementine, kütlece yüzde %10-90 oranında glisin katılarak 800 W güçte mikrodalga enerjije 20 dakika süreyle maruz

birakılmıştır. Şekil 3.37’ de MD105, MD106, MD107, MD108, MD109, MD110, MD111, MD112 ve MD113 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. Kütlece % 10, % 20, % 40 ve % 50 oranında glisin içeren numunelerin XRD desenleri incelendiğinde,  $H_3BO_3$  (ICDD:24-0998) bileşiğine ait piklerin bulunduğu görülmüştür. Kütlece % 50-90 oranlarında glisin içeren deneylerin XRD desenleri incelendiğinde; başlangıç maddelerine ve  $CH_6N_6O_5$  (ICDD:28-1712) ait piklere rastlanmıştır. % 30 oranında glisin içeren numunenin XRD deseninin ise karakteristik amorf özellikte olduğu görülmektedir. % 30 oranında glisin kullanıldığında bir reaksiyonun meydana geldiği; ancak kontrollü soğuma ortamı sağlanamadığından dolayı kristallenmenin gerçekleşmediği anlaşılmaktadır.



Şekil 3.37: MD105, MD106, MD107, MD108, MD109, MD110, MD111, MD112 ve MD113 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

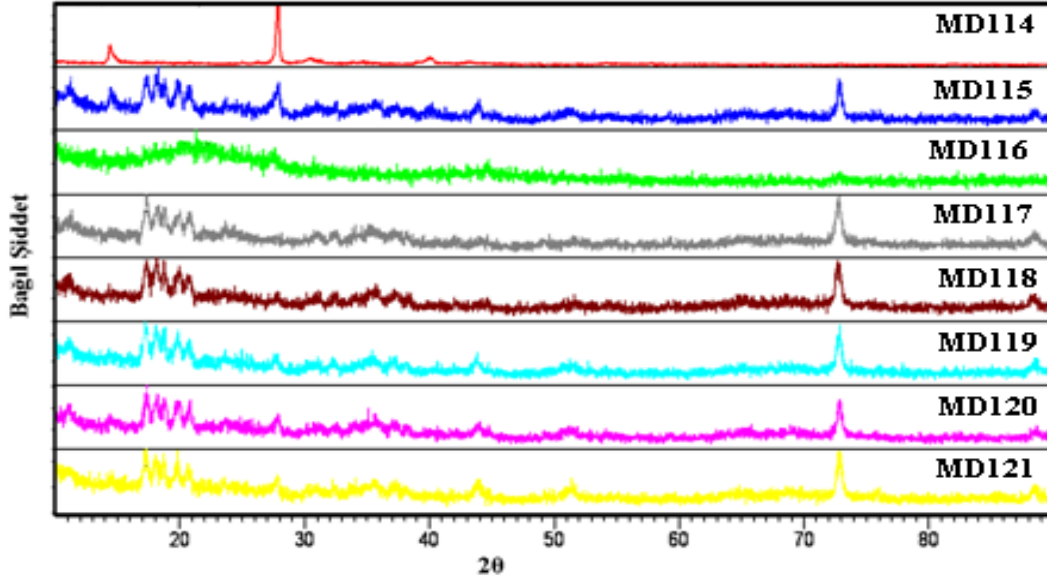
### 3.42 B/Glisin (Kütlece Yüzde 22-38 Glisin) Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.31:** B/Glisin (kütlece yüzde 22-38 glisin) sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Yüzde oranları	Uygulanan işlem	Hedeflenen ürün
MD114	B	%22 glisin	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD115	B	%24 glisin	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD116	B	%26 glisin	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD117	B	%28 glisin	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD118	B	%32 glisin	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD119	B	%34 glisin	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD120	B	%36 glisin	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O
MD121	B	%38 glisin	800 W/ 20 dk	B <sub>6</sub> O

### 3.43 B/Glisin (Kütlece Yüzde 22-38 Glisin) Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

MD107 deneyinde amorf özellik gösteren ürün elde edilmesinden dolayı Tablo 3.31’ de B elementine kütlece yüzde % 22-38 oranında glisin katılarak yeni mikrodalga deneyler yapılmıştır. Şekil 3.38’ de MD114, MD115, MD116, MD117, MD118, MD119, MD120 ve MD121 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. Kütlece % 22 oranında glisin içeren numunenin (MD114) XRD desenleri literatür ile karşılaştırıldığında H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> (ICDD:24-0998) bileşiğine ait piklere rastlanmıştır. Kütlece %24 oranında glisin içeren numunenin (MD115) XRD desenleri literatür ile karşılaştırıldığında H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> (ICDD:24-0998) bileşiğine ait piklerin yanı sıra başlangıç maddesi olan B’ ye ait piklere de rastlanmıştır. Kütlece % 28, % 32, % 34, % 36 ve % 38 oranlarında glisin içeren numunelerin desenleri literatür ile karşılaştırıldığında başlangıç maddesine ait karakteristik piklerin var olduğu belirlenmiştir. Kütlece % 26 oranında glisin içeren deney sonucu elde edilen ürünün XRD deseni incelendiğinde reaksiyonun meydana geldiği fakat kristallenmenin iyi olmadığı amorf özelliğe benzer yapının oluştuğu görülmektedir.



Şekil 3.38: MD114, MD115, MD116, MD117, MD118, MD119, MD120 ve MD121 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

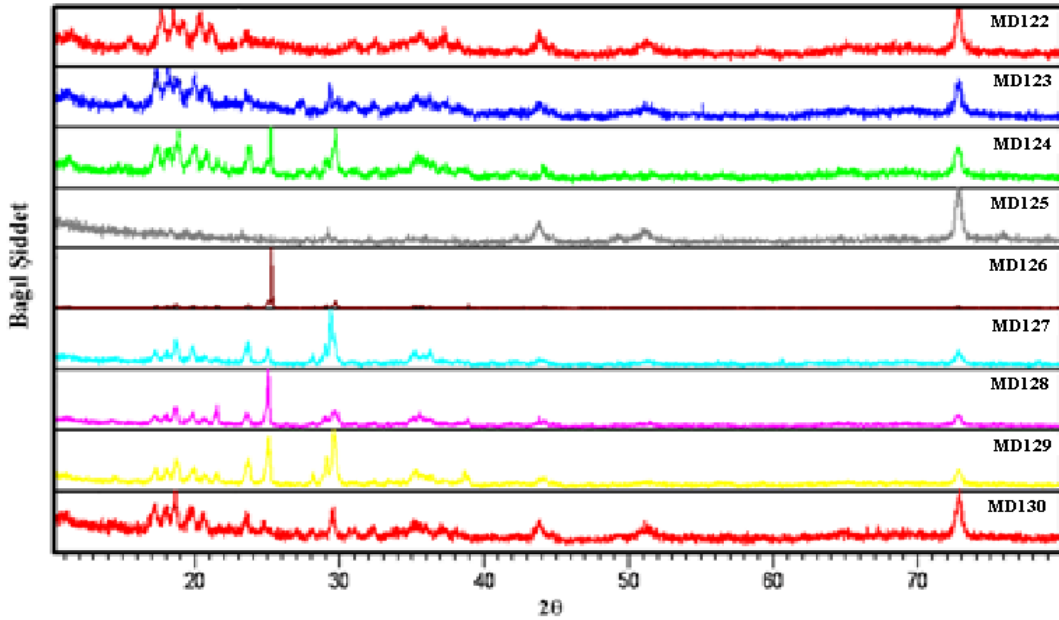
### 3.44 B/Glisin (Kütlece Yüzde 22-38 Glisin) Sisteminde Azot Atmosferinde Gerçekleştirilen Deneyler

Tablo 3.32: B/Glisin (kütlece yüzde 22-38 glisin) sisteminde azot atmosferinde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Yüzde oranları	Uygulanan işlem	Hedeflenen ürün
MD122	B	%22 glisin	800 W/ 20 dk / Azot atmosferi	B <sub>6</sub> O
MD123	B	%24 glisin	800 W/ 20 dk / Azot atmosferi	B <sub>6</sub> O
MD124	B	%26 glisin	800 W/ 20 dk / Azot atmosferi	B <sub>6</sub> O
MD125	B	%28 glisin	800 W/ 20 dk / Azot atmosferi	B <sub>6</sub> O
MD126	B	%30 glisin	800 W/ 20 dk / Azot atmosferi	B <sub>6</sub> O
MD127	B	%32 glisin	800 W/ 20 dk / Azot atmosferi	B <sub>6</sub> O
MD128	B	%34 glisin	800 W/ 20 dk / Azot atmosferi	B <sub>6</sub> O
MD129	B	%36 glisin	800 W/ 20 dk / Azot atmosferi	B <sub>6</sub> O
MD130	B	%38 glisin	800 W/ 20 dk / Azot atmosferi	B <sub>6</sub> O

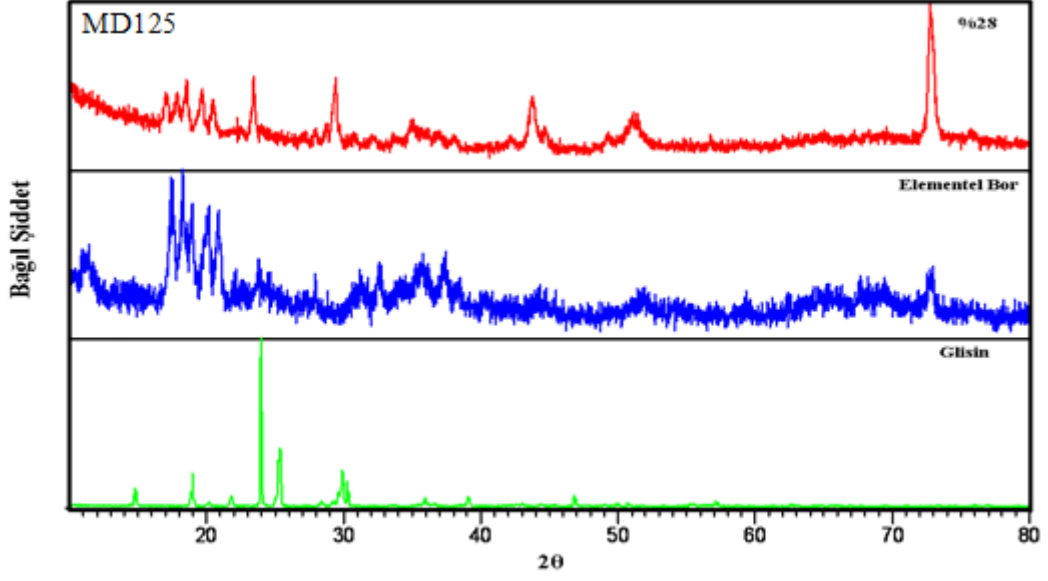
### 3.45 B/Glisin (Kütlece Yüzde 22-38 Glisin) Sisteminde Azot Atmosferinde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Kütlece % 22-38 oranlarında glisinin, B elementine katılmasıyla azot atmosferinde kapalı cam sisteminde, mikrodalga enerjiyle gerçekleştirilen deneyler Tablo 3.32’ de verilmiştir. Şekil 3.39’ da MD122, MD123, MD124, MD125, MD126, MD127, MD128, MD129 ve MD130 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. Kütlece % 22, % 24, % 26, % 32, % 34, % 36 ve % 38 oranlarında glisin içeren ve azot atmosferinde gerçekleştirilen deneylere ait XRD toz kırınım verileri literatür değerleri ile karşılaştırıldığında başlangıç maddelerinden elementel bor’ a ait piklere rastlanmıştır. Ancak, bunun yanı sıra tanımlanamayan piklerin varlığı yeni bir ürünün oluştuğunu da göstermektedir.



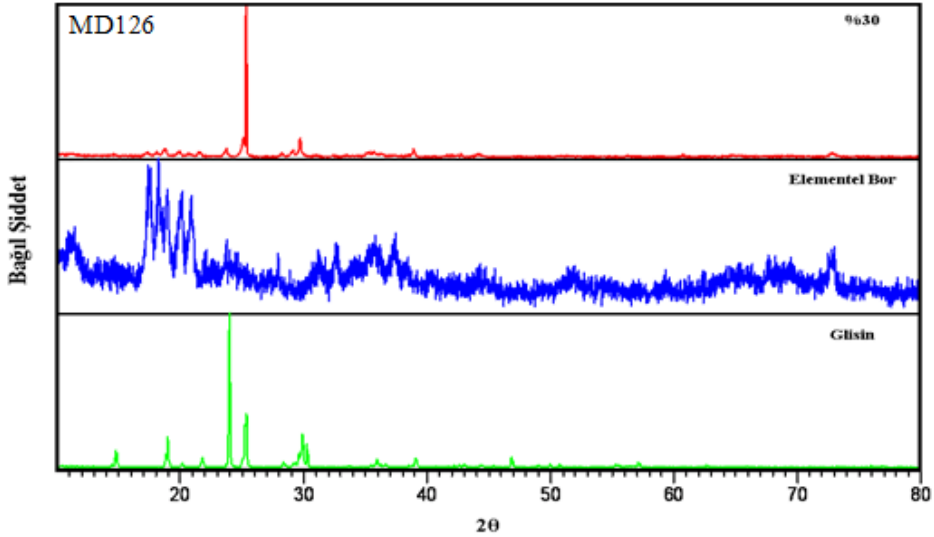
Şekil 3.39: MD122, MD123, MD124, MD125, MD126, MD127, MD128, MD129 ve MD130 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

Şekil 3.40’ ta başlangıç maddeleri ve kütlece % 28 oranında glisin içeren deneye ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. XRD desenleri incelendiğinde başlangıç maddelerinden bora ait piklerinin yanı sıra başka pikler de görülmüştür. Fakat kristallenmenin tam olmamasından dolayı yeni yapı aydınlatılamamıştır.



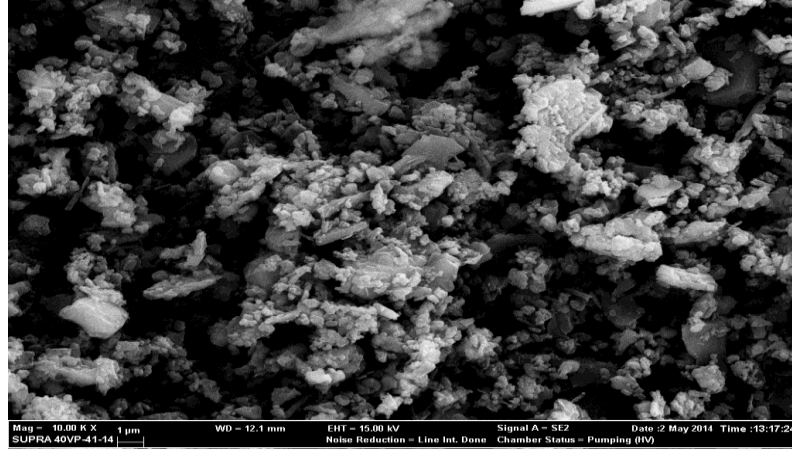
Şekil 3.40: MD125, elementel bor ve glisine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

Şekil 3.41’ de başlangıç maddeleri ve kütlece % 30 oranında glisin içeren deneye ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. X-ışınları toz kırınım desenleri literatür verileri ile karşılaştırıldığında  $H_4N_2O_3$  (ICSD:03-1543) ve  $CH_3BN_2$  (ICSD:00-5165) bileşiklerinin meydana geldiği belirlenmiştir.



Şekil 3.41: MD126, elementel bor ve glisin’ e ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

MD126 numunesine ait SEM görüntüsü Şekil 3.42’ de verilmiştir. Örneğin yapısında homojen bir görünüm olmaması, saflık derecesinin düşük olduğunu göstermektedir.



Şekil 3.42: MD126’ ya ait SEM fotoğrafı.

### 3.46 H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>/C Sisteminde Gerçekleştirilen Deneyler

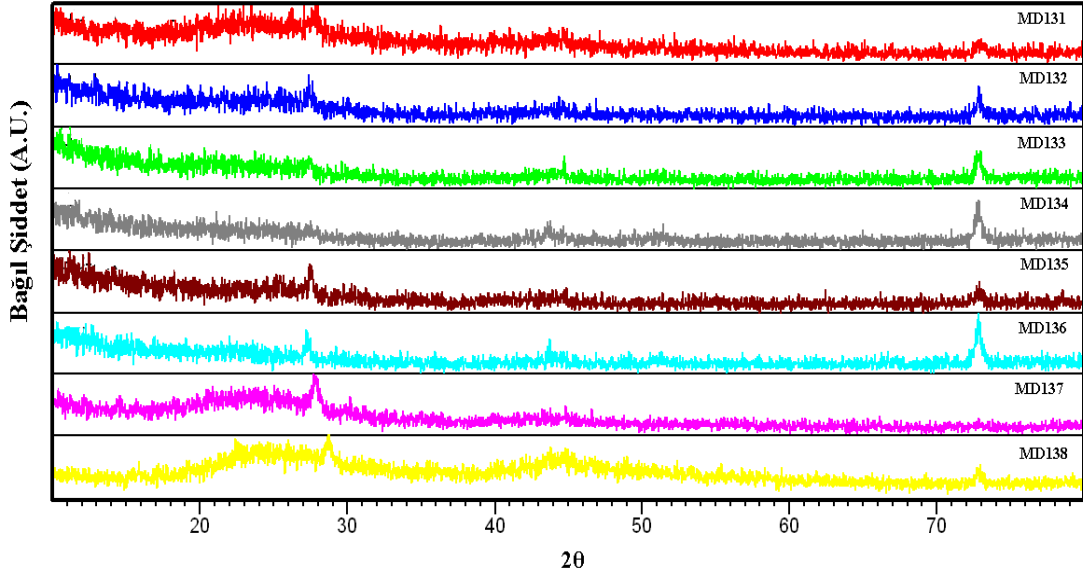
Tablo 3.33: H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>/C sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan işlem	Hedeflenen ürün
MD131	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + C	4:1	800 W/ 10 dk	B <sub>6</sub> O
MD132	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + C	4:7	800 W/ 10 dk	B <sub>6</sub> O
MD133	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + C	4:10	800 W/ 10 dk	B <sub>6</sub> O
MD134	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + C	1:1	800 W/ 10 dk	B <sub>6</sub> O
MD135	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + C	2:10	800 W/ 10 dk	B <sub>6</sub> O
MD136	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + C	4:3	800 W/ 10 dk	B <sub>6</sub> O
MD137	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + C	4:3	800 W 10 dk	B <sub>6</sub> O
MD138	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + C	4:3	MD137 kodlu deney 500 °C’ de 2 saat ısıtıldı	B <sub>6</sub> O

### 3.47 H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>/C Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.33’ te farklı mol oranlarında H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>/C sistemindeki numuneler, 800 W güçte 10 dakika mikrodalga enerjiye maruz bırakılmıştır. MD131, MD132,

MD133, MD134, MD135, MD136, MD137 ve MD138 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri Şekil 3.43’ te verilmiştir. XRD desenleri literatür verileri ile karşılaştırıldığında başlangıç maddesi olan  $H_3BO_3$ ’ ün reaksiyona girmeden ortamda kaldığı bulunmuştur.



Şekil 3.43: MD131, MD132, MD133, MD134, MD135, MD136, MD137 ve MD138 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.48 $H_3BO_3/C$ Sisteminde Azot Atmosferinde Gerçekleştirilen Deneyler

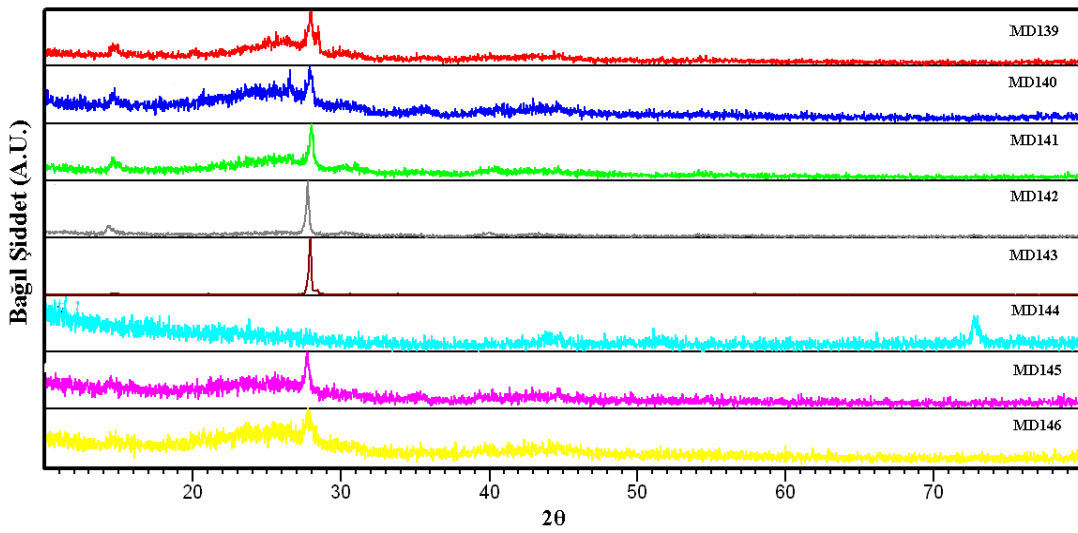
Tablo 3.34:  $H_3BO_3/C$  sisteminde azot atmosferinde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan işlem	Hedeflenen ürün
MD139	$H_3BO_3 + C$	2:7	800 W/ 20 dk Azot atmosferi	$B_4C$
MD140	$H_3BO_3 + C$	2:7	800 W/ 10 dk Azot atmosferi	$B_4C$
MD141	$H_3BO_3 + C$	2:7	600 W/ 10 dk Azot atmosferi	$B_4C$
MD142	$H_3BO_3 + C$	2:7	360 W/ 10 dk Azot atmosferi	$B_4C$
MD143	$H_3BO_3 + C$	4:3	800 W 10 dk Azot atmosferi	$B_4C$
MD144	$H_3BO_3 + C$	2:7	MD141 kodlu deney 750 $^{\circ}C$ ' de 2 saat bekletildi	$B_4C$
MD145	$H_3BO_3 + C$	2:7	MD142 kodlu deney 500 $^{\circ}C$ ' de 2 saat bekletildi	$B_4C$
MD146	$H_3BO_3 + C$	2:7	MD143 kodlu deney 500 $^{\circ}C$ ' de 2 saat bekletildi	$B_4C$



### 3.49 H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>/C Sisteminde Azot Atmosferinde Gerçekleştirilen Deneilerin Sonuçları

Tablo 3.34' te farklı mol oranlarında H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>/C sistemindeki numuneler, azot atmosferinde, 10 dakika süreyle farklı güçlerdeki mikrodalga enerjiye maruz bırakılmıştır. Şekil 3.44' te MD139, MD140, MD141, MD142, MD143, MD144 MD145 ve MD146 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. XRD desenleri literature verileri ile karşılaştırıldığında tüm deneylerde H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>' ün reaksiyona girmeden ortamda kaldığı görülmüştür.



Şekil 3.44: MD139, MD140, MD141, MD142, MD143, MD144 MD145 ve MD146 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

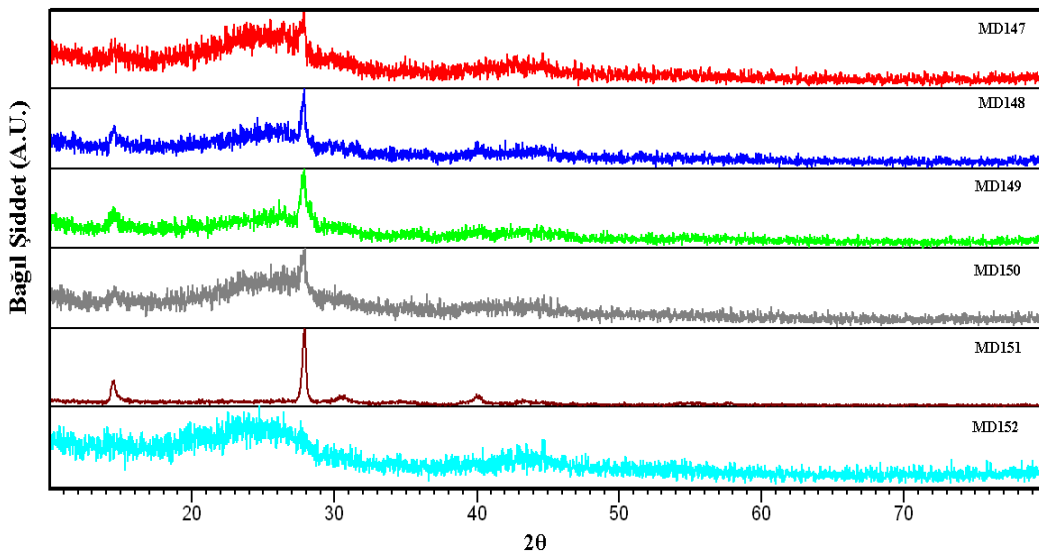
### 3.50 B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/C Sisteminde Azot Atmosferinde Gerçekleştirilen Deneyler

Tablo 3.35: B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/C sisteminde azot atmosferinde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan işlem	Hedeflenen ürün
MD147	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> +C	2:1	800 W/ 10 dk Azot atmosferi	B <sub>4</sub> C
MD148	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> +C	3:1	800 W/ 10 dk Azot atmosferi	B <sub>4</sub> C
MD149	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> +C	3.5:1	800 W/ 10 dk Azot atmosferi	B <sub>4</sub> C
MD150	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> +C	4:1	800 W/ 10 dk Azot atmosferi	B <sub>4</sub> C
MD151	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> +C	10:1	800 W/ 10 dk Azot atmosferi	B <sub>4</sub> C
MD152	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> +C	2:7	800 W/ 10 dk Azot atmosferi	B <sub>4</sub> C

### 3.51 B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/C Sisteminde Azot Atmosferinde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Farklı mol oranlarında B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve C sisteminde, azot atmosferinde 800 W güçte, 10 dakika süreyle gerçekleştirilen deneyler Tablo 3.35’ te verilmiştir. Şekil 3.45’ te verilen MD147, MD148, MD149, MD150, MD151 ve MD152 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri literatür verileri ile karşılaştırıldığında piklerin başlangıç maddesi olan B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>’ e ait olduğu belirlenmiştir. MD152 kodlu deney sonucunda elde edilen ürünün XRD deseni ise amorf yapıya benzer özellik göstermektedir.



Şekil 3.45: MD147, MD148, MD149, MD150, MD151 ve MD152 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.52 Mg/B (Elementel B veya H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>) ve/veya Aktif Karbon Sisteminde Oksijen veya Azot Atmosferinde Gerçekleştirilen Deneyler

Tablo 3.36: Mg/B (elementel B veya H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>) ve/veya aktif karbon sisteminde oksijen veya azot atmosferinde gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

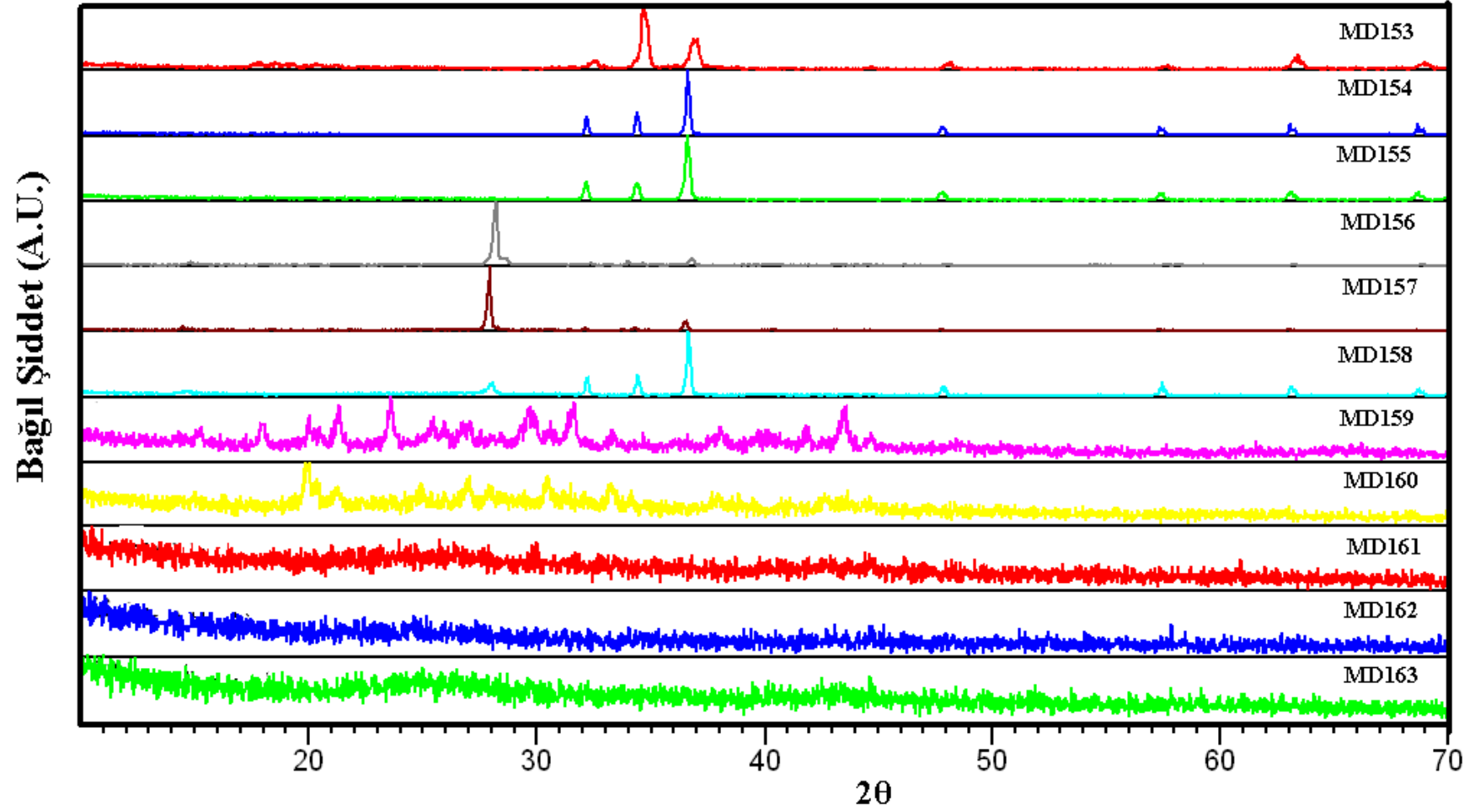
Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan işlem	Hedeflenen ürün
MD153	B + şerit Mg	1:1	800 W/ 15 dk	MgB <sub>2</sub>
MD154	B + toz Mg	1:1	800 W/ 15 dk/ Azot atmosferi	MgB <sub>2</sub>
MD155	B + toz Mg + C	1:1:1	800 W/ 15 dk/ Azot atmosferi	MgB <sub>2</sub>
MD156	toz Mg + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + C	1:2:3	360 W/ 15 dk/ Azot atmosferi	MgB <sub>2</sub>
MD157	toz Mg + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + C	1:2:3	800 W/ 15 dk/ Azot atmosferi	MgB <sub>2</sub>
MD158	toz Mg + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + C	1:1:1	800 W/ 15 dk/ Azot atmosferi	MgB <sub>2</sub>
MD159	Mg(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> .6H <sub>2</sub> O+ H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	1:1	800 W/15 dk	MgB <sub>2</sub>

Tablo 3.36 (Devam)

MD160	$Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O + H_3BO_3 + C$	1:1:1	800 W/ 15 dk/ Azot atmosferi	$MgB_2$
MD161	$Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O + H_3BO_3 + C$	1:1:1	800 W/ 15 dk/ Azot atmosferi	$MgB_2$
MD162	$Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O + H_3BO_3 + C$	1:1:1	MD161 kodlu deney 350 °C' de 2 saat bekletildi	$MgB_2$
MD163	$Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O + H_3BO_3 + C$	1:1:1	MD162 kodlu deney 350 °C' de 2 saat bekletildi	$MgB_2$

### 3.53 Mg, B (Elementel B veya $H_3BO_3$ ) ve/veya Aktif Karbon Sisteminde Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.36' da Mg, B (elementel B veya  $H_3BO_3$ ) ve/veya aktif karbon sisteminde gerçekleştirilen deneyler verilmiştir. Şekil 3.46' da verilen MD153, MD154, MD155, MD156, MD157, MD158, MD159 ve MD160 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri literatür verileri ile karşılaştırıldığında piklerin başlangıç maddelerine ait olduğu belirlenmiştir. MD161, MD162 ve MD163 kodlu deneylerin XRD desenleri ise amorf yapıya benzer özellik göstermektedir.



Şekil 3.46: MD153, MD154, MD155, MD156, MD157, MD158, MD159, MD160, MD161, MD162 ve MD163 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

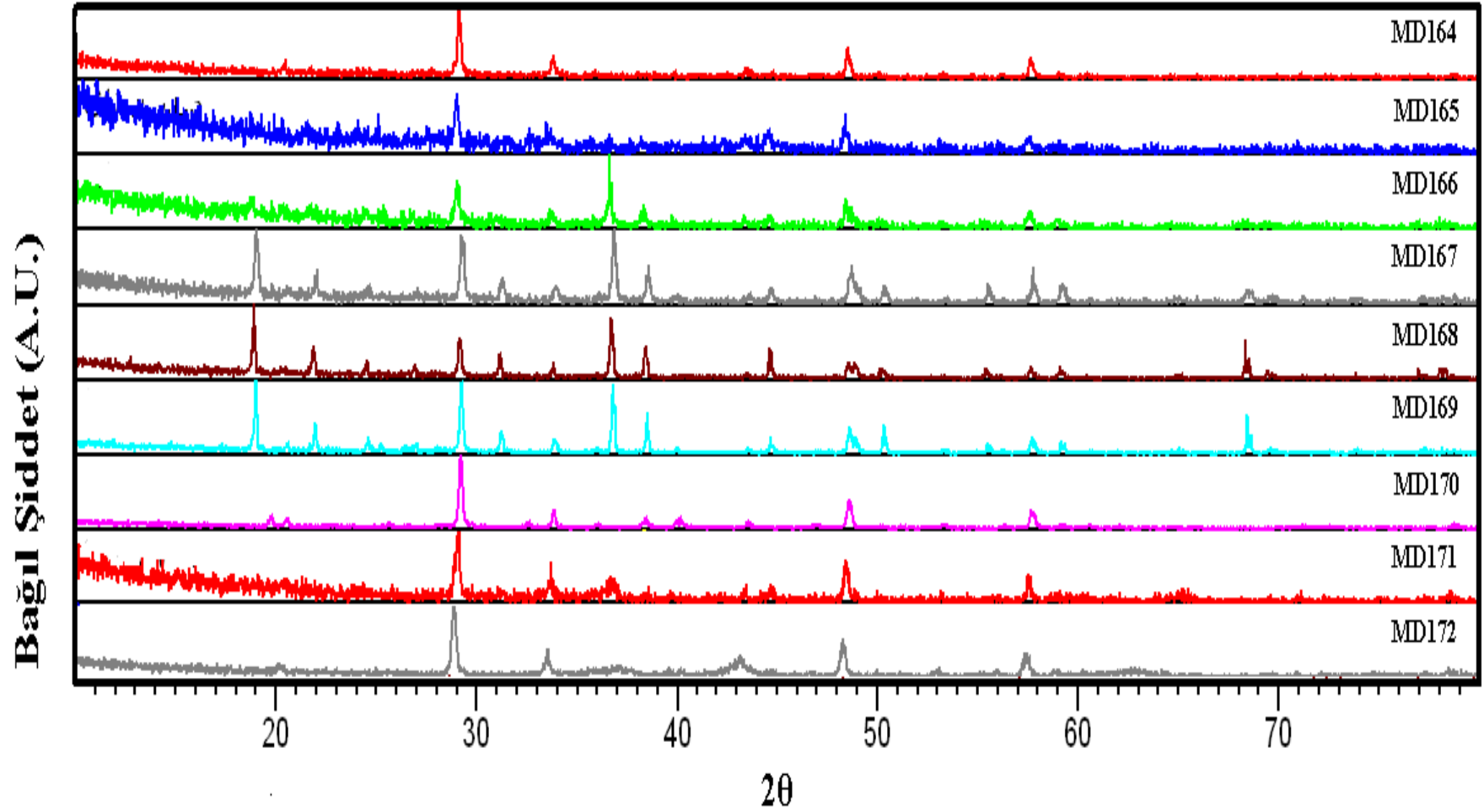
### 3.54 $M^{2+}$ (Ba, Sr, Co, Ni)/ $Y_2O_3$ / $H_3BO_3$ /Üre Sisteminde Mikrodalga Yöntem Kullanılarak Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.37:**  $M^{2+}$  (Ba, Sr, Co, Ni)/  $Y_2O_3$  / $H_3BO_3$  üre sisteminde mikrodalga yöntem kullanılarak gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan işlem	Hedeflenen ürün
MD164	Ba(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> + Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + üre	3:2:4:10	800 W/ 10 dk	Ba <sub>3</sub> Y <sub>2</sub> (BO <sub>3</sub> ) <sub>4</sub>
MD165	Ba(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> + Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	3:2:4	800 W/ 10 dk	Ba <sub>3</sub> Y <sub>2</sub> (BO <sub>3</sub> ) <sub>4</sub>
MD166	Ba(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> + Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + üre	3:1:4:10	800 W/ 10 dk	Ba <sub>3</sub> Y <sub>2</sub> (BO <sub>3</sub> ) <sub>4</sub>
MD167	Ba(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> + Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + üre	3:0.8:4:10	800 W/ 10 dk	Ba <sub>3</sub> Y <sub>2</sub> (BO <sub>3</sub> ) <sub>4</sub>
MD168	Ba(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> + Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + üre	3:0.5:4:10	800 W/ 10 dk	Ba <sub>3</sub> Y <sub>2</sub> (BO <sub>3</sub> ) <sub>4</sub>
MD169	Ba(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> + Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + üre	3:1:5:10	800 W/ 10 dk	Ba <sub>3</sub> Y <sub>2</sub> (BO <sub>3</sub> ) <sub>4</sub>
MD170	Sr(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> + Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + üre	3:2:4:10	800 W/ 10 dk	Sr <sub>3</sub> Y <sub>2</sub> (BO <sub>3</sub> ) <sub>4</sub>
MD171	Co(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> + Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + üre	3:1:4:10	800 W/ 10 dk	Co <sub>3</sub> Y <sub>2</sub> (BO <sub>3</sub> ) <sub>4</sub>
MD172	Ni(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> + Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + üre	3:1:4:10	800 W/ 10 dk	Ni <sub>3</sub> Y <sub>2</sub> (BO <sub>3</sub> ) <sub>4</sub>

### 3.55 $M^{2+}$ (Ba, Sr, Co, Ni)/ $Y_2O_3$ / $H_3BO_3$ /Üre Sisteminde Mikrodalga Yöntem Kullanılarak Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.37' de  $M^{2+}$  (Ba, Sr, Co, Ni)/  $Y_2O_3$  / $H_3BO_3$  /Üre sisteminde mikrodalga yöntem kullanılarak gerçekleştirilen deneyler verilmiştir. Şekil 3.47' de verilen MD164, MD165, MD166, MD167, MD168, MD169, MD170, MD171 ve MD172 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri literatür değerleri ile karşılaştırılmıştır. MD164, MD165, MD166, MD167, MD168 ve MD169 kodlu deneylerde Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> ve Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> başlangıç maddelerinin reaksiyona girmeden ortamda kaldığı belirlenmiştir. MD170 kodlu deneyin XRD desenleri literatür ile karşılaştırıldığında başlangıç maddelerinden Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Sr(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>' ye ait piklere rastlanmıştır. MD172 kodlu deneyin XRD verileri literatür ile karşılaştırıldığında mevcut olan piklerin başlangıç maddelerinden Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>' a ait olduğu belirlenmiştir.



Şekil 3.47: MD164, MD165, MD166, MD167, MD168, MD169, MD170, MD171 ve MD172 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

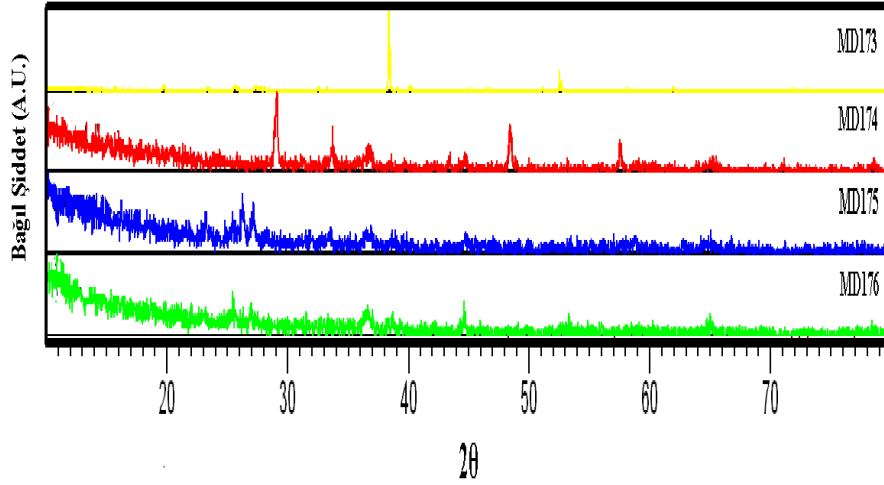
### 3.56 $M^{2+}$ (Ba, Sr, Co, Ni)/ $MoO_3$ / $H_3BO_3$ /Üre Sisteminde Mikrodalga Yöntem Kullanılarak Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.38:**  $M^{2+}$  (Ba, Sr, Co, Ni)/  $MoO_3$  / $H_3BO_3$  /üre sisteminde mikrodalga yöntem kullanılarak gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Uygulanan işlem	Hedeflenen ürün
MD173	$Sr(NO_3)_2 + MoO_3 + H_3BO_3 + üre$	3:1:4:10	800 W/ 10 dk	$Sr_3Mo(BO_3)_4$
MD174	$Co(NO_3)_2 + MoO_3 + H_3BO_3 + üre$	3:1:4:10	800 W/ 10 dk	$Co_3Mo(BO_3)_4$
MD175	$Co(NO_3)_2 + MoO_3 + H_3BO_3 + üre$	3:0.8:4:10	800 W/ 10 dk	$Co_3Mo(BO_3)_4$
MD176	$Ni(NO_3)_2 + MoO_3 + H_3BO_3 + üre$	3:1:4:10	800 W/ 10 dk	$Ni_3Mo(BO_3)_4$

### 3.57 $M^{2+}$ (Ba, Sr, Co, Ni)/ $MoO_3$ / $H_3BO_3$ /Üre Sisteminde Mikrodalga Yöntem Kullanılarak Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.38' de  $M^{2+}$  (Ba, Sr, Co, Ni)/  $MoO_3$  / $H_3BO_3$  /Üre sisteminde mikrodalga yöntem kullanılarak gerçekleştirilen deneyler verilmiştir. Şekil 3.48' de verilen MD173, MD174, MD175 ve MD176 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri literatür değerleri ile karşılaştırılmıştır. MD173 kodlu deneyin XRD desenleri literatür ile karşılaştırıldığında başlangıç maddelerinden  $MoO_3$  ve  $Sr(NO_3)_2$ ' ye ait piklerin varlığı gözlemlenmiştir. MD174 kodlu deneyin XRD desenleri literatür ile karşılaştırıldığında piklerin başlangıç maddelerinden  $Y_2O_3$ ' a ait olduğu belirlenmiştir. MD175 kodlu deneyin XRD desenleri literatür ile karşılaştırıldığında başlangıç maddelerinden  $MoO_3$ ' e ait piklerin varlığı gözlemlenmiştir. MD176 kodlu deneyin XRD desenleri literatür ile karşılaştırıldığında sırasıyla  $MoO_3$  ve  $NiMoO_4$  bileşiklerinin varlığına rastlanmıştır.



Şekil 3.48: MD173, MD174, MD175 ve MD176 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.58 $M^{2+}$ (Ba, Sr, Co, Ni)/ $Y_2O_3$ / $H_3BO_3$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler

Tablo 3.39:  $M^{2+}$  (Ba, Sr, Co, Ni)/  $Y_2O_3$  / $H_3BO_3$  sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Yüzde oranları	Uygulanan işlem	Hedeflenen ürün
KF1	$Ba(NO_3)_2 + Y_2O_3 + H_3BO_3$	3:1:4	900 °C/ 4 saat	$Ba_3Y_2(BO_3)_4$
KF2	$Sr(NO_3)_2 + Y_2O_3 + H_3BO_3$	3:1:4	900 °C/ 4 saat	$Sr_3Y_2(BO_3)_4$
KF3	$Co(NO_3)_2 + Y_2O_3 + H_3BO_3$	3:1:4	900 °C/ 4 saat	$Co_3Y_2(BO_3)_4$
KF4	$Ni(NO_3)_2 + Y_2O_3 + H_3BO_3$	3:1:4	900 °C/ 4 saat	$Ni_3Y_2(BO_3)_4$

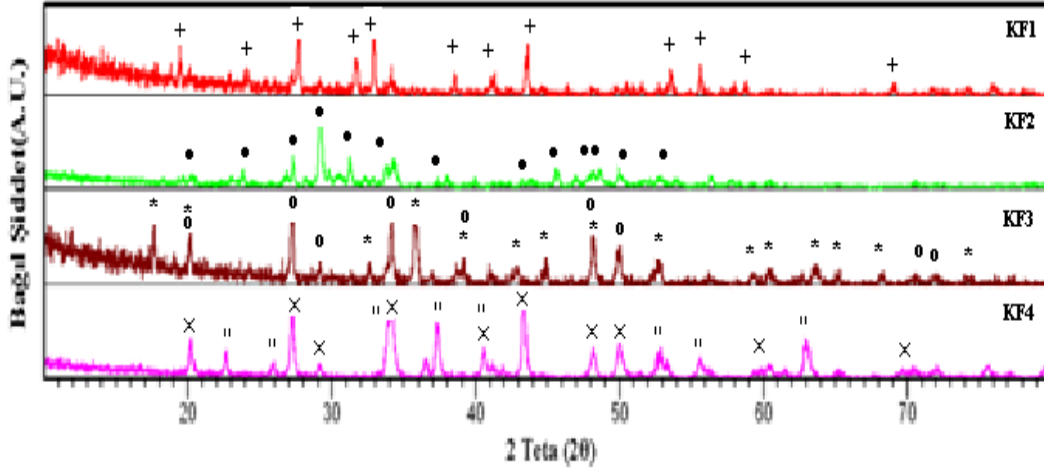
### 3.59 $M^{2+}$ (Ba, Sr, Co, Ni)/ $Y_2O_3$ / $H_3BO_3$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.39' da  $M^{2+}$  (Ba, Sr, Co, Ni)/  $Y_2O_3$  / $H_3BO_3$  /Üre sisteminde kül fırını yöntemi kullanılarak gerçekleştirilen deneyler verilmiştir. Şekil 3.49' da verilen KF1, KF2, KF3 ve KF4 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri literatür ile karşılaştırılmıştır. KF1 kodlu deney sonucunda,  $Ba_3Y(BO_3)_3$  (ICSD:09-9180), bileşiğinin meydana geldiği gözlemlenmiştir. KF2 kodlu deney sonucunda,  $Sr_3Y_2B_4O_{12}$  (ICSD:05-4759) bileşiğinin oluştuğu belirlenmiştir. Bu bileşik literatürde geleneksel kül fırını ve sol-jel metotları ile sentezlenmiştir [112]. KF3 kodlu deney sonucunda,  $YBO_3$  (ICSD:02-7942) ve  $Co_3BO_5$  (ICSD:09-3484) bileşiklerinin çift fazlı olarak meydana geldiği gözlemlenmiştir. KF4 kodlu deney



sonucunda ise,  $\text{Ni}_3\text{B}_2\text{O}_6$  (ICSD:00-2016) ve  $\text{YBO}_3$  (ICSD:10-9264) bileşiklerinin çift fazlı olarak meydana geldiği gözlemlenmiştir.

- ×  $\text{YBO}_3$  (ICSD:10-9264) / "  $\text{Ni}_3\text{B}_2\text{O}_6$  (ICSD:00-2016)
- \*  $\text{Co}_3\text{BO}_5$  (ICSD:09-3484) / o  $\text{YBO}_3$  (ICSD:02-7942)
- $\text{Sr}_3\text{Y}_2\text{B}_4\text{O}_{12}$  (ICSD:05-4759)
- +  $\text{Ba}_3\text{Y}(\text{BO}_3)_3$  (ICSD:09-9180)



Şekil 3.49: KF1, KF2, KF3 ve KF4 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.60 $\text{M}^{2+}$ (Ba, Sr, Co, Ni)/ $\text{MoO}_3/\text{H}_3\text{BO}_3$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler

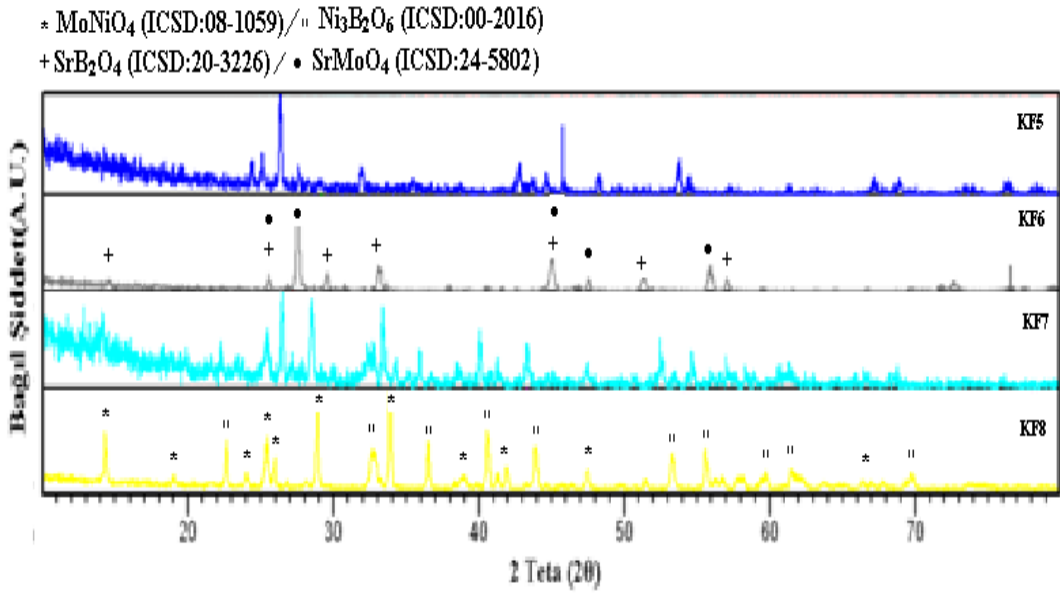
Tablo 3.40:  $\text{M}^{2+}$  (Ba, Sr, Co, Ni)/  $\text{MoO}_3/\text{H}_3\text{BO}_3$  sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Yüzde oranları	Uygulanan işlem	Hedeflenen ürün
KF5	$\text{Ba}(\text{NO}_3)_2 + \text{MoO}_3 + \text{H}_3\text{BO}_3$	3:2:4	900 °C/ 4 saat	$\text{Ba}_3\text{Mo}_2(\text{BO}_3)_4$
KF6	$\text{Sr}(\text{NO}_3)_2 + \text{MoO}_3 + \text{H}_3\text{BO}_3$	3:2:4	900 °C/ 4 saat	$\text{Sr}_3\text{Mo}_2(\text{BO}_3)_4$
KF7	$\text{Co}(\text{NO}_3)_2 + \text{MoO}_3 + \text{H}_3\text{BO}_3$	3:2:4	900 °C/ 4 saat	$\text{Co}_3\text{Mo}_2(\text{BO}_3)_4$
KF8	$\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 + \text{MoO}_3 + \text{H}_3\text{BO}_3$	3:2:4	900 °C/ 4 saat	$\text{Ni}_3\text{Mo}_2(\text{BO}_3)_4$

### 3.61 $\text{M}^{2+}$ (Ba, Sr, Co, Ni)/ $\text{MoO}_3/\text{H}_3\text{BO}_3$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.40' ta  $\text{M}^{2+}$  (Ba, Sr, Co, Ni)/  $\text{MoO}_3/\text{H}_3\text{BO}_3$  /Üre sisteminde kül fırını yöntemi kullanılarak gerçekleştirilen deneyler verilmiştir. Şekil 3.50' de verilen KF5, KF6, KF7 ve KF8 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri literatür ile

karşılaştırılmıştır. KF5 kodlu deney sonucunda, BaMoO<sub>4</sub> (ICSD:16-1851) bileşiğinin oluştuğu ve H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>'ün reaksiyona girmeden ortamda kaldığı görülmüştür. KF6 kodlu deney sonucunda, SrMoO<sub>4</sub> (ICSD:24-5802) ve SrB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (ICSD:20-3226) bileşiklerinin çift fazlı olarak meydana geldiği belirlenmiştir. KF7 kodlu deney sonucunda, Co<sub>3</sub>B<sub>2</sub>O<sub>6</sub> (ICSD:02-4035) bileşiğinin oluştuğu ve MoO<sub>3</sub>'ün reaksiyona girmedeği gözlemlenmiştir. KF8 kodlu deney sonucunda ise, MoNiO<sub>4</sub> (ICSD:08-1059) ve Ni<sub>3</sub>B<sub>2</sub>O<sub>6</sub> (ICSD:00-2016) bileşiklerinin çift fazlı olarak oluştuğu belirlenmiştir.



Şekil 3.50: KF5, KF6, KF7 ve KF8 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

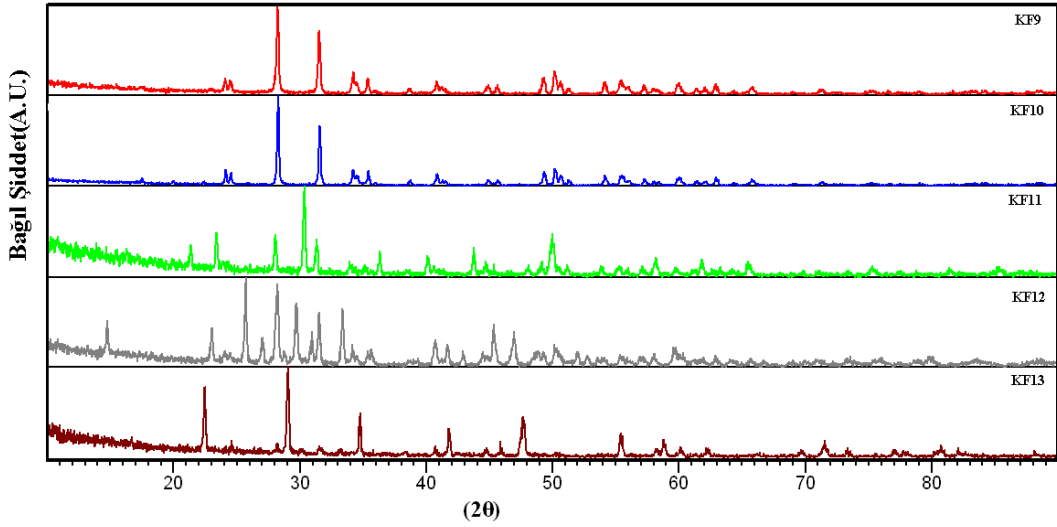
### 3.62 M<sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba)/ZrO<sub>2</sub>/H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler

Tablo 3.41: M<sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba)/ ZrO<sub>2</sub>/ H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Sentez koşulları	Hedeflenen ürün
KF9	BeO + ZrO <sub>2</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	1:1:2	900 °C/ 4 saat	BeZr(BO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
KF10	MgO + ZrO <sub>2</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	1:1:2	900 °C/ 4 saat	MgZr(BO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
KF11	CaO + ZrO <sub>2</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	1:1:2	900 °C/ 4 saat	CaZr(BO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
KF12	SrCO <sub>3</sub> + ZrO <sub>2</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	1:1:2	900 °C/ 4 saat	SrZr(BO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
KF13	BaCO <sub>3</sub> + ZrO <sub>2</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	1:1:2	900 °C/ 4 saat	BaZr(BO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>

### 3.63 $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba)/ $ZrO_2/H_3BO_3$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.41’ de verilen deneyler  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba)/ $ZrO_2/H_3BO_3$  sisteminde çeşitli sıcaklık ve sürelerde yüksek sıcaklık reaksiyonları ile gerçekleştirilmiştir. Şekil 3.51’ de KF9, KF10, KF11, KF12 ve KF13 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. KF9, KF10 ve KF11 deneylerinin XRD desenleri literatür ile karşılaştırıldığında başlangıç maddelerinden  $ZrO_2$  (ICSD:06-0900) bileşiğine ait pikler belirlenmiştir. KF12 deneyinin XRD desenleri literatür ile karşılaştırıldığında başlangıç maddelerinden  $ZrO_2$  (ICSD:06-0900)’ in reaksiyona girmeden ortamda kaldığı ve  $SrB_2O_4$  (ICSD:20-3226) bileşiğinin oluştuğu belirlenmiştir. KF13 deneyinin XRD desenleri literatür ile karşılaştırıldığında  $BaZr(BO_3)_2$  (ICSD:09-5527) bileşiğinin oluştuğu belirlenmiştir. Bu bileşik literatürde,  $BaCO_3$ ,  $H_3BO_3$  ve  $ZrO_2$  bileşikleri kullanılarak çeşitli ön kalsinasyon işlemlerinin ardından  $1250\text{ }^\circ\text{C}$ ’ de 24 saat süreyle flaks yöntemiyle elde edilmiştir [113].



Şekil 3.51: KF9, KF10, KF11, KF12 ve KF13 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

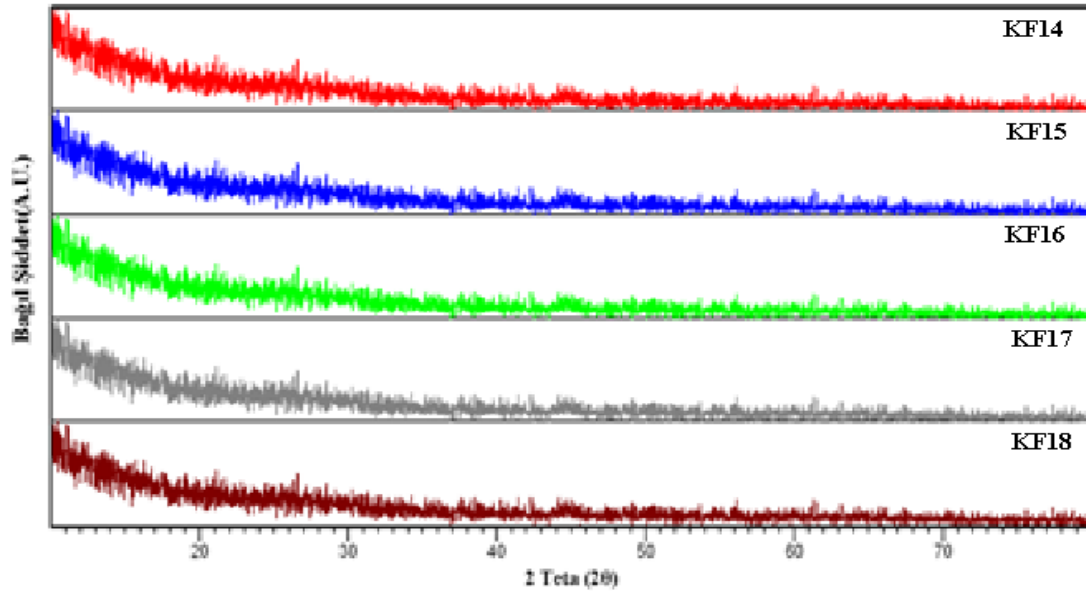
### 3.64 $\text{Li}^+ / \text{M}^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba)/ $\text{Y}_2\text{O}_3 / \text{H}_3\text{BO}_3$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.42:**  $\text{Li}^+ / \text{M}^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba)/  $\text{Y}_2\text{O}_3 / \text{H}_3\text{BO}_3$  sisteminden kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Deney kodu	Başlangıç maddeleri	Mol oranları	Sentez koşulları	Hedeflenen ürün
KF14	$\text{LiNO}_3 + \text{BeO} + \text{Y}_2\text{O}_3 + \text{H}_3\text{BO}_3$	1:1:1:3	900 °C/ 4 saat	$\text{LiBeY}_2(\text{BO}_3)_3$
KF15	$\text{LiNO}_3 + \text{MgO} + \text{Y}_2\text{O}_3 + \text{H}_3\text{BO}_3$	1:1:1:3	900 °C/ 4 saat	$\text{LiMgY}_2(\text{BO}_3)_3$
KF16	$\text{LiNO}_3 + \text{CaO} + \text{Y}_2\text{O}_3 + \text{H}_3\text{BO}_3$	1:1:1:3	900 °C/ 4 saat	$\text{LiCaY}_2(\text{BO}_3)_3$
KF17	$\text{LiNO}_3 + \text{SrCO}_3 + \text{Y}_2\text{O}_3 + \text{H}_3\text{BO}_3$	1:1:1:3	900 °C/ 4 saat	$\text{LiSrY}_2(\text{BO}_3)_3$
KF18	$\text{LiNO}_3 + \text{BaCO}_3 + \text{Y}_2\text{O}_3 + \text{H}_3\text{BO}_3$	1:1:1:3	900 °C/ 4 saat	$\text{LiBaY}_2(\text{BO}_3)_3$

### 3.65 $\text{Li}^+ / \text{M}^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba)/ $\text{Y}_2\text{O}_3 / \text{H}_3\text{BO}_3$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.42’ de  $\text{Li}^+ / \text{M}^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba)/  $\text{Y}_2\text{O}_3 / \text{H}_3\text{BO}_3$  sisteminde yüksek sıcaklık reaksiyonları ile gerçekleştirilen deneyler verilmiştir. Şekil 3.52’ de verilen KF14, KF15, KF16, KF17 ve KF18 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri incelendiğinde amorf özellik gösteren ürünlerin olduğu görülmüştür.



**Şekil 3.52:** KF14, KF15, KF16, KF17 ve KF18 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.66 $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.43:**  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

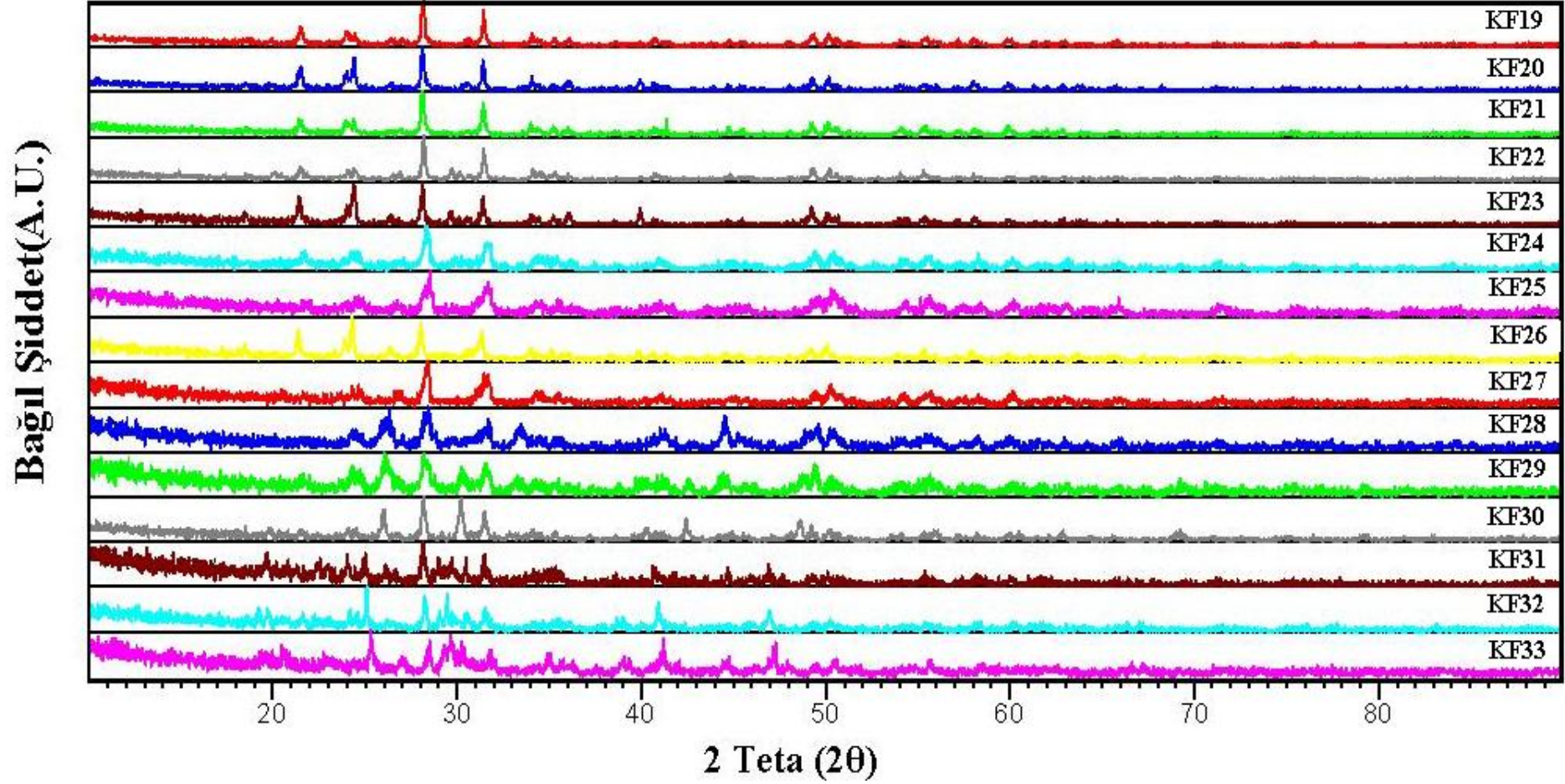
Kod	Başlangıç malzemeleri	Mol oranları	Sentez koşulları	Hedeflenen Ürün
KF19	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	900 °C/ 3 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF20	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	900 °C/ 3 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF21	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	900 °C/ 3 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF22	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	900 °C/ 3 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF23	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	900 °C/ 3 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF24	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	900 °C/ 3 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF25	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	900 °C/ 3 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF26	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	900 °C/ 3 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF27	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	900 °C/ 3 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF28	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	900 °C/ 3 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF29	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	900 °C/ 3 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF30	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	900 °C/ 3 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF31	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	900 °C/ 3 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>
KF32	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	900 °C/ 3 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>
KF33	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	900 °C/ 3 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>

### 3.67 $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.43' te  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve Tablo 3.44' te bu deneyler sonucunda elde edilen ürünlerin ICSD numaraları ile verilmiştir. Şekil 3.53' te deneylere ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. Hedeflenen bileşiklerden hiçbiri bu sentez koşullarında elde edilememiştir.

**Tablo 3.44:**  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba)/ $ZrO_2/H_3BO_3/NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle 900 °C sıcaklık ve 3 saat süreyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler.

<b>Kod</b>	<b>Sentezlenen Ürün</b>
KF19	$ZrO_2$ ICSD:08-0056 $ZrP_2O_7$ ICSD:17-2200 $BPO_4$ ICSD:02-6890
KF20	$ZrO_2$ ICSD:06-0900 $ZrP_2O_7$ ICSD:03-0582 $BPO_4$ ICSD:02-6890
KF21	$ZrO_2$ ICSD:08-0046 $BPO_4$ ICSD:15-0372 $ZrP_2O_7$ ICSD:17-2200
KF22	$ZrO_2$ ICSD:06-0900 $ZrP_2O_7$ ICSD:01-5084 $BPO_4$ ICSD:02-6890
KF23	$ZrO_2$ ICSD:08-0050 $ZrP_2O_7$ ICSD:17-2200 $BPO_4$ ICSD:15-0377
KF24	$ZrO_2$ ICSD:06-0900 $MgZr_5O_{12}$ ICSD: 06-8783 $BPO_4$ ICSD:02-6890
KF25	$ZrO_2$ ICSD:08-0046 $BPO_4$ ICSD:02-6890
KF26	$ZrO_2$ ICSD:06-0900 $BPO_4$ ICSD:15-0372 $ZrP_2O_7$ ICSD:17-2199
KF27	$ZrO_2$ ICSD:08-0043 $BPO_4$ ICSD:02-6890
KF28	$SrP_2O_7$ ICSD:03-4467 $ZrO_2$ ICSD:17-2161
KF29	$SrBPO_5$ ICSD:08-7894 $SrZrO_3$ ICSD:08-9359
KF30	$SrBPO_5$ ICSD:08-7894 $ZrO_2$ ICSD:08-0043
KF31	$BaBPO_5$ ICSD:09-5116 $ZrO_2$ ICSD:08-0043
KF32	$BaBPO_5$ ICSD:09-5116 $ZrO_2$ ICSD:08-0043
KF33	$BaBPO_5$ ICSD:09-5116 $ZrO_2$ ICSD:08-0043



Şekil 3.53: KF19, KF20, KF21, KF22, KF23, KF24, KF25, KF26, KF27, KF28, KF29, KF30, KF31, KF32 ve KF33 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.



### 3.68 $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.45:**  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Kod	Başlangıç malzemeleri	Mol oranları	Sentez koşulları	Hedeflenen Ürün
KF34	$BeO + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	900 °C/ 5 saat	$BeZrBPO_5$
KF35	$BeO + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	900 °C/ 5 saat	$BeZrBPO_5$
KF36	$BeO + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	900 °C/ 5 saat	$BeZrBPO_5$
KF37	$MgO + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	900 °C/ 5 saat	$MgZrBPO_5$
KF38	$MgO + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	900 °C/ 5 saat	$MgZrBPO_5$
KF39	$MgO + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	900 °C/ 5 saat	$MgZrBPO_5$
KF40	$CaO + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	900 °C/ 5 saat	$CaZrBPO_5$
KF41	$CaO + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	900 °C/ 5 saat	$CaZrBPO_5$
KF42	$CaO + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	900 °C/ 5 saat	$CaZrBPO_5$
KF43	$SrCO_3 + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	900 °C/ 5 saat	$SrZrBPO_5$
KF44	$SrCO_3 + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	900 °C/ 5 saat	$SrZrBPO_5$
KF45	$SrCO_3 + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	900 °C/ 5 saat	$SrZrBPO_5$
KF46	$BaCO_3 + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	900 °C/ 5 saat	$BaZrBPO_5$
KF47	$BaCO_3 + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	900 °C/ 5 saat	$BaZrBPO_5$
KF48	$BaCO_3 + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	900 °C/ 5 saat	$BaZrBPO_5$

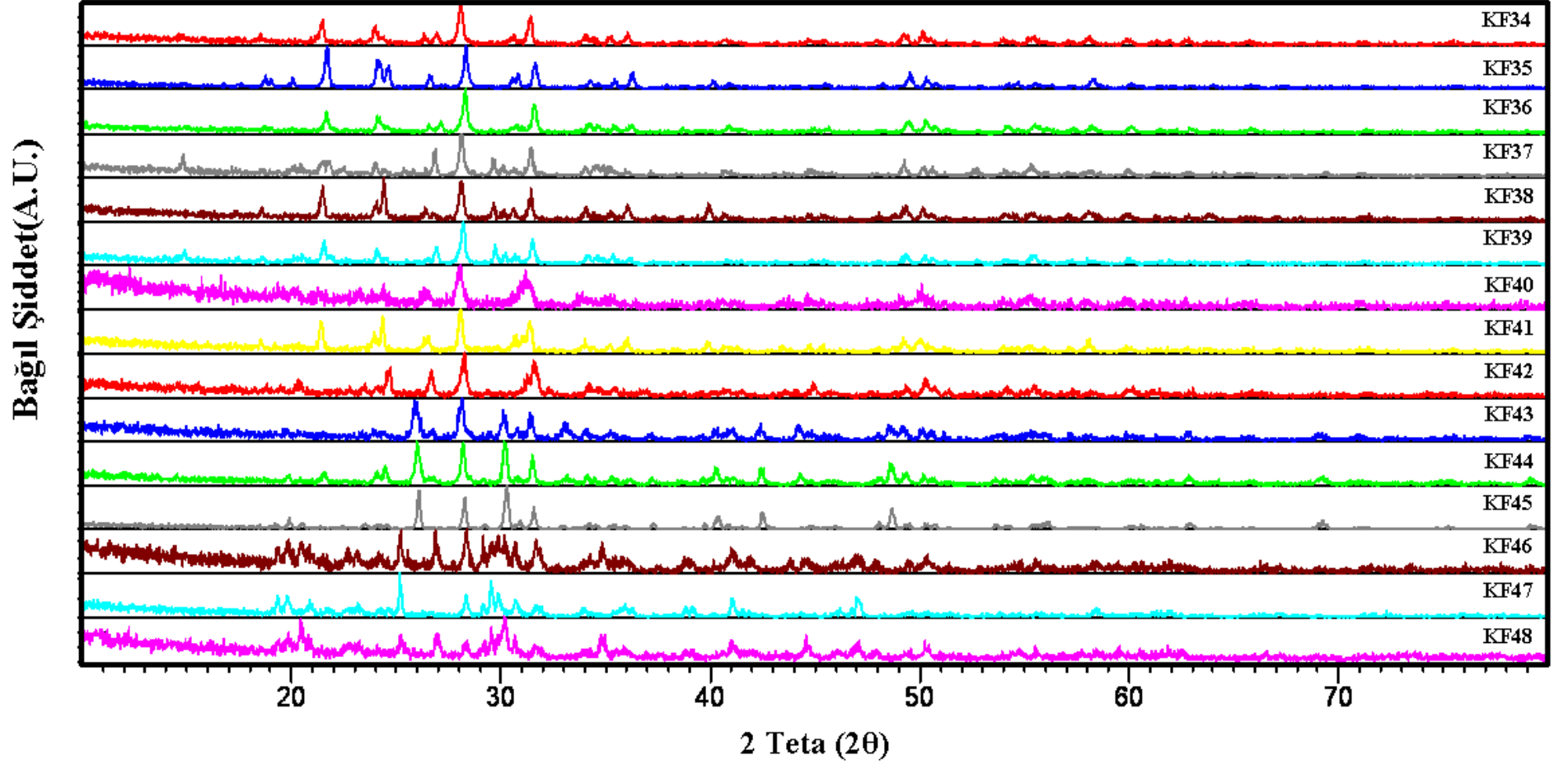
### 3.69 $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.45' te  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve Tablo 3.46' da bu deneyler sonucunda elde edilen ürünler ICSD numaraları ile verilmiştir. Şekil 3.54' te deneylere ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. Hedeflenen bileşiklerden hiçbiri bu sentez koşullarında elde edilememiştir.



**Tablo 3.46:**  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle 900 °C sıcaklık ve 5 saat süreyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler.

<b>Kod</b>	<b>Sentezlenen Ürün</b>
KF34	$ZrO_2$ ICSD:09-4886 $ZrP_2O_7$ ICSD:01-5084 $BPO_4$ ICSD:41-3437
KF35	$ZrP_2O_7$ ICSD:03-0582 $ZrO_2$ ICSD:08-0048 $BPO_4$ ICSD:41-3437
KF36	$ZrO_2$ ICSD:08-0048 $BPO_4$ ICSD:41-3437 $ZrP_2O_7$ ICSD:03-0582
KF37	$ZrO_2$ ICSD:08-0049 $BPO_4$ ICSD:41-3437 $ZrP_2O_7$ ICSD:03-0582
KF38	$ZrP_2O_7$ ICSD:03-0582 $ZrO_2$ ICSD:08-0050 $BPO_4$ ICSD:41-3437
KF39	$ZrO_2$ ICSD:08-0046 $ZrP_2O_7$ ICSD:17-2200 $H_3BO_3$ ICSD: 05-2290
KF40	$ZrO_2$ ICSD:17-3959 $ZrP_2O_7$ ICSD:17-2200 $H_3BO_3$ ICSD: 05-2290
KF41	$ZrO_2$ ICSD:08-0043 $BPO_4$ ICSD:15-0372 $ZrP_2O_7$ ICSD:03-0582
KF42	$ZrO_2$ ICSD:08-0043 $H_3BO_3$ ICSD: 24-0998 $ZrP_2O_7$ ICSD:03-0582
KF43	$SrBPO_5$ ICSD:07-7519 $ZrO_2$ ICSD:15-7403
KF44	$SrBPO_5$ ICSD: 07-7519 $ZrO_2$ ICSD:15-7403
KF45	$SrBPO_5$ ICSD: 08-7894 $ZrO_2$ ICSD:15-7403
KF46	$ZrO_2$ ICSD:06-0900 $BaBPO_5$ ICSD: 09-9842
KF47	$BaBPO_5$ ICSD: 09-5116 $BaZrP_2O_8$ ICSD:15-3124
KF48	$ZrO_2$ ICSD:06-0900 $BaBPO_5$ ICSD: 09-9842



Şekil 3.54: KF34, KF35, KF36, KF37, KF38, KF39, KF40, KF41, KF42, KF43, KF44, KF45, KF46, KF47 ve KF48 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.70 $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Süreyle Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.47:**  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

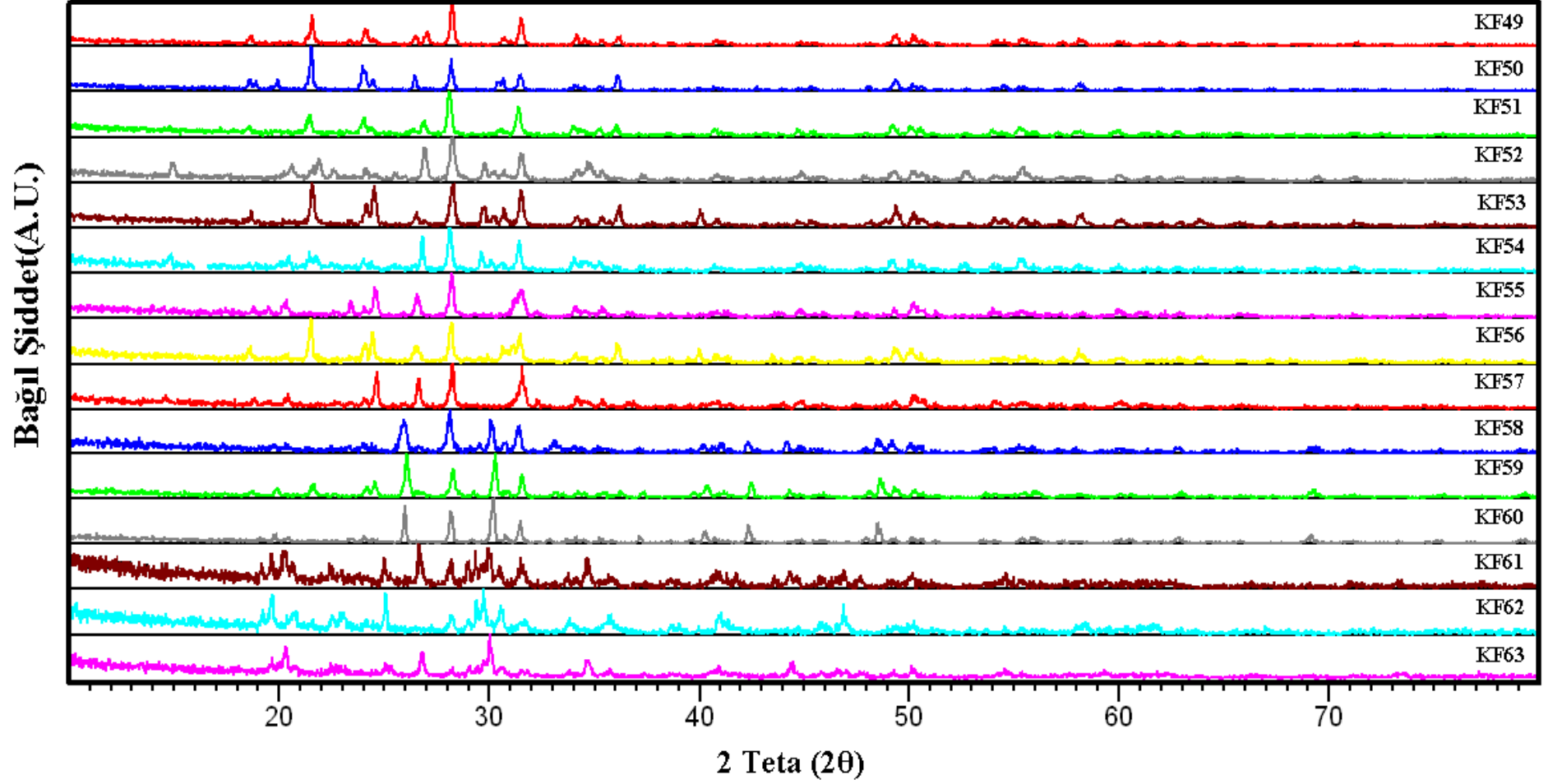
Kod	Başlangıç malzemeleri	Mol oranları	Sentez koşulları	Hedeflenen Ürün
KF49	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	900 °C/ 7 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF50	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	900 °C/ 7 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF51	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	900 °C/ 7 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF52	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	900 °C/ 7 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF53	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	900 °C/ 7 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF54	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	900 °C/ 7 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF55	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	900 °C/ 7 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF56	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	900 °C/ 7 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF57	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	900 °C/ 7 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF58	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	900 °C/ 7 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF59	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	900 °C/ 7 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF60	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	900 °C/ 7 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF61	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	900 °C/ 7 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>
KF62	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	900 °C/ 7 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>
KF63	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	900 °C/ 7 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>

### 3.71 $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.47’ de  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve Tablo 3.48’ de bu deneyler sonucunda elde edilen ürünler ICSD numaraları ile verilmiştir. Şekil 3.55’ te deneylere ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. Hedeflenen bileşiklerden hiçbiri bu sentez koşullarında elde edilememiştir.

**Tablo 3.48:**  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle 900 °C sıcaklık ve 7 saat süreyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler.

<b>Kod</b>	<b>Sentezlenen Ürün</b>
KF49	$ZrO_2$ ICSD:06-0900 $ZrP_2O_7$ ICSD:17-2200 $BPO_4$ ICSD:15-0372
KF50	$ZrP_2O_7$ ICSD:01-5084 $BPO_4$ ICSD:15-0372 $ZrO_2$ ICSD:06-0900
KF51	$ZrO_2$ ICSD:08-0046 $ZrP_2O_7$ ICSD:17-2200 $BPO_4$ ICSD:15-0372
KF52	$ZrO_2$ ICSD:08-9426 $ZrP_2O_9$ ICSD:00-1922 $MgP_2O_7$ ICSD:01-5326 $H_3BO_3$ ICSD: 24-0998
KF53	$ZrP_2O_9$ ICSD:00-1922 $BPO_4$ ICSD:15-0371 $MgP_2O_7$ ICSD:01-5326
KF54	$ZrO_2$ ICSD:08-9426 $ZrP_2O_9$ ICSD:00-1922 $H_3BO_3$ ICSD:05-2290
KF55	$ZrO_2$ ICSD:08-9426 $CaZr_4P_6O_{24}$ ICSD:15-1683 $H_3BO_3$ ICSD: 24-0998
KF56	$ZrP_2O_7$ ICSD:02-4854 $ZrO_2$ ICSD:08-0046 $BPO_4$ ICSD:15-0371
KF57	$ZrO_2$ ICSD:08-0046 $CaZrP_2O_8$ ICSD:15-0877 $H_3BO_3$ ICSD: 24-0998
KF58	$SrBPO_5$ ICSD:08-7894 $ZrO_2$ ICSD:04-1010
KF59	$SrBPO_5$ ICSD:08-7894 $ZrO_2$ ICSD:04-1010
KF60	$SrBPO_5$ ICSD:08-7894 $ZrO_2$ ICSD:04-1010
KF61	$BaBPO_5$ ICSD:09-5116 $ZrO_2$ ICSD:04-1010
KF62	$BaZrP_2O_8$ ICSD:15-3124 $BaBPO_5$ ICSD:09-5116 $ZrO_2$ ICSD:04-1010
KF63	$ZrO_2$ ICSD:04-1010 $BaBPO_5$ ICSD:09-5116



Şekil 3.55: KF49, KF50, KF51, KF52, KF53, KF54, KF55, KF56, KF57, KF58, KF59, KF60, KF61, KF62 ve KF63 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.72 $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.49:**  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

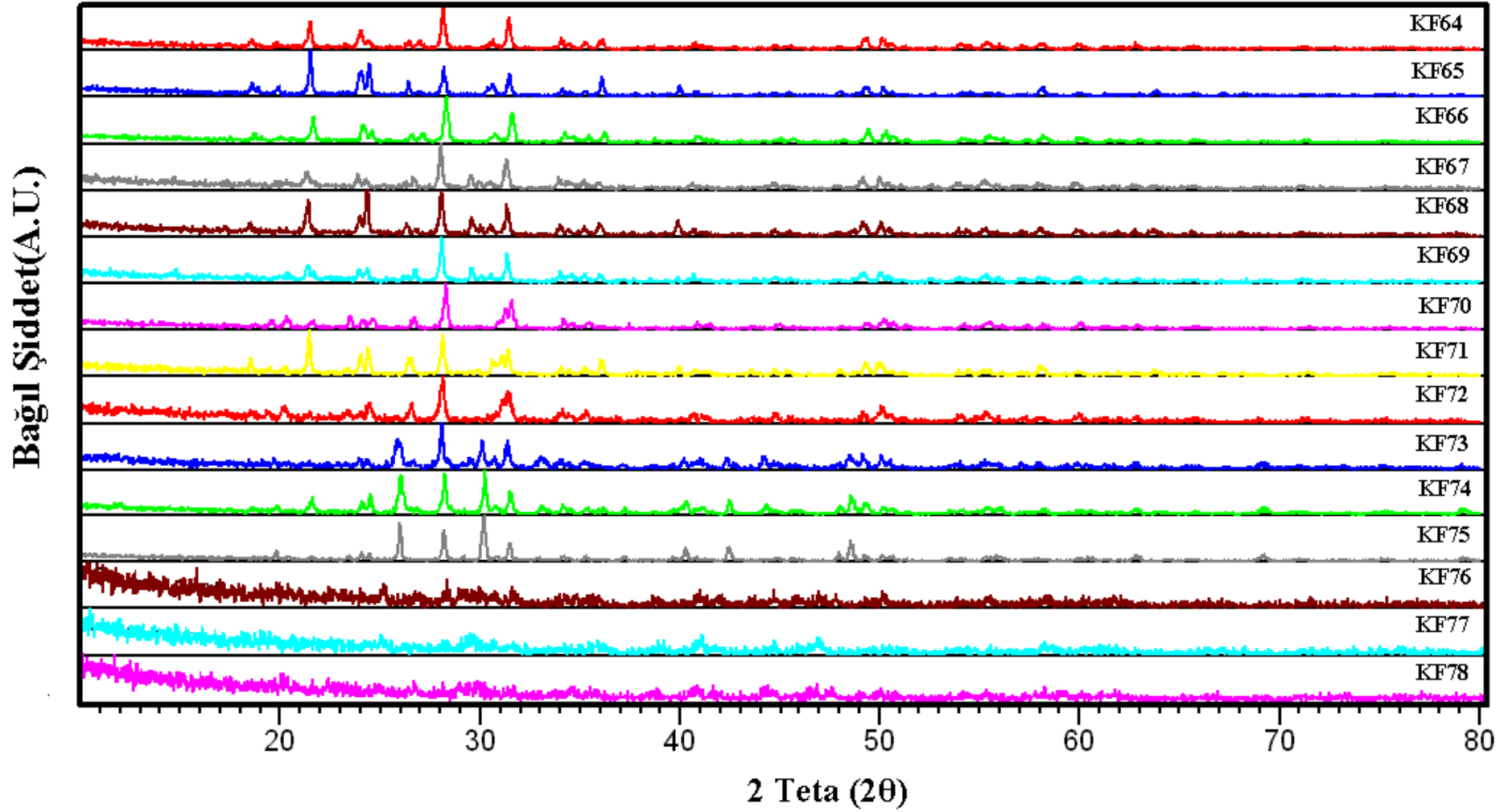
Kod	Başlangıç malzemeleri	Mol oranları	Sentez koşulları	Hedeflenen Ürün
KF64	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	950 °C/ 3 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF65	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	950 °C/ 3 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF66	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	950 °C/ 3 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF67	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	950 °C/ 3 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF68	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	950 °C/ 3 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF69	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	950 °C/ 3 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF70	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	950 °C/ 3 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF71	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	950 °C/ 3 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF72	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	950 °C/ 3 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF73	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	950 °C/ 3 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF74	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	950 °C/ 3 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF75	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	950 °C/ 3 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF76	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	950 °C/ 3 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>
KF77	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	950 °C/ 3 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>
KF78	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	950 °C/ 3 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>

### 3.73 $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.49' da  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve Tablo 3.50' de bu deneyler sonucunda elde edilen ürünler ICSD numaraları ile verilmiştir. Şekil 3.56' da deneylere ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. Hedeflenen bileşiklerden hiçbiri bu sentez koşullarında elde edilememiştir.

**Tablo 3.50:**  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle 950 °C sıcaklık ve 3 saat süreyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler.

<b>Kod</b>	<b>Sentezlenen Ürün</b>
KF64	$ZrO_2$ ICSD:06-0900 $ZrP_2O_7$ ICSD:17-2200 $BPO_4$ ICSD:15-0377
KF65	$ZrP_2O_7$ ICSD:17-2200 $ZrO_2$ ICSD:06-0900 $BPO_4$ ICSD:15-0377
KF66	$ZrO_2$ ICSD:06-0900 $ZrP_2O_7$ ICSD:17-2200 $BPO_4$ ICSD:15-0377
KF67	$ZrO_2$ ICSD:06-0900 $MgP_2O_7$ ICSD:01-5326 $BPO_4$ ICSD:15-0377
KF68	$ZrO_2$ ICSD:06-0900 $BPO_4$ ICSD:15-0377 $MgP_2O_7$ ICSD:01-5326
KF69	$ZrO_2$ ICSD:06-0900 $H_3BO_3$ ICSD:02-4711 $ZrP_2O_7$ ICSD:17-2200
KF70	$ZrO_2$ ICSD:06-0900 $CaBPO_5$ ICSD:08-7893
KF71	$ZrO_2$ ICSD:06-0900 $CaBPO_5$ ICSD:08-7893
KF72	$ZrO_2$ ICSD:06-0900 $CaBPO_5$ ICSD:08-7893
KF73	$SrBPO_5$ ICSD:08-7894 $ZrO_2$ ICSD:06-0900 $Sr_2P_2O_7$ ICSD:03-4467
KF74	$SrBPO_5$ ICSD:08-7894 $ZrO_2$ ICSD:06-0900 $Sr_2P_2O_7$ ICSD:03-4467
KF75	$SrBPO_5$ ICSD:08-7894 $ZrO_2$ ICSD:06-0900
KF76	Amorf yapılı
KF77	Amorf yapılı
KF78	Amorf yapılı



Şekil 3.56: KF64, KF65, KF66, KF67, KF68, KF69, KF70, KF71, KF72, KF73, KF74, KF75, KF76, KF77 ve KF78 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.



### 3.74 $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.51:**  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

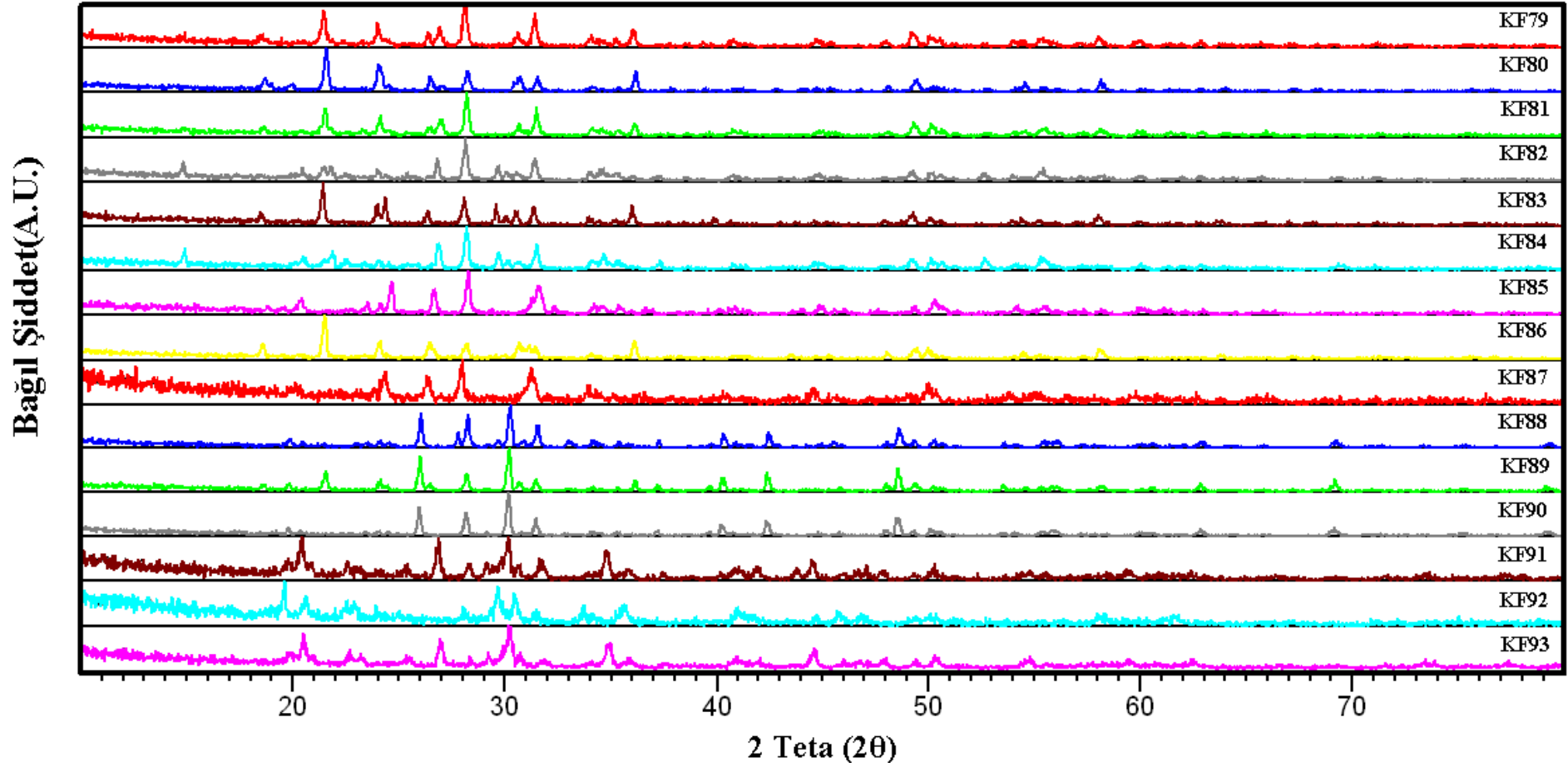
Kod	Başlangıç malzemeleri	Mol oranları	Sentez koşulları	Hedeflenen Ürün
KF79	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	950 °C/ 5 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF80	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	950 °C/ 5 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF81	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	950 °C/ 5 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF82	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	950 °C/ 5 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF83	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	950 °C/ 5 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF84	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	950 °C/ 5 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF85	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	950 °C/ 5 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF86	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	950 °C/ 5 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF87	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	950 °C/ 5 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF88	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	950 °C/ 5 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF89	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	950 °C/ 5 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF90	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	950 °C/ 5 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF91	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	950 °C/ 5 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>
KF92	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	950 °C/ 5 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>
KF93	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	950 °C/ 5 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>

### 3.75 $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.51’ de  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve Tablo 3.52’ de bu deneyler sonucunda elde edilen ürünler ICSD numaraları ile verilmiştir. Şekil 3.57’ de deneylere ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. Hedeflenen bileşiklerden hiçbiri bu sentez koşullarında elde edilememiştir.

**Tablo 3.52:**  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle 950 °C sıcaklık ve 5 saat süreyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler.

<b>Kod</b>	<b>Sentezlenen Ürün</b>
KF79	ZrP <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD:03-0582 ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0050 H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> ICSD:02-4711
KF80	ZrP <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD:03-0582 H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> ICSD:02-4711
KF81	ZrP <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD:03-0582 ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0050 H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> ICSD:02-4711
KF82	ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0050 Mg <sub>2</sub> P <sub>2</sub> O <sub>9</sub> ICSD:03-0434 H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> ICSD:02-4711
KF83	ZrP <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD:03-0582 H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> ICSD:02-4711
KF84	Zr <sub>2</sub> P <sub>2</sub> O <sub>9</sub> ICSD:00-1922 ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0050 H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> ICSD:02-4711
KF85	ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0050 CaZrP <sub>2</sub> O <sub>8</sub> ICSD:15-0877 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0377
KF86	ZrP <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD:03-0582 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0377
KF87	ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0050 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0377
KF88	SrBPO <sub>5</sub> ICSD:08-7894 ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0050
KF89	SrBPO <sub>5</sub> ICSD:08-7894 ZrP <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD:03-0582
KF90	SrBPO <sub>5</sub> ICSD:08-7894 ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0050
KF91	BaZrB <sub>2</sub> O <sub>6</sub> ICSD:09-5527 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0377
KF92	BaZrP <sub>2</sub> O <sub>8</sub> ICSD:15-3124 ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0050 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0377
KF93	BaZrB <sub>2</sub> O <sub>6</sub> ICSD:09-5527 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0377



Şekil 3.57: KF79, KF80, KF81, KF82, KF83, KF84, KF85, KF86, KF87, KF88, KF89, KF90, KF91, KF92 ve KF93 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.76 $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.53:**  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

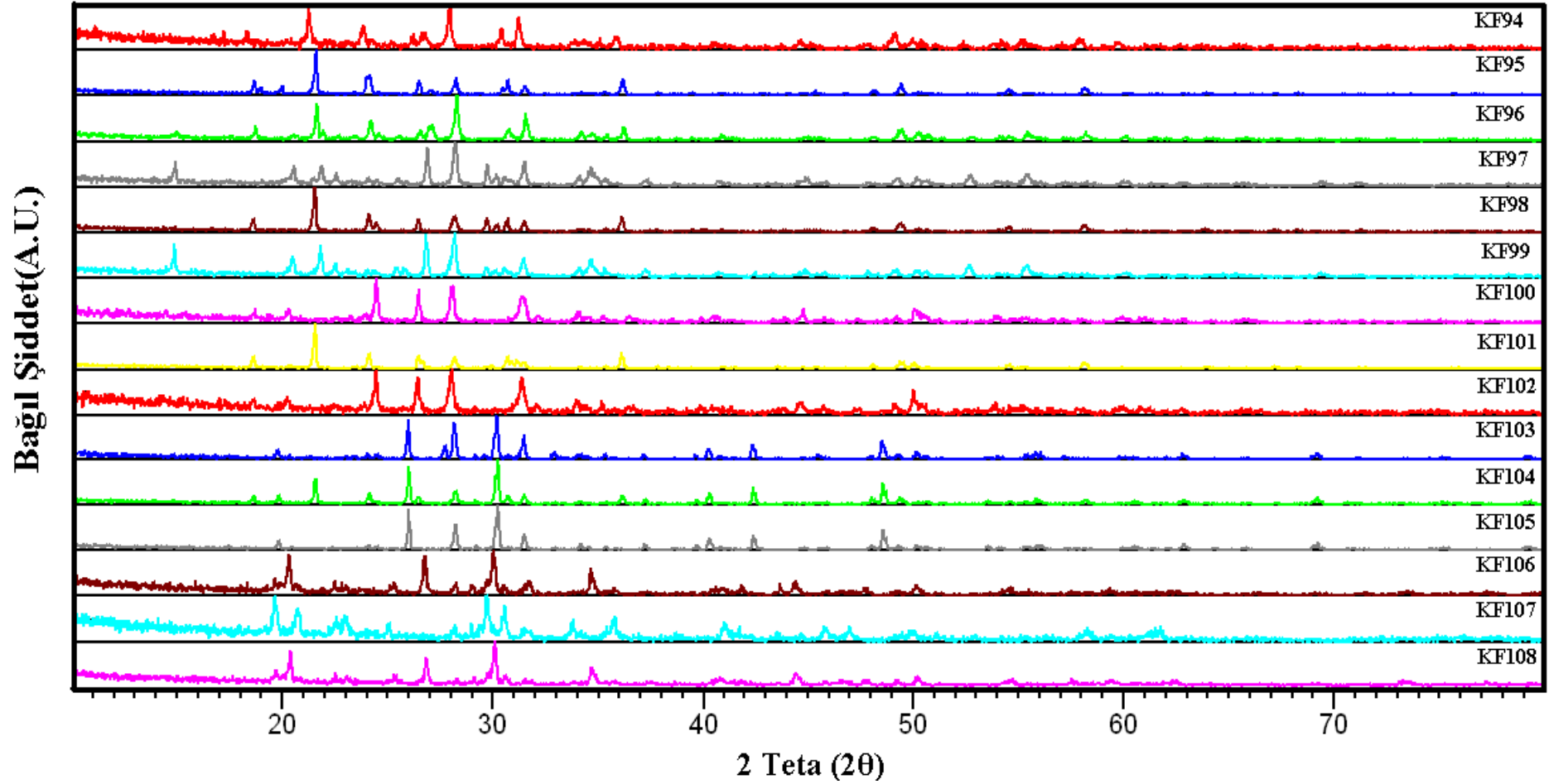
Kod	Başlangıç malzemeleri	Mol oranları	Sentez koşulları	Hedeflenen Ürün
KF94	$BeO + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	950 °C/ 7 saat	$BeZrBPO_5$
KF95	$BeO + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	950 °C/ 7 saat	$BeZrBPO_5$
KF96	$BeO + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	950 °C/ 7 saat	$BeZrBPO_5$
KF97	$MgO + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	950 °C/ 7 saat	$MgZrBPO_5$
KF98	$MgO + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	950 °C/ 7 saat	$MgZrBPO_5$
KF99	$MgO + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	950 °C/ 7 saat	$MgZrBPO_5$
KF100	$CaO + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	950 °C/ 7 saat	$CaZrBPO_5$
KF101	$CaO + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	950 °C/ 7 saat	$CaZrBPO_5$
KF102	$CaO + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	950 °C/ 7 saat	$CaZrBPO_5$
KF103	$SrCO_3 + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	950 °C/ 7 saat	$SrZrBPO_5$
KF104	$SrCO_3 + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	950 °C/ 7 saat	$SrZrBPO_5$
KF105	$SrCO_3 + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	950 °C/ 7 saat	$SrZrBPO_5$
KF106	$BaCO_3 + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	950 °C/ 7 saat	$BaZrBPO_5$
KF107	$BaCO_3 + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	950 °C/ 7 saat	$BaZrBPO_5$
KF108	$BaCO_3 + ZrO_2 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	950 °C/ 7 saat	$BaZrBPO_5$

### 3.77 $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Süreyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.53' te  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve Tablo 3.54' te bu deneyler sonucunda elde edilen ürünler ICSD numaraları ile verilmiştir. Şekil 3.58' de deneylere ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. Hedeflenen bileşiklerden hiçbiri bu sentez koşullarında elde edilememiştir.

**Tablo 3.54:**  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle 950 °C sıcaklık ve 7 saat süreyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler.

<b>Kod</b>	<b>Sentezlenen Ürün</b>
KF94	ZrP <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD:03-0582 ZrO <sub>2</sub> ICSD:06-0900 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0380
KF95	ZrP <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD:03-0582 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0380
KF96	ZrP <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD:03-0582 ZrO <sub>2</sub> ICSD:06-0900 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0380
KF97	ZrP <sub>2</sub> O <sub>9</sub> ICSD:00-1922 Mg <sub>2</sub> P <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD:01-5326 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0380
KF98	ZrP <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD:03-0582 Mg <sub>2</sub> P <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD:01-5326 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0380
KF99	ZrO <sub>2</sub> ICSD:06-0900 Mg <sub>2</sub> P <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD:01-5326 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0380
KF100	ZrO <sub>2</sub> ICSD:06-0900 CaZrP <sub>2</sub> O <sub>8</sub> ICSD:15-0877 H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> ICSD:02-4711
KF101	ZrP <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD:03-0582 H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> ICSD:02-4711
KF102	ZrO <sub>2</sub> ICSD:06-0900 CaZrP <sub>2</sub> O <sub>8</sub> ICSD:15-0877 H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> ICSD:02-4711
KF103	SrBPO <sub>5</sub> ICSD:08-7894 ZrO <sub>2</sub> ICSD:06-0900
KF104	SrBPO <sub>5</sub> ICSD:08-7894 ZrP <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD:03-0582
KF105	SrBPO <sub>5</sub> ICSD:08-7894 ZrO <sub>2</sub> ICSD:06-0900
KF106	ZrO <sub>2</sub> ICSD:06-0900 BaZrP <sub>2</sub> O <sub>8</sub> ICSD:15-3124
KF107	BaZrP <sub>2</sub> O <sub>8</sub> ICSD:15-3124 ZrO <sub>2</sub> ICSD:06-0900
KF108	ZrO <sub>2</sub> ICSD:06-0900 BaZrP <sub>2</sub> O <sub>8</sub> ICSD:15-3124



Şekil 3.58: KF94, KF95, KF96, KF97, KF88, KF99, KF100, KF101, KF102, KF103, KF104, KF105, KF106, KF107 ve KF108 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.78 $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.55:**  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Kod	Başlangıç malzemeleri	Mol oranları	Sentez koşulları	Hedeflenen Ürün
KF109	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	1000 °C/ 3 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF110	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	1000 °C/ 3 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF111	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	1000 °C/ 3 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF112	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	1000 °C/ 3 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF113	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	1000 °C/ 3 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF114	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	1000 °C/ 3 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF115	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	1000 °C/ 3 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF116	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	1000 °C/ 3 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF117	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	1000 °C/ 3 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF118	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	1000 °C/ 3 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF119	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	1000 °C/ 3 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF120	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	1000 °C/ 3 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF121	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	1000 °C/ 3 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>
KF122	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	1000 °C/ 3 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>
KF123	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	1000 °C/ 3 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>

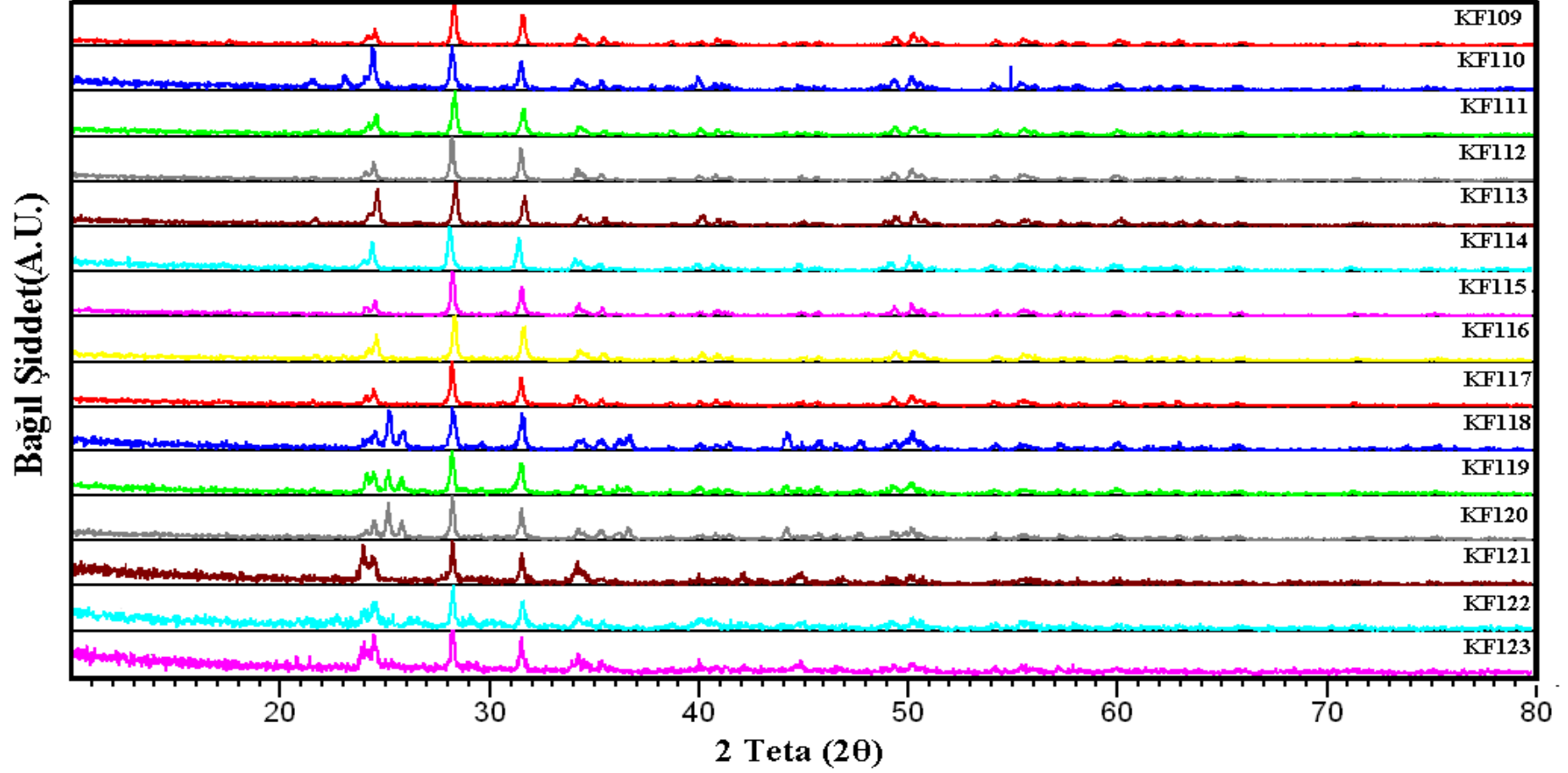
### 3.79 $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.55’ te  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve Tablo 3.56’ da bu deneyler sonucunda elde edilen ürünler ICSD numaraları ile verilmiştir. Şekil 3.59’ da deneylere ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. Hedeflenen bileşiklerden hiçbiri bu sentez koşullarında elde edilememiştir.

**Tablo 3.56:**  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle 1000 °C sıcaklık ve 3 saat süreyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler.

<b>Kod</b>	<b>Sentezlenen Ürün</b>
KF109	ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0046 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0372
KF110	ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0046 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0372
KF111	ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0046 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0372
KF112	ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0046 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0372
KF113	ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0046 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0372
KF114	ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0046 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0372
KF115	ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0046 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0372
KF116	ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0046 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0372
KF117	ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0046
KF118	SrCO <sub>3</sub> ICSD:02-7293 ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0046 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0372
KF119	ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0046 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0372 SrCO <sub>3</sub> ICSD:02-7293
KF120	ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0046 SrCO <sub>3</sub> ICSD:02-7293 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0372
KF121	ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0046 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0372 BaCO <sub>3</sub> ICSD:09-1888
KF122	BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0372 ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0046 BaCO <sub>3</sub> ICSD:09-1888
KF123	BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0372 ZrO <sub>2</sub> ICSD:08-0046 BaCO <sub>3</sub> ICSD:09-1888





Şekil 3.59: KF109, KF110, KF111, KF112, KF113, KF114, KF115, KF116, KF117, KF118, KF119, KF120, KF121, KF122 ve KF123 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.80 $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.57:**  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

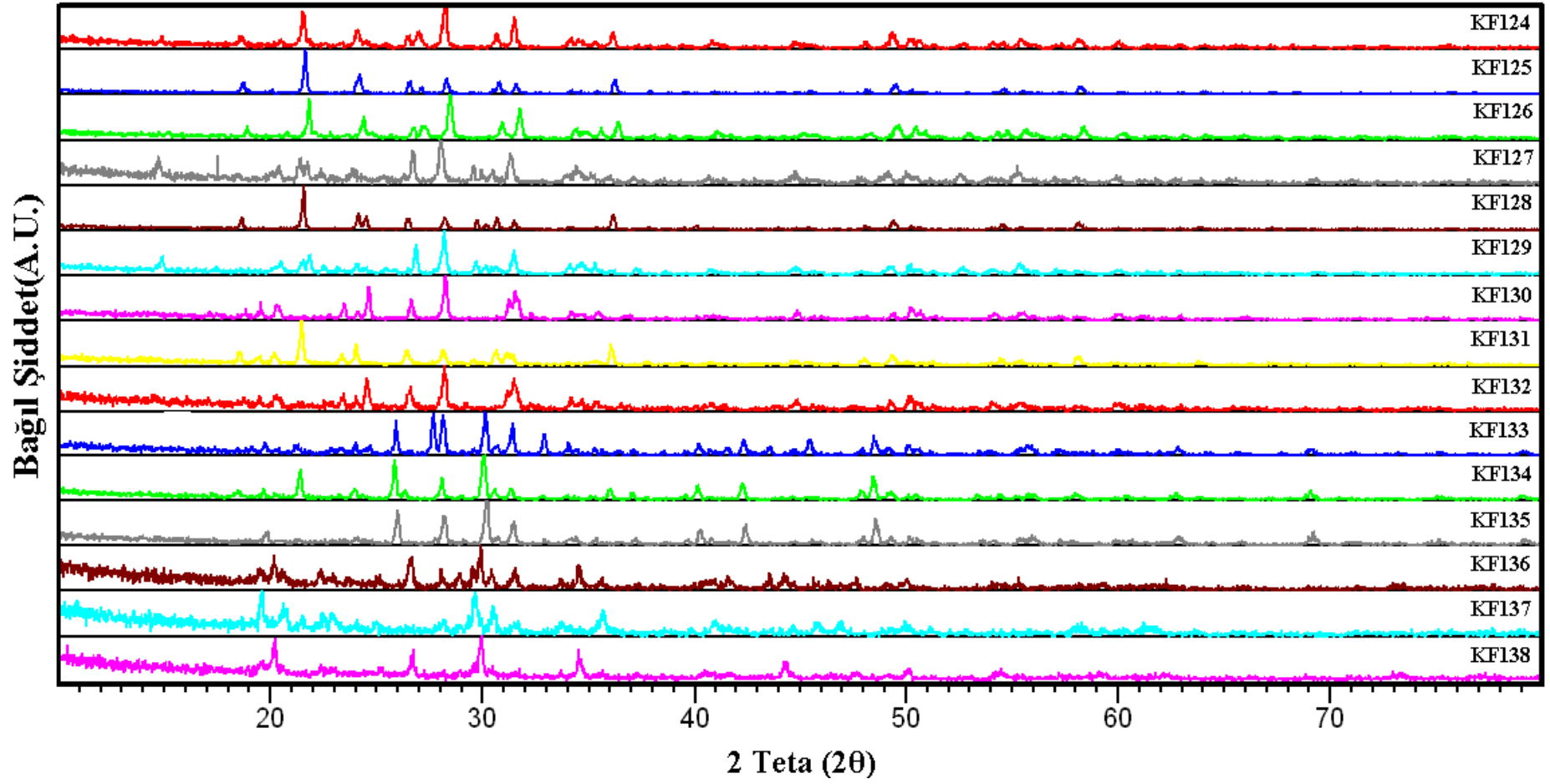
Kod	Başlangıç malzemeleri	Mol oranları	Sentez koşulları	Hedeflenen Ürün
KF124	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	1000 °C/ 5 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF125	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	1000 °C/ 5 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF126	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	1000 °C/ 5 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF127	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	1000 °C/ 5 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF128	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	1000 °C/ 5 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF129	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	1000 °C/ 5 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF130	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	1000 °C/ 5 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF131	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	1000 °C/ 5 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF132	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	1000 °C/ 5 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF133	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	1000 °C/ 5 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF134	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	1000 °C/ 5 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF135	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	1000 °C/ 5 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF136	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	1000 °C/ 5 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>
KF137	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	1000 °C/ 5 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>
KF138	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	1000 °C/ 5 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>

### 3.81 $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.57’ de  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve Tablo 3.58’ de bu deneyler sonucunda elde edilen ürünler ICSD numaraları ile verilmiştir. Şekil 3.60’ da deneylere ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. Hedeflenen bileşiklerden hiçbiri bu sentez koşullarında elde edilememiştir.

**Tablo 3.58:**  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle 1000 °C sıcaklık ve 5 saat süreyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler.

<b>Kod</b>	<b>Sentezlenen Ürün</b>
KF124	ZrP <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD: 03-0582 ZrO <sub>2</sub> ICSD: 17-2116 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0380
KF125	ZrP <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD: 03-0582 ZrO <sub>2</sub> ICSD: 17-2116 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0380
KF126	ZrP <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD: 03-0582 ZrO <sub>2</sub> ICSD: 17-2116 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0380
KF127	ZrO <sub>2</sub> ICSD: 17-2116 ZrP <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD: 03-0582 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0380
KF128	ZrP <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD: 03-0582 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0380
KF129	ZrO <sub>2</sub> ICSD: 17-2116 BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0380 Mg <sub>2</sub> P <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD: 01-5326
KF130	BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0380 CaZrP <sub>2</sub> O <sub>8</sub> ICSD:15-0877
KF131	BPO <sub>4</sub> ICSD:15-0380 CaZr <sub>4</sub> P <sub>6</sub> O <sub>24</sub> ICSD:15-1683
KF132	ZrO <sub>2</sub> ICSD: 17-2116 CaBPO <sub>5</sub> ICSD:08-7893
KF133	SrBPO <sub>4</sub> ICSD:07-7519 ZrO <sub>2</sub> ICSD: 17-2116
KF134	SrBPO <sub>4</sub> ICSD:07-7519 ZrP <sub>2</sub> O <sub>7</sub> ICSD: 03-0582
KF135	SrBPO <sub>4</sub> ICSD:07-7519 ZrO <sub>2</sub> ICSD: 17-2116
KF136	ZrO <sub>2</sub> ICSD: 17-2116 BaZrP <sub>2</sub> O <sub>8</sub> ICSD:15-3124
KF137	BaBPO <sub>5</sub> ICSD:09-5116 ZrO <sub>2</sub> ICSD: 17-2116
KF138	BaZrP <sub>2</sub> O <sub>8</sub> ICSD:15-3124 ZrO <sub>2</sub> ICSD: 17-2116



Şekil 3.60: KF124, KF125, KF126, KF127, KF128, KF129, KF130, KF131, KF132, KF133, KF134, KF135, KF136, KF137 ve KF138 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.82 $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.59:**  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

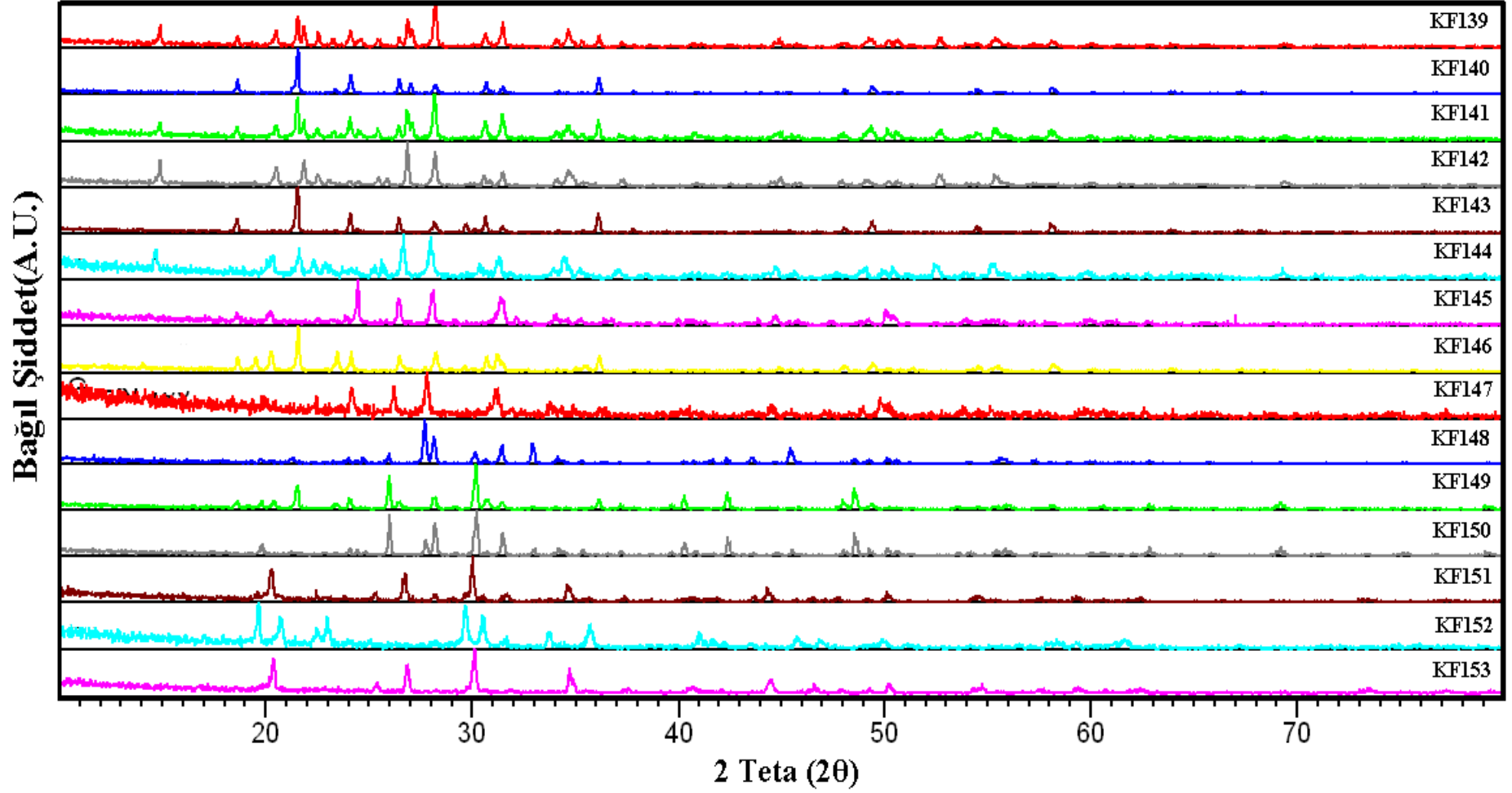
Kod	Başlangıç malzemeleri	Mol oranları	Sentez koşulları	Hedeflenen Ürün
KF139	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	1000 °C/ 7 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF140	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	1000 °C/ 7 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF141	BeO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	1000 °C/ 7 saat	BeZrBPO <sub>5</sub>
KF142	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	1000 °C/ 7 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF143	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	1000 °C/ 7 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF144	MgO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	1000 °C/ 7 saat	MgZrBPO <sub>5</sub>
KF145	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	1000 °C/ 7 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF146	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	1000 °C/ 7 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF147	CaO + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	1000 °C/ 7 saat	CaZrBPO <sub>5</sub>
KF148	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	1000 °C/ 7 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF149	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	1000 °C/ 7 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF150	SrCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	1000 °C/ 7 saat	SrZrBPO <sub>5</sub>
KF151	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:1	1000 °C/ 7 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>
KF152	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:1:2	1000 °C/ 7 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>
KF153	BaCO <sub>3</sub> + $ZrO_2$ + $H_3BO_3$ + $NH_4H_2PO_4$	1:1:2:1	1000 °C/ 7 saat	BaZrBPO <sub>5</sub>

### 3.83 $M^{2+}$ (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / $ZrO_2$ / $H_3BO_3$ / $NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.59' da  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve Tablo 3.60' ta bu deneyler sonucunda elde edilen ürünler ICSD numaraları ile verilmiştir. Şekil 3.61' de deneylere ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. Hedeflenen bileşiklerden hiçbiri bu sentez koşullarında elde edilememiştir.

**Tablo 3.60:**  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle 1000 °C sıcaklık ve 7 saat süreyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler.

<b>Kod</b>	<b>Sentezlenen Ürün</b>
KF139	$ZrP_2O_7$ ICSD:02-4854 $ZrO_2$ ICSD: 17-2116 $BPO_4$ ICSD:15-0380
KF140	$ZrP_2O_7$ ICSD: 03-0582 $BPO_4$ ICSD:15-0380
KF141	$ZrP_2O_7$ ICSD: 03-0582 $ZrO_2$ ICSD: 17-2116 $BPO_4$ ICSD:15-0380
KF142	$ZrP_2O_9$ ICSD: 00-1922 $ZrO_2$ ICSD: 17-2116 $H_3BO_3$ ICSD:05-2290
KF143	$ZrP_2O_7$ ICSD: 03-0582 $BPO_4$ ICSD:15-0380
KF144	$ZrP_2O_9$ ICSD: 00-1922 $ZrO_2$ ICSD: 17-2116 $BPO_4$ ICSD:15-0380
KF145	$ZrO_2$ ICSD: 17-2116 $CaZrP_2O_8$ ICSD: 15-0877
KF146	$ZrP_2O_7$ ICSD: 03-0582 $CaZrP_2O_8$ ICSD: 15-0877
KF147	$ZrO_2$ ICSD: 17-2116 $CaZrP_2O_8$ ICSD: 15-0877
KF148	$ZrO_2$ ICSD: 17-2116 $SrBPO_5$ ICSD:08-7894
KF149	$SrBPO_5$ ICSD:08-7894 $ZrP_2O_7$ ICSD: 03-0582
KF150	$SrBPO_5$ ICSD:08-7894 $ZrO_2$ ICSD: 17-2116
KF151	$ZrO_2$ ICSD: 17-2116 $BPO_4$ ICSD:15-0377
KF152	$BaZr_2P_2O_8$ ICSD: 15-3124
KF153	$ZrO_2$ ICSD: 17-2116 $BPO_4$ ICSD:15-0377



Şekil 3.61: KF139, KF140, KF141, KF142, KF143, KF144, KF145, KF146, KF147, KF148, KF149, KF150, KF151, KF152 ve KF153 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.84 Zr:M<sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> / NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.61:** Zr:M<sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> / NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Kod	Başlangıç malzemeleri	Mol oranları	Sentez koşulları	Hedeflenen ürün
KF154	BeO + ZrO <sub>2</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	1:0.01:3:5	900 °C/ 4 saat	BeBPO <sub>5</sub> :Zr
KF155	MgO + ZrO <sub>2</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	1:0.01:3:5	900 °C/ 4 saat	MgBPO <sub>5</sub> :Zr
KF156	CaCO <sub>3</sub> + ZrO <sub>2</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	1:0.01:3:5	900 °C/ 4 saat	CaBPO <sub>5</sub> :Zr
KF157	SrCO <sub>3</sub> + ZrO <sub>2</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	1:0.01:3:5	900 °C/ 4 saat	SrBPO <sub>5</sub> :Zr
KF158	BaCO <sub>3</sub> + ZrO <sub>2</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	1:0.01:3:5	900 °C/ 4 saat	BaBPO <sub>5</sub> :Zr

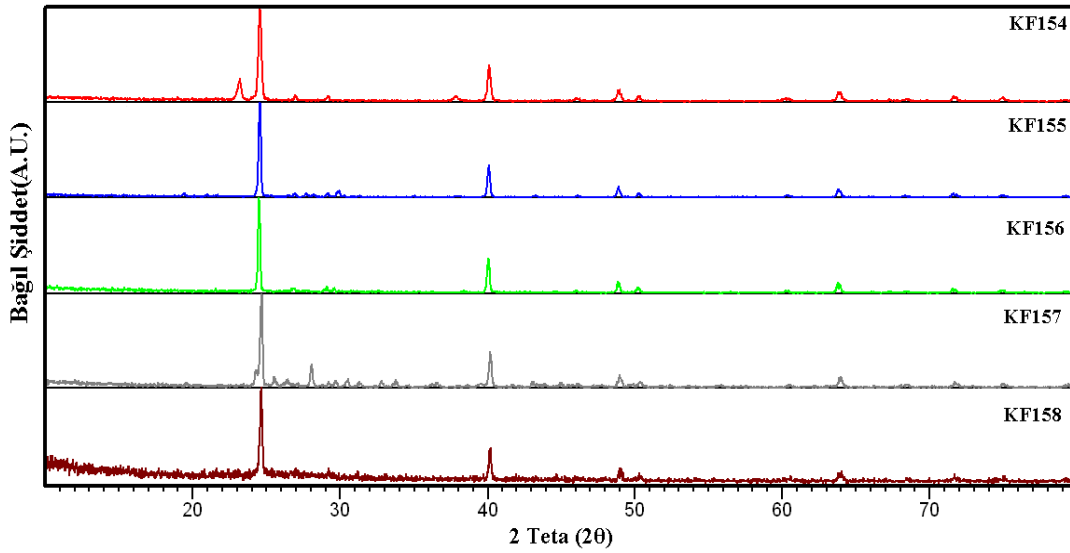
### 3.85 Zr:M<sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> / NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.61' de Zr:M<sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) / H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> / NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve Tablo 3.6d' de bu deneyler sonucunda elde edilen ürünler ICSD numaraları ile verilmiştir. Şekil 3.62' de deneylere ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. Hedeflenen bileşiklerden hiçbiri bu sentez koşullarında elde edilememiştir.

**Tablo 3.62:** M<sup>2+</sup> (Be, Mg, Ca, Sr, Ba)/ZrO<sub>2</sub>/H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>/NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve ürünler.

Kod	Sentezlenen Ürün
KF154	BPO <sub>4</sub> (ICSD:05-5083)
KF155	BPO <sub>4</sub> (ICSD:05-5083)
KF156	BPO <sub>4</sub> (ICSD:05-5083)
KF157	BPO <sub>4</sub> (ICSD:05-5083) Sr <sub>3</sub> P <sub>4</sub> O <sub>13</sub> (ICSD: 09-9588)
KF158	BPO <sub>4</sub> (ICSD:05-5083)





Şekil 3.62: KF154, KF155, KF156, KF157 ve KF158 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

### 3.86 $RE(Y, Er, Gd, La, Nd):CaCO_3 / H_3BO_3 / NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler

Tablo 3.63:  $RE(Y, Er, Gd, La, Nd):CaCO_3 / H_3BO_3 / NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Kod	Başlangıç malzemeleri	Mol oranları	Sentez koşulları	Hedeflenen ürün
KF159	$CaCO_3 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4 + Y_2O_3$	1:1:1:0.01	400 °C/ 2 saat + 900 °C/ 4 saat	$CaBPO_5:Y$
KF160	$CaCO_3 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4 + Er_2O_3$	1:1:1:0.01	400 °C/ 2 saat + 900 °C/ 4 saat	$CaBPO_5:Er$
KF161	$CaCO_3 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4 + Gd_2O_3$	1:1:1:0.01	400 °C/ 2 saat + 900 °C/ 4 saat	$CaBPO_5:Gd$
KF162	$CaCO_3 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4 + La_2O_3$	1:1:1:0.01	400 °C/ 2 saat + 900 °C/ 4 saat	$CaBPO_5:La$
KF163	$CaCO_3 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4 + Nd_2O_3$	1:1:1:0.01	400 °C/ 2 saat + 900 °C/ 4 saat	$CaBPO_5:Nd$

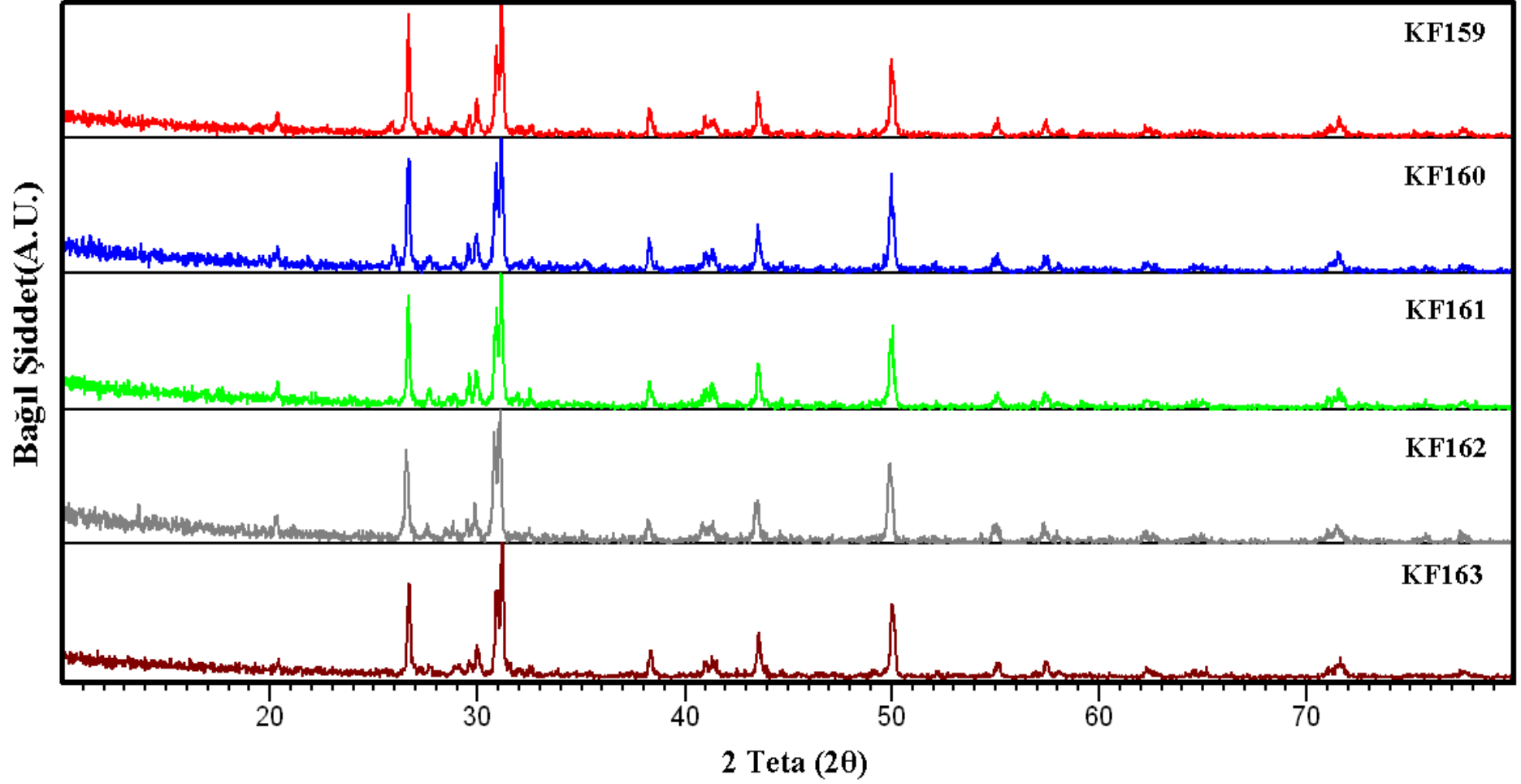
### 3.87 $RE(Y, Er, Gd, La, Nd):CaCO_3 / H_3BO_3 / NH_4H_2PO_4$ Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.63' te  $RE(Y, Er, Gd, La, Nd):CaCO_3 / H_3BO_3 / NH_4H_2PO_4$  sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve Tablo 3.64' te bu deneyler sonucunda elde edilen ürünler ICSD numaraları ile verilmiştir.

**Tablo 3.64:** *RE*(Y, Er, Gd, La, Nd):CaCO<sub>3</sub> / H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> / NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve ürünler.

<b>Kod</b>	<b>Sentezlenen ürün</b>
KF159	Y:CaBPO <sub>5</sub> (ICSD: 07-7518)
KF160	Er:CaBPO <sub>5</sub> (ICSD: 07-7518)
KF161	Gd:CaBPO <sub>5</sub> (ICSD: 07-7518)
KF162	La:CaBPO <sub>5</sub> (ICSD: 07-7518)
KF163	Nd:CaBPO <sub>5</sub> (ICSD: 07-7518)

Şekil 3.63' te KF159, KF160, KF161, KF162 ve KF163 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. Tablo 3.65' de verilen "d" değerleri literatür ile karşılaştırıldığında hedeflendiği gibi *RE*(Y, Er, Gd, La, Nd) elementlerinin ilk kez yapıya girmesi ile CaBPO<sub>5</sub> (ICSD:07-7518) bileşiğinin elde edildiği belirlenmiştir. Literatürde benzer bileşikler, 800-1150 °C sıcaklık aralıklarında çeşitli sürelerde sentezlenmiştir [70, 77, 80-82]. Konak (host) bileşiğin pik değerlerinin dışında dope edilen nadir toprak metal oksitlere ait piklerin olmaması, CaBPO<sub>5</sub>' in hedeflenen bileşiklerinin oluştuğunun bir göstergesidir [98, 114].



Şekil 3.63: KF159, KF160, KF161, KF162 ve KF163 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

**Tablo 3.65:** KF159-163 deneylerine ait X-ışını toz kırınım verileri.

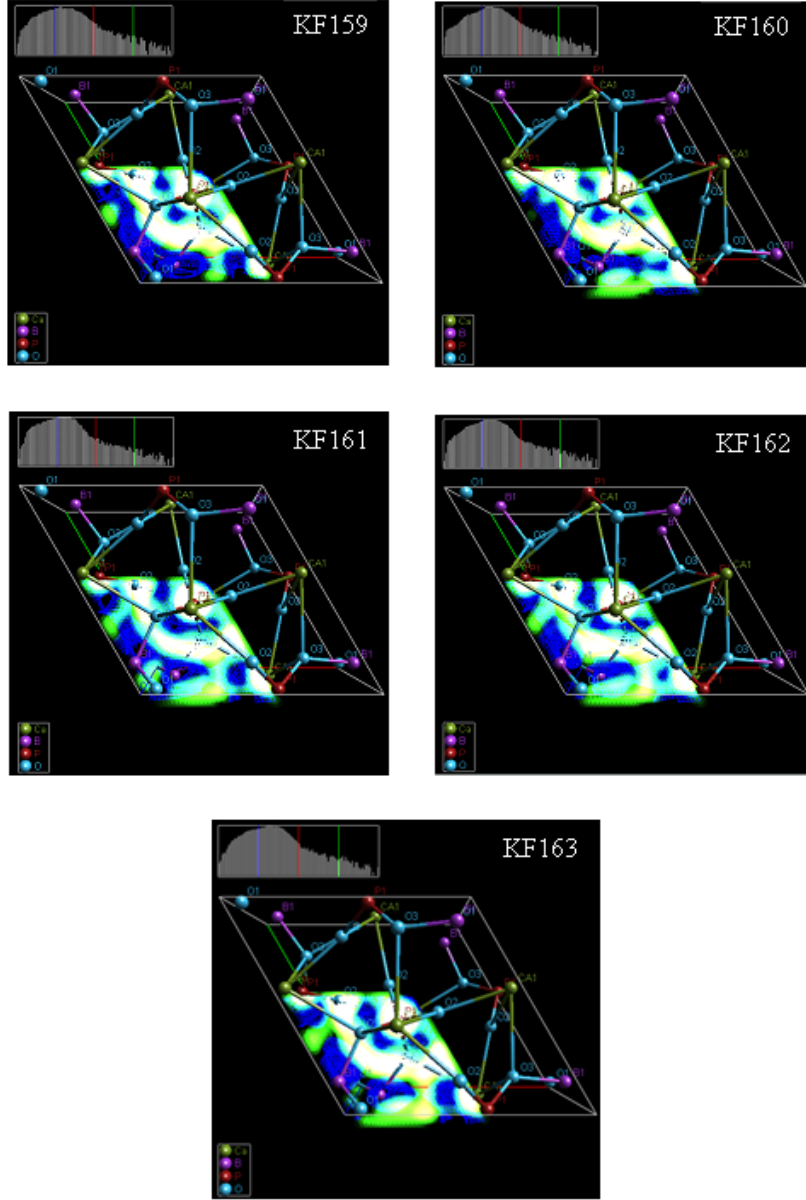
I/I <sub>0</sub>	h k l	CaBPO <sub>5</sub>	Y:CaBPO <sub>5</sub>	Er:CaBPO <sub>5</sub>	Gd:CaBPO <sub>5</sub>	La:CaBPO <sub>5</sub>	Nd:CaBPO <sub>5</sub>
		d <sub>teorik</sub> (Å)	d <sub>deneysel</sub> (Å)	d <sub>deneysel</sub> (Å)	d <sub>deneysel</sub> (Å)	d <sub>deneysel</sub> (Å)	d <sub>deneysel</sub> (Å)
7,5	0 1 1	4,35384	4,35613	4,35508	4,35972	4,37440	4,34779
-	-	-	3,44113	3,43408	3,34033	3,35652	3,33877
100,0	1 1 0	3,34000	3,34186	3,34085	3,22177	3,23227	3,22083
-	-	-	3,22220	3,22710	3,08296	3,11138	3,07304
-	-	-	3,08549	3,09245	3,01559	3,02558	3,01540
-	-	-	3,01632	3,02237	2,98459	2,99075	2,98228
21,9	1 1 1	2,98123	2,97776	2,98090	2,89178	2,90327	2,89188
35,0	0 2 0	2,89252	2,89487	2,89551	2,87064	2,87619	2,86740
90,6	1 0 2	2,87036	2,87005	2,87297	2,80104	2,75398	2,74771
-	-	-	2,74511	2,74545	2,75240	2,35576	2,34700
-	-	-	2,54982	2,54615	2,34958	2,20956	2,20291
21,2	1 1 2	2,34962	2,35122	2,35146	2,18065	2,18432	2,18054
10,2	0 0 3	2,20400	2,20363	2,20241	2,07794	2,08008	2,07619
7,5	0 2 2	2,17692	2,17994	2,18129	1,82632	1,95353	2,02788
24,4	2 1 1	2,07598	2,07876	2,07744	1,66587	1,92877	1,95280
-	-	-	1,95309	2,02865	1,62068	1,82810	1,82474
42,0	1 2 2	1,82375	1,82511	1,92251	1,60526	1,66704	1,75129
6,7	3 0 2	1,66570	1,66534	1,82481	1,49083	1,60696	1,66455
4,8	1 3 0	1,60448	1,60416	1,75944	1,43560	1,48912	1,60280
1,5	1 3 1	1,55923	1,55805	1,66800	1,31875	1,43764	1,49023
5,5	2 2 2	1,49061	1,48995	1,60374	1,25404	1,31907	1,43335
3,5	2 0 4	1,43518	1,43591	1,58754	1,23072	1,25552	1,31722

KF159, KF160, KF161, KF162 ve KF163 kodlu deneylerde elde edilen bileşiklerin Rietveld yöntemi ile belirlenmiş olan hücre parametreleri Tablo 3.66’ da verilmiştir. İlk kez bu çalışmada gerçekleştirilen Rietveld analiz sonuçlarına göre; dope edilmiş olan bileşiklerin hücre parametrelerinin büyüdüğü belirlenmiştir. Bunun nedeni, dope edilen iyonların yarı çaplarının ve kalsiyum iyonunun yarıçapının birbirinden çok farklı olmamasının yer değiştirmeye imkan sağlamış olmasıdır. Böylece dope edilen bileşikler boşluklara yerleşmek yerine kalsiyum iyonları ile yer değiştirmiştir [115-123].

**Tablo 3.66:** KF159, KF160, KF161, KF162 ve KF163 kodlu deneylere ait hesaplanan hücre parametre verileri ve saf CaBPO<sub>5</sub> ile karşılaştırılması.

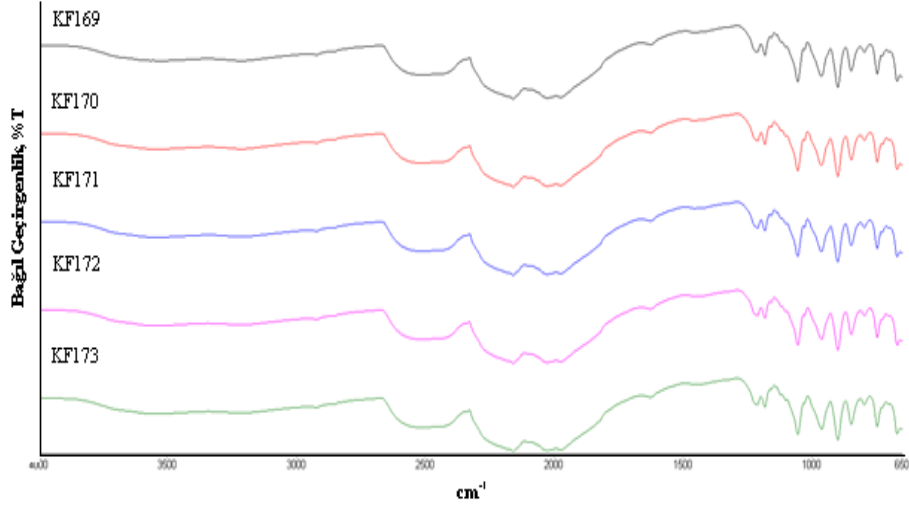
Bileşikler	CaBPO <sub>5</sub>	Y:CaBPO <sub>5</sub>	Er:CaBPO <sub>5</sub>	Gd:CaBPO <sub>5</sub>	La:CaBPO <sub>5</sub>	Nd:CaBPO <sub>5</sub>
<b>İyonik Yarıçaplar (pm)</b>	114	104	103	107.8	117.2	112.3
<b>Kristal Sistem</b>	hekzagonal	hekzagonal	hekzagonal	hekzagonal	hekzagonal	hekzagonal
<b>a (Å)</b>	6.673790	6.676545	6.674785	6.675172	6.674069	6.676751
<b>c (Å)</b>	6.597321	6.603022	6.602654	6.604589	6.604092	6.606133

Şekil 3.64’ te elde edilen bileşiklerin Rietveld hesaplamaları sonucu çizilen Fourier haritaları verilmiştir. Haritalardan edinilen bilgiler, XRD verileri ve Rietveld hesaplamaları ile uyum göstermektedir.



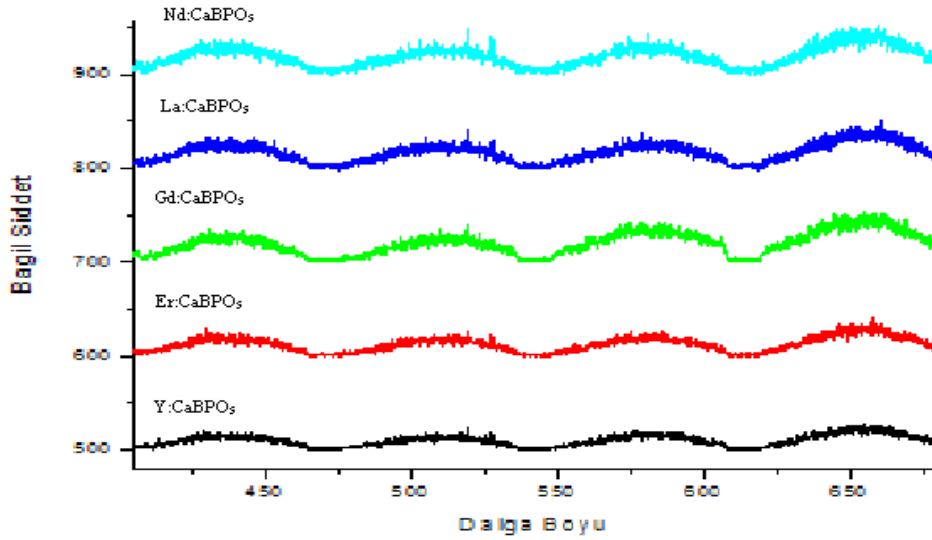
**Şekil 3.64:** KF159, KF160, KF161, KF162 ve KF163 deneylerine ait Fourier haritaları.

Şekil 3.65’ te KF159, KF160, KF161, KF162 ve KF163 deneylerine ait FTIR spektrumları verilmiştir.  $650\text{--}673\text{ cm}^{-1}$  aralığında bulunan dalga sayısı verileri  $\delta(\text{BOP})$  grubu [85, 86, 124],  $681\text{--}750\text{ cm}^{-1}$  aralığında bulunan dalga sayısı verileri  $\nu_s(\text{BOP})$  grubu [85, 86, 125] ve  $796\text{--}850\text{ cm}^{-1}$  aralığındaki değerler ise  $\nu_s(\text{BOP})$  grubu titreşimlerine aittir. Parmak izi bölgesinin dışında kalan yayvan dalga sayısı değerleri de atmosferden kaynaklan  $\text{CO}_2$  titreşimlerine aittir [126, 127].



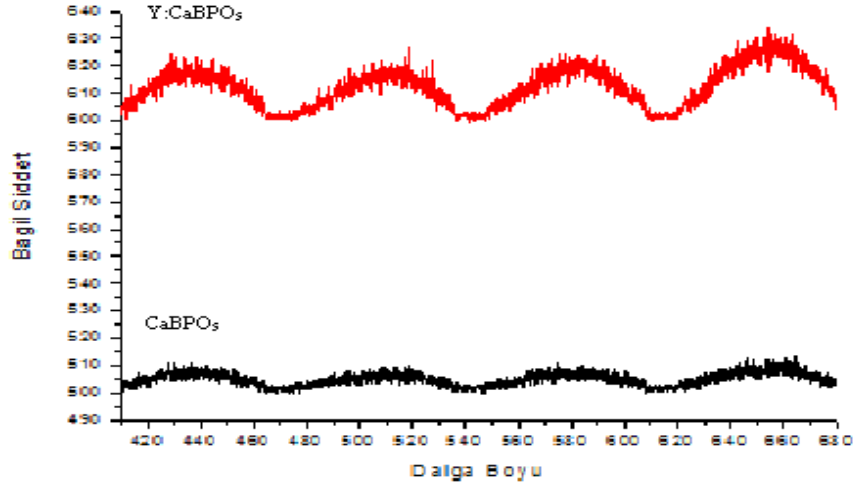
Şekil 3.65: Kf159, Kf160, Kf161, Kf162 ve Kf163 deneylerine ait FTIR spektrumları.

Şekil 3.66' da Kf159, Kf160, Kf161, Kf162 ve Kf163 deneylerine ait VUV-PL spektrumları verilmiştir. Lüminesans özellikleri ilk kez bu çalışma ile incelenen bileşiklerin, şiddet değerleri kıyaslandığında şu sıralama elde edilmiştir: Gd:CaBPO<sub>5</sub>> La:CaBPO<sub>5</sub>>Er:CaBPO<sub>5</sub>> Nd:CaBPO<sub>5</sub>> Y:CaBPO<sub>5</sub>. Buna göre en iyi lüminesans özellik gösteren yapı Gd iyonu dope edilmiş kalsiyum borofosfat bileşiğidir.



Şekil 3.66: Kf159, Kf160, Kf161, Kf162 ve Kf163 deneylerine ait VUV-PL spektrumları.

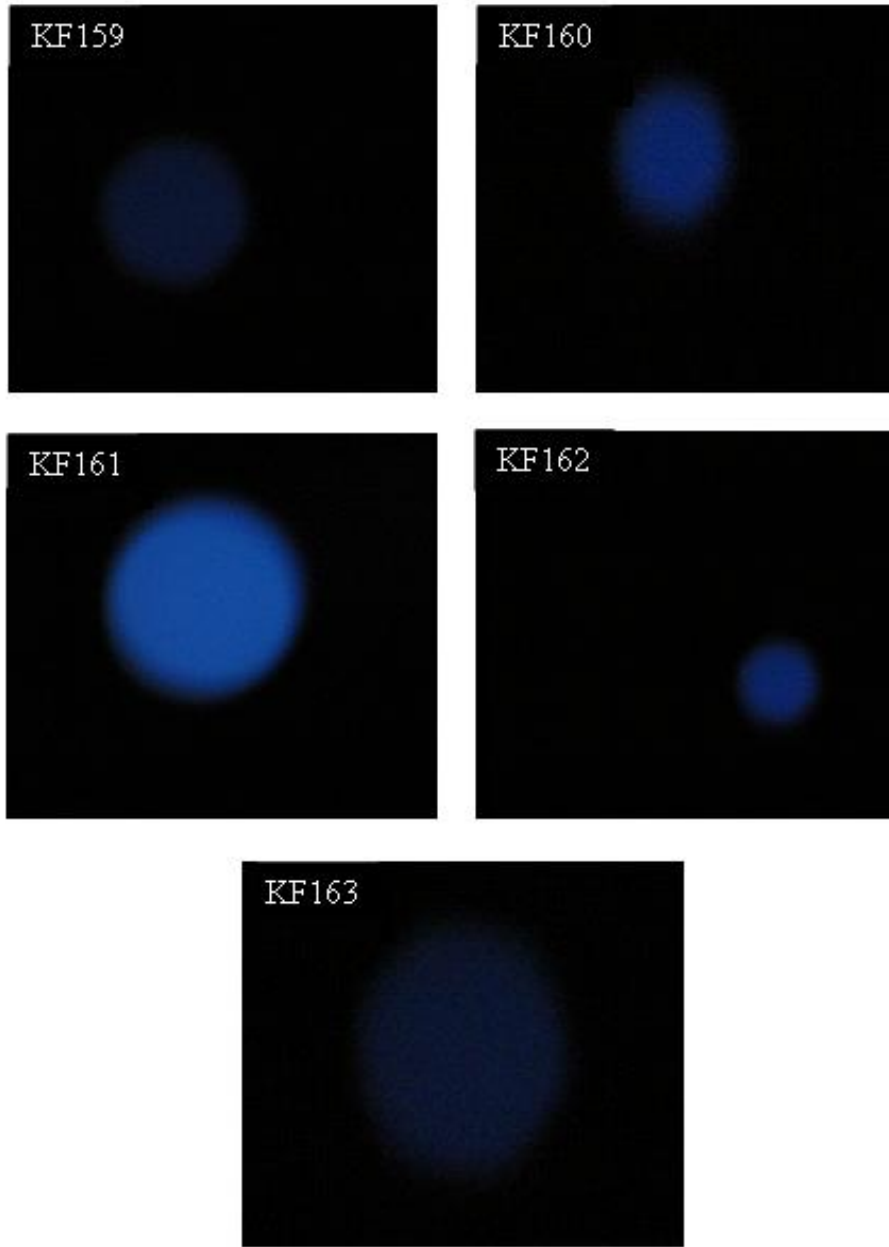
Şekil 3.67’ de Y:CaBPO<sub>5</sub> ve CaBPO<sub>5</sub> bileşiklerine ait VUV-PL spektrumları karşılaştırmalı olarak verilmiştir. Hiçbir nadir toprak metali dope edilmemiş saf haldeki CaBPO<sub>5</sub> bileşiğinin lüminesans değeri, dope edilen metaller arasında en düşük şiddete sahip olan Y dope edilmiş CaBPO<sub>5</sub> bileşiğinin Lüminesans değerine kıyasla oldukça düşük lüminesans değerine sahip olduğu görülmektedir.



Şekil 3.67: Y:CaBPO<sub>5</sub> ve CaBPO<sub>5</sub> bileşiklerine ait VUV-PL spektrumları.

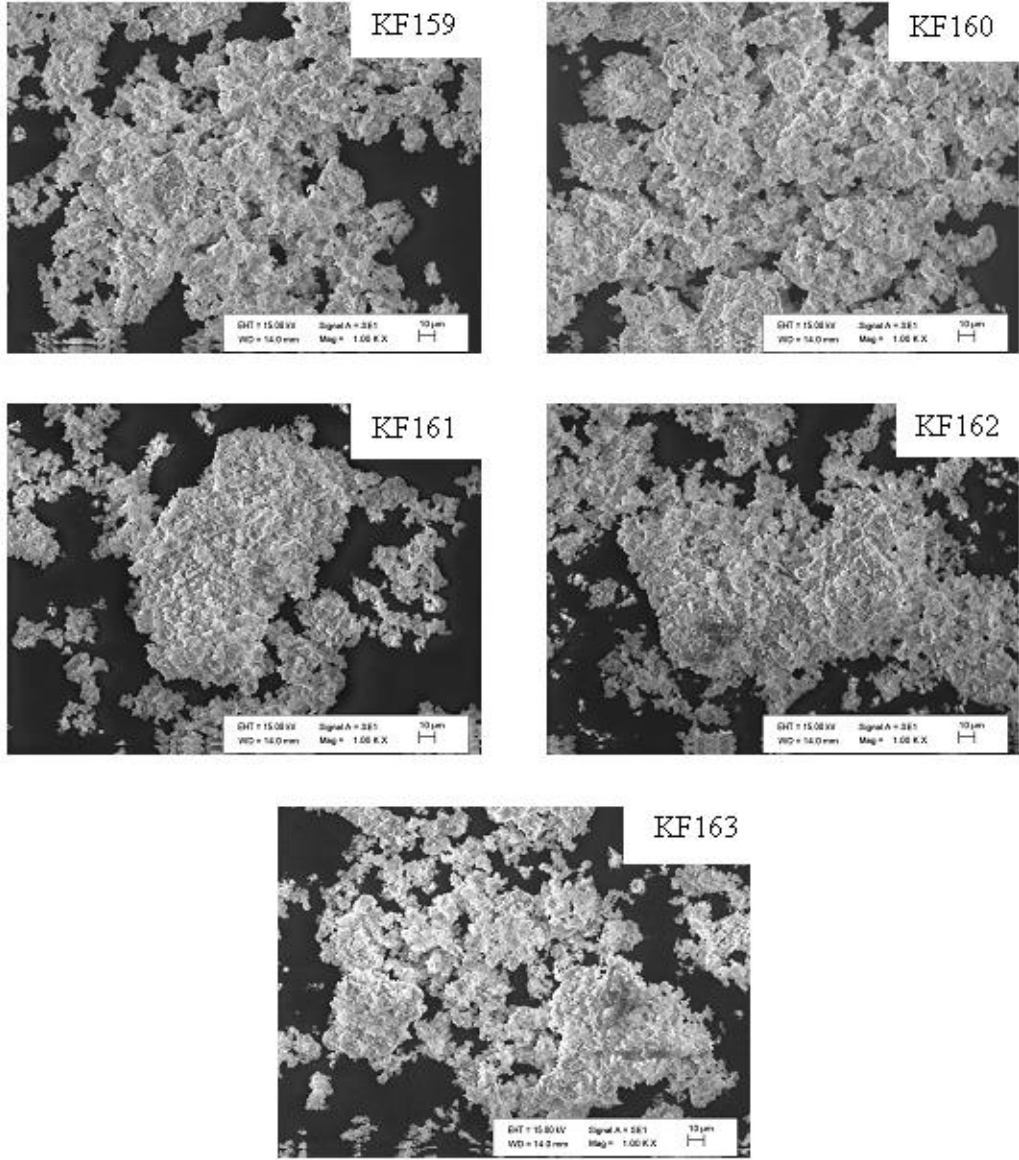
Şekil 3.68’ de üzerine lazer ışını düşürülmüş olan KF159, KF160, KF161, KF162 ve KF163 kodlu numunelerin yapmış olduğu ışımaların görüntüleri verilmiştir. Görüntüler kıyaslandığında lüminesans spektrumlarından elde edilen sıralamanın aynı olduğu görülmüştür.





**Şekil 3.68:** KF159, KF160, KF161, KF162 ve KF163 deneylerine ait ışına görüntüleri.

Şekil 3.69' da KF159, KF160, KF161, KF162 ve KF163 deneylerine ait SEM yüzey görüntüleri verilmiştir. Görüntülerin arasında büyük farklılıkların olmaması, dope edilen iyonların kalsiyum ile yer değiştirmiş olmasının hücrelerde herhangi bir kusura sebep olmadığını göstermektedir.



Şekil 3.69: KF159, KF160, KF161, KF162 ve KF163 deneylerine ait SEM yüzey görüntüleri.

### 3.88 $RE(Y, Er, Gd, La, Nd, Sm, Dy):SrCO_3 / H_3BO_3 / NH_4H_2PO_4$

#### Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.67:**  $RE(Y, Er, Gd, La, Nd, Sm, Dy):SrCO_3/H_3BO_3/NH_4H_2PO_4$  sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve ürünler.

Kod	Başlangıç malzemeleri	Mol oranları	Sentez koşulları	Hedeflenen ürün
KF164	$SrCO_3 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4 + Y_2O_3$	1:1:1:0.01	400 °C/ 2 saat+ 900 °C/ 4 saat	SrBPO <sub>5</sub> :Y
KF165	$SrCO_3 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4 + Er_2O_3$	1:1:1:0.01	400 °C/ 2 saat+ 900 °C/ 4 saat	SrBPO <sub>5</sub> :Er
KF166	$SrCO_3 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4 + Gd_2O_3$	1:1:1:0.01	400 °C/ 2 saat+ 900 °C/ 4 saat	SrBPO <sub>5</sub> :Gd
KF167	$SrCO_3 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4 + La_2O_3$	1:1:1:0.01	400 °C/ 2 saat+ 900 °C/ 4 saat	SrBPO <sub>5</sub> :La
KF168	$SrCO_3 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4 + Nd_2O_3$	1:1:1:0.01	400 °C/ 2 saat+ 900 °C/ 4 saat	SrBPO <sub>5</sub> :Nd
KF169	$SrCO_3 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4 + Sm_2O_3$	1:1:1:0.01	400 °C/ 2 saat+ 900 °C/ 4 saat	SrBPO <sub>5</sub> :Sm
KF170	$SrCO_3 + H_3BO_3 + NH_4H_2PO_4 + Dy_2O_3$	1:1:1:0.01	400 °C/ 2 saat+ 900 °C/ 4 saat	SrBPO <sub>5</sub> :Dy

### 3.89 $RE(Y, Er, Gd, La, Nd, Sm, Dy):SrCO_3 / H_3BO_3 / NH_4H_2PO_4$

#### Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin

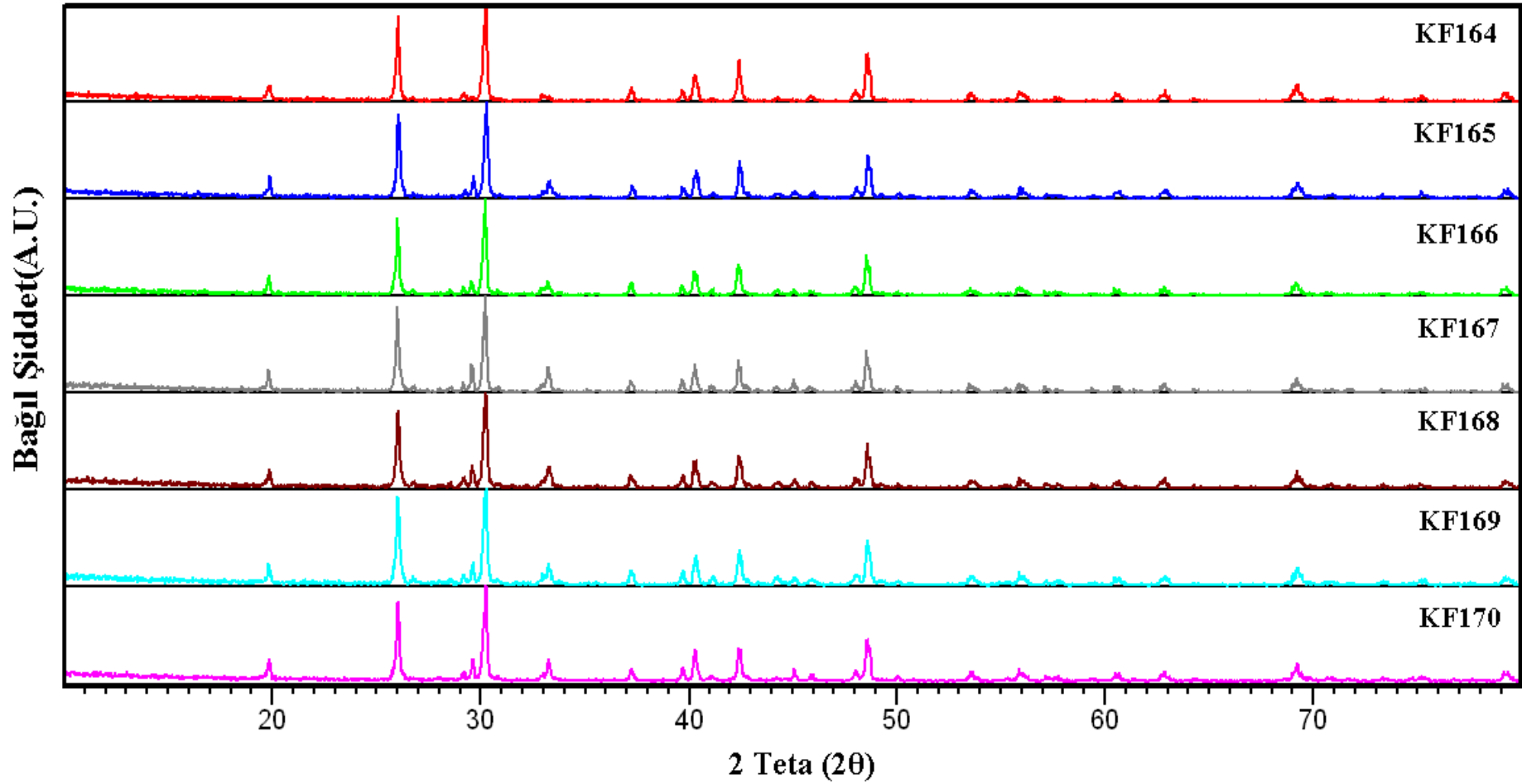
#### Sonuçları

Tablo 3.67' de  $RE(Y, Er, Gd, La, Nd, Sm, Dy):SrCO_3 / H_3BO_3 / NH_4H_2PO_4$  sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve Tablo 3.68' de bu deneyler sonucunda elde edilen ürünler ICSD numaraları ile verilmiştir.

**Tablo 3.68:** RE(Y, Er, Gd, La, Nd, Sm, Dy):SrCO<sub>3</sub>/H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>/NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve sentezlenen ürünler.

<b>Kod</b>	<b>Sentezlenen ürün</b>
KF164	Y:SrBPO <sub>5</sub> (ICSD: 07-7519)
KF165	Er:SrBPO <sub>5</sub> (ICSD: 07-7519)
KF166	Gd:SrBPO <sub>5</sub> (ICSD: 07-7519)
KF167	La:SrBPO <sub>5</sub> (ICSD: 07-7519)
KF168	Nd:SrBPO <sub>5</sub> (ICSD: 07-7519)
KF169	Sm:SrBPO <sub>5</sub> (ICSD: 07-7519)
KF170	Dy:SrBPO <sub>5</sub> (ICSD: 07-7519)

Şekil 3.70' de KF164, KF165, KF166, KF167, KF168, KF169 ve KF170 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. Literatürde benzer bileşikler, 800-1150 °C sıcaklık aralıklarında çeşitli sürelerde sentezlenmiştir [70, 77, 80-82]. Tablo 3.69' da verilen "d" değerleri literatür verileri ile karşılaştırıldığında kullanılan nadir toprak metallerinin SrBPO<sub>5</sub> bileşiğine başarılı bir şekilde dope edildiği belirlenmiştir [98, 114].



Şekil 3.70: KF164, KF165, KF166, KF167, KF168, KF169 ve KF170 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.

**Tablo 3.69:** KF164-170 deneylerine ait X-ışını toz kırınım verileri.

I/I <sub>0</sub>	h k l	SrBPO <sub>5</sub>	Y:SrBPO <sub>5</sub>	Er:SrBPO <sub>5</sub>	Gd:SrBPO <sub>5</sub>	La:SrBPO <sub>5</sub>	Nd:SrBPO <sub>5</sub>	Sm:SrBPO <sub>5</sub>	Dy:SrBPO <sub>5</sub>
		d <sub>teorik</sub> (Å)	d <sub>deneysel</sub> (Å)	d <sub>deneysel</sub> (Å)	d <sub>deneysel</sub> (Å)	d <sub>deneysel</sub> (Å)	d <sub>deneysel</sub> (Å)	d <sub>deneysel</sub> (Å)	d <sub>deneysel</sub> (Å)
10,5	0 1 1	4,47443	4,46315	4,46117	4,47117	4,47245	4,46916	4,47684	4,46692
100,0	1 1 0	3,42450	3,42059	3,41820	3,42631	3,42604	3,41884	3,42481	3,42330
5,5	1 1 1	3,06000	3,05531	3,05268	3,33004	3,32440	3,32794	3,32671	3,05622
18,5	0 2 0	2,96570	2,95306	3,01196	3,12754	3,18417	3,12765	3,12471	3,01466
4,8	2 0 1	2,71943	2,71760	2,95187	3,06241	3,12663	3,05720	3,06380	2,95497
12,2	1 1 2	2,41563	2,41643	2,69063	3,02171	3,06001	3,01896	3,01485	2,71736
8,4	0 0 3	2,27200	2,27076	2,41356	2,95738	3,02180	2,95688	2,95425	2,69434
19,1	0 2 2	2,23721	2,23625	2,26945	2,90014	2,95731	2,89823	2,69477	2,41597
-	-	-	2,19762	2,23477	2,69442	2,89730	2,69209	2,52506	2,27189
16,2	1 1 1	2,12962	2,12943	2,19238	2,41825	2,69615	2,41833	2,41566	2,23760
-	-	-	2,04425	2,12853	2,27324	2,41663	2,26924	2,27064	2,19643
2,5	0 3 0	1,97714	1,97627	2,04407	2,23998	2,27414	2,24070	2,23535	2,13084
1,8	0 3 1	1,89886	1,89462	2,01002	2,19650	2,23756	2,19734	2,19234	2,04746
22,3	2 1 2	1,87295	1,87308	1,97272	2,13145	2,19802	2,13039	2,12869	2,01000
1,6	2 0 3	1,80357	1,80205	1,89252	2,04452	2,13157	2,04896	2,04403	1,97688
3,3	2 2 0	1,71225	1,71146	1,87235	2,01195	2,04935	2,00914	2,00992	1,89268
3,9	1 3 0	1,64508	1,64524	1,82010	1,97536	2,01112	1,97616	1,97690	1,87359

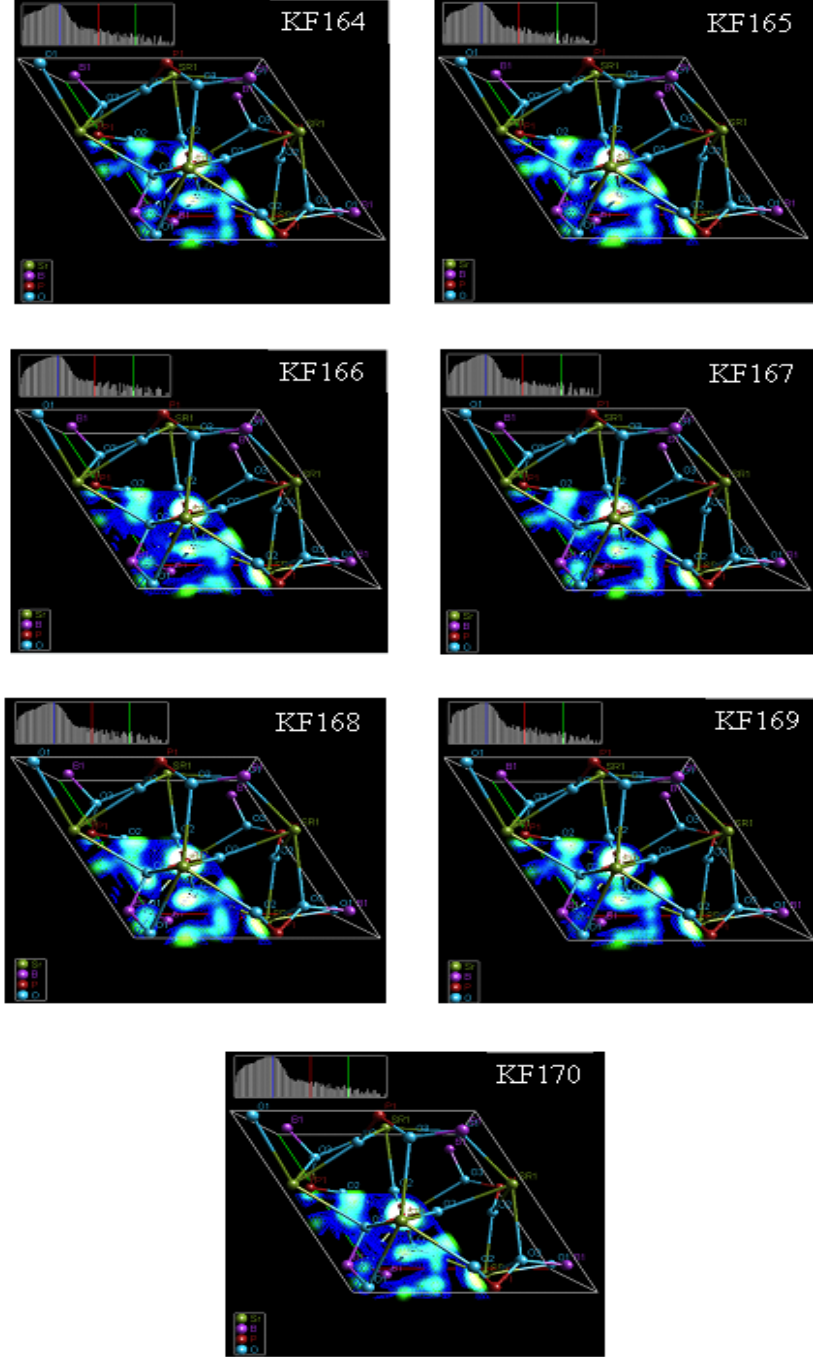
KF164, KF165, KF166, KF167, KF168, KF169 ve KF170 kodlu deneylere ait Rietveld yöntemi ile ilk kez bu çalışmada hesaplanmış olan hücre parametreleri Tablo 3.70' te verilmiştir. Y:SrBPO<sub>5</sub>, Er:SrBPO<sub>5</sub>, Gd:SrBPO<sub>5</sub> ve La:SrBPO<sub>5</sub> sistemlerinde hücre parametrelerinin büyüdüğü; Nd:SrBPO<sub>5</sub>, Sm:SrBPO<sub>5</sub> ve Dy:SrBPO<sub>5</sub> sistemlerinde ise hücre parametrelerinin küçüldüğü belirlenmiştir. Y, Er, Gd ve La iyonlarının yarıçaplarının stronsiyum iyonunun yarıçapından çok farklı olmamasından dolayı iyonlar yer değiştirmekte ve böylece hücre parametreleri büyümektedir [115-123]. Nd, Sm ve Dy iyonlarının yarıçaplarının stronsiyum iyonundan çok farklı olmamasına rağmen hücre parametrelerinin küçülmüş olmasının nedeni ise bu iyonların birim hücre boşluklarına yerleşmiş olması ya da yer değiştirmiş olsalar bile çekirdekler arası çekmenin, itmeden güçlü olmasıdır [128, 129].

**Tablo 3.70:** KF164, KF165, KF166, KF167, KF168, KF169 ve KF170 kodlu deneylere ait hesaplanan hücre parametre verileri ve saf SrBPO<sub>5</sub> ile karşılaştırılması.

<b>Bileşikler</b>	SrBPO <sub>5</sub>	Y:CaBPO <sub>5</sub>	Er:CaBPO <sub>5</sub>	Gd:CaBPO <sub>5</sub>	La:CaBPO <sub>5</sub>	Nd:CaBPO <sub>5</sub>	Sm:CaBPO <sub>5</sub>	Dy:CaBPO <sub>5</sub>
<b>İyonik Yarıçaplar (pm)</b>	132	104	103	107.8	117.2	112.3	109.8	105.2
<b>Kristal Sistem</b>	hekzagonal	hekzagonal	hekzagonal	hekzagonal	hekzagonal	hekzagonal	hekzagonal	hekzagonal
<b>a (Å)</b>	6.844660	8.844441	6.843827	6.844468	6.843577	6.842964	6.840331	6.843445
<b>c (Å)</b>	6.811995	6.812520	6.813282	6.814327	6.813195	6.813377	6.810469	6.812801

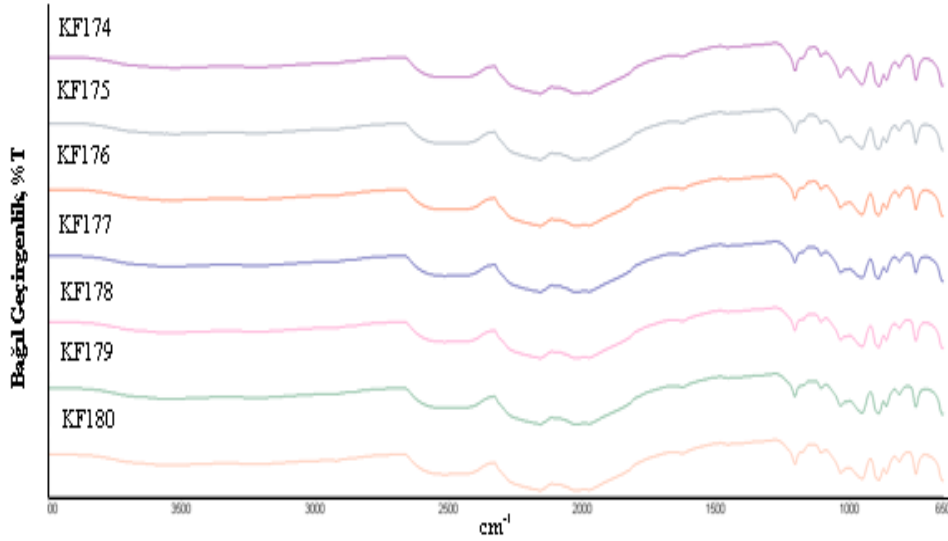


Şekil 3.71’ de elde edilen bileşiklerin Rietveld hesaplamaları sonucu çizilen Fourier haritaları verilmiştir. Haritalardan edinilen bilgiler, XRD verileri ve Rietveld hesaplamaları ile uyum göstermektedir.



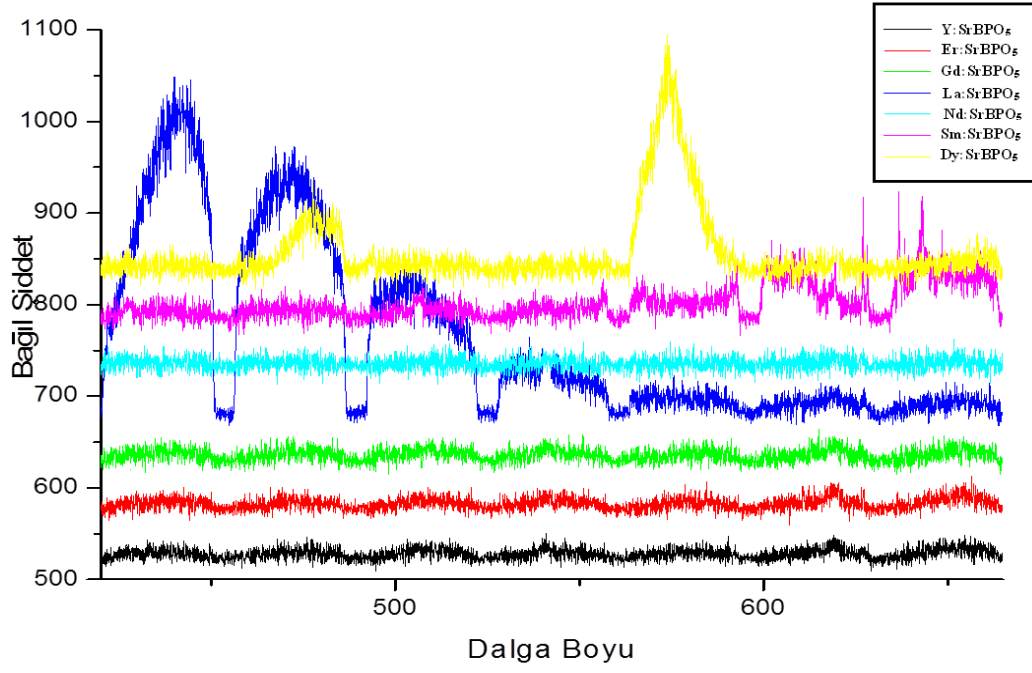
Şekil 3.71: KF164, KF165, KF166, KF167, KF168, KF169 ve KF170 kodlu deneylerine ait Fourier haritaları.

Şekil 3.72’ de KF164, KF165, KF166, KF167, KF168, KF169 ve KF170 deneylerine ait FTIR spektrumları verilmiştir. 650–673  $\text{cm}^{-1}$  aralığında bulunan dalga sayısı verileri  $\delta(\text{BOP})$  grubu [85, 86, 124], 681–750  $\text{cm}^{-1}$  aralığında bulunan dalga sayısı verileri  $\nu_s(\text{BOP})$  grubu [85, 86, 125] ve 796–850  $\text{cm}^{-1}$  aralığındaki değerler ise  $\nu_s(\text{BOP})$  grubu titreşimlerine aittir. Parmak izi bölgesinin dışında kalan yayvan dalga sayısı değerleri de atmosferden kaynaklan  $\text{CO}_2$  titreşimlerine aittir [126, 127].



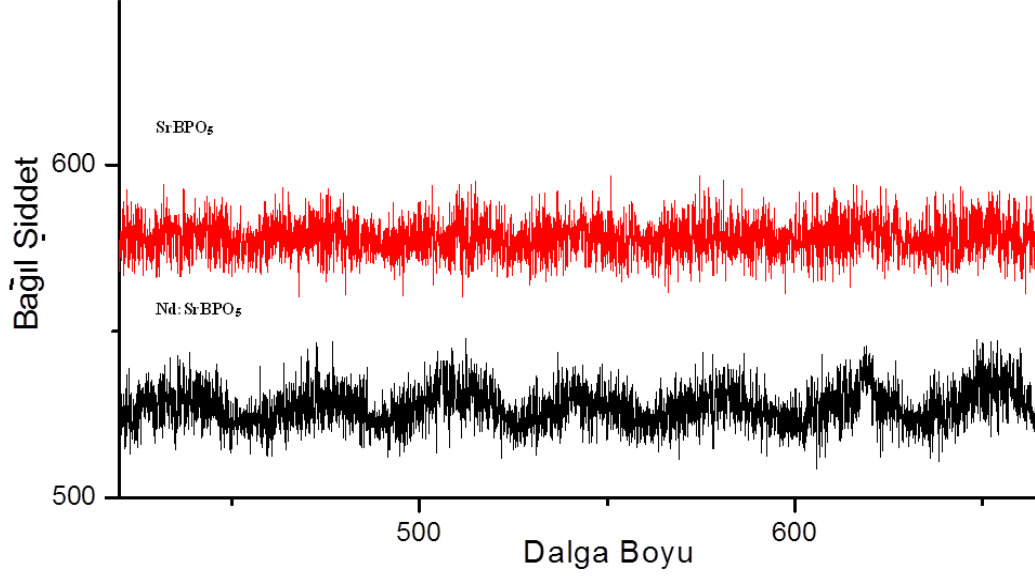
Şekil 3.72: KF164, KF165, KF166, KF167, KF168, KF169 ve KF170 deneylerine ait FTIR spektrumları.

Şekil 3.73’ te verilen KF164, KF165, KF166, KF167, KF168, KF169 ve KF170 deneylerine ait VUV-PL spektrumları ilk kez bu tez çalışmasında elde edilmiştir. Disprosyum dope edilmiş  $\text{SrBPO}_5$  bileşiğinin sarı renkli PL spektrumu göz önüne alındığında 485 nm ve 575 nm değerlerindeki dalga boylarının sırasıyla  $^4\text{F}_{9/2} \rightarrow ^6\text{H}_{15/2}$  ve  $^4\text{F}_{9/2} \rightarrow ^6\text{H}_{13/2}$  geçişlerine ait olduğu görülmüştür [115, 130]. Samaryum dope edilmiş  $\text{SrBPO}_5$  bileşiğinin pembe renkli PL spektrumu göz önüne alındığında yaklaşık olarak 560, 600 ve 645 nm dalga boylarında bulunan değerlerin sırasıyla  $^4\text{G}_{5/2} \rightarrow ^6\text{H}_{J/2}$  ( $J=5, 7, 9$ ) geçişlerine ait olduğu belirlenmiştir [123, 131, 132]. Lantan dope edilmiş  $\text{SrBPO}_5$  bileşiğinin koyu mavi renkli PL spektrumu göz önüne alındığında, lantanın sadece lüminesans eğrilerinin şiddetini değiştirdiği gözlemlenmiştir [133, 134].



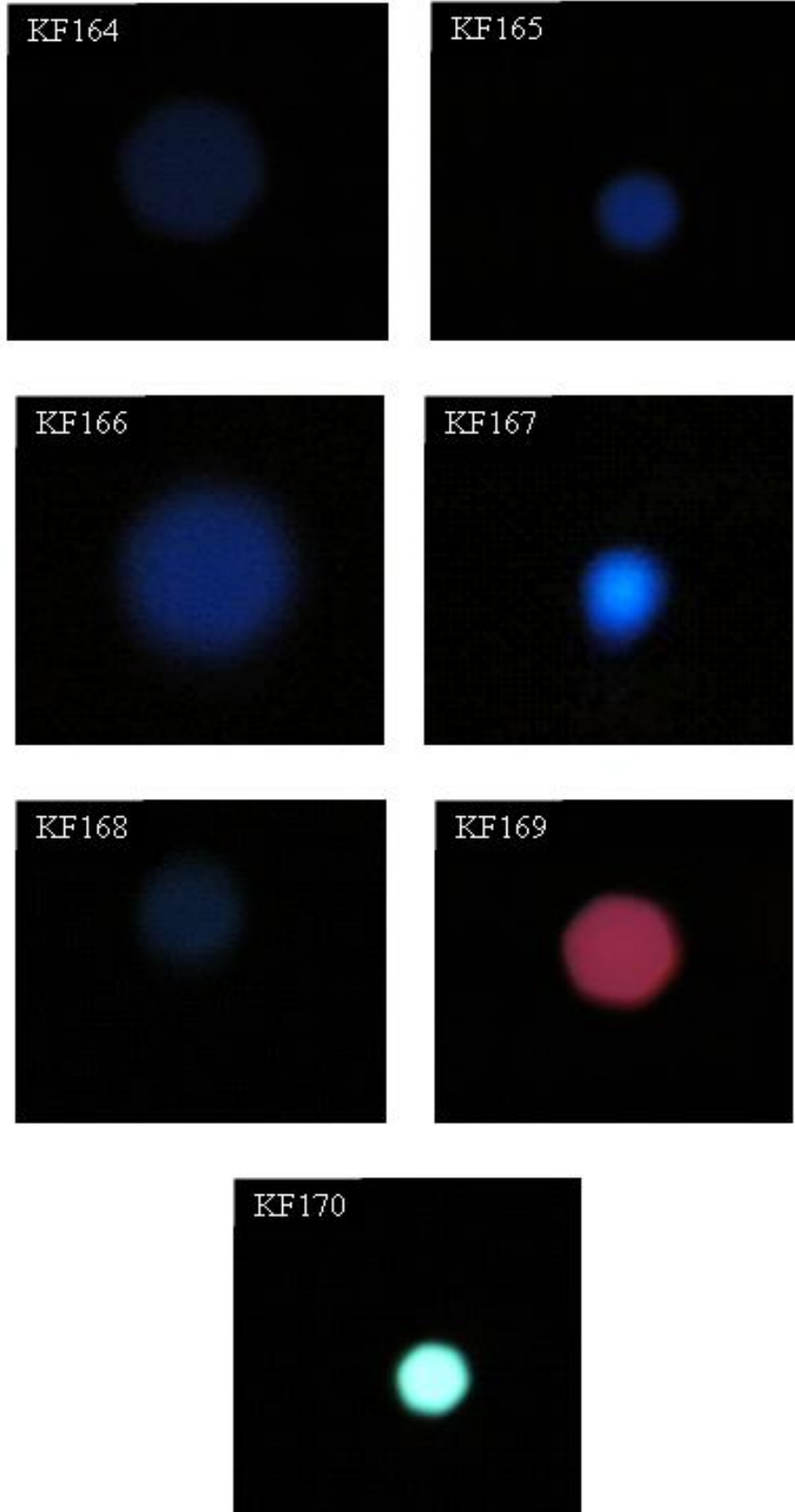
Şekil 3.73: KF164, KF165, KF166, KF167, KF168, KF169 ve KF170 deneylerine ait VUV-PL spektrumları.

Şekil 3.74' te Nd:SrBPO<sub>5</sub> ve SrBPO<sub>5</sub> bileşiklerine ait VUV-PL spektrumları karşılaştırmalı olarak verilmiştir. Hiçbir nadir toprak metali dope edilmemiş saf haldeki SrBPO<sub>5</sub> bileşiğinin, dope edilen metaller arasında en düşük şiddete sahip olan Nd dope edilmiş SrBPO<sub>5</sub> bileşiğine kıyasla oldukça düşük lüminesans değerine sahip olduğu görülmektedir.



Şekil 3.74: Nd:SrBPO<sub>5</sub> ve SrBPO<sub>5</sub> bileşiklerine ait VUV-PL spektrumları.

Şekil 3.75' te üzerine lazer ışını düşürülmüş olan KF164, KF165, KF166, KF167, KF168, KF169 ve KF170 kodlu numunelerin yapmış olduğu ışımaların görüntüleri verilmiştir. Görüntüler kıyaslandığında lüminesans spektrumlarından elde edilen sıralamanın aynı olduğu görülmüştür. KF167, KF169 ve KF180 kodlu numunelerin, diğerlerinden farklı olarak sırasıyla açık mavi, kırmızı ve beyaz renkli ışımaya yaptığı gözlemlenmiştir.



Şekil 3.75: KF164, KF165, KF166, KF167, KF168, KF169 ve KF170 deneylerine ait ışma görüntüleri.

### 3.90 RE(Y, Er, Gd, La, Nd, Sm, Dy):BaCO<sub>3</sub>/H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>/NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneyler

**Tablo 3.71:** RE(Y, Er, Gd, La, Nd,Dy):BaCO<sub>3</sub>/H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>/NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve kodları.

Kod	Başlangıç malzemeleri	Mol oranları	Sentez koşulları	Hedeflenen ürün
KF171	BaCO <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> + Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1:1:1:0.01	400 °C/ 2 saat+ 900 °C/ 4 saat	BaBPO <sub>5</sub> :Y
KF172	BaCO <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> + Er <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1:1:1:0.01	400 °C/ 2 saat+ 900 °C/ 4 saat	BaBPO <sub>5</sub> :Er
KF173	BaCO <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> + Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1:1:1:0.01	400 °C/ 2 saat+ 900 °C/ 4 saat	BaBPO <sub>5</sub> :Gd
KF174	BaCO <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> + La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1:1:1:0.01	400 °C/ 2 saat+ 900 °C/ 4 saat	BaBPO <sub>5</sub> :La
KF175	BaCO <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> + Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1:1:1:0.01	400 °C/ 2 saat+ 900 °C/ 4 saat	BaBPO <sub>5</sub> :Nd
KF176	BaCO <sub>3</sub> + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> + NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> + Dy <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1:1:1:0.01	400 °C/ 2 saat+ 900 °C/ 4 saat	BaBPO <sub>5</sub> :Dy

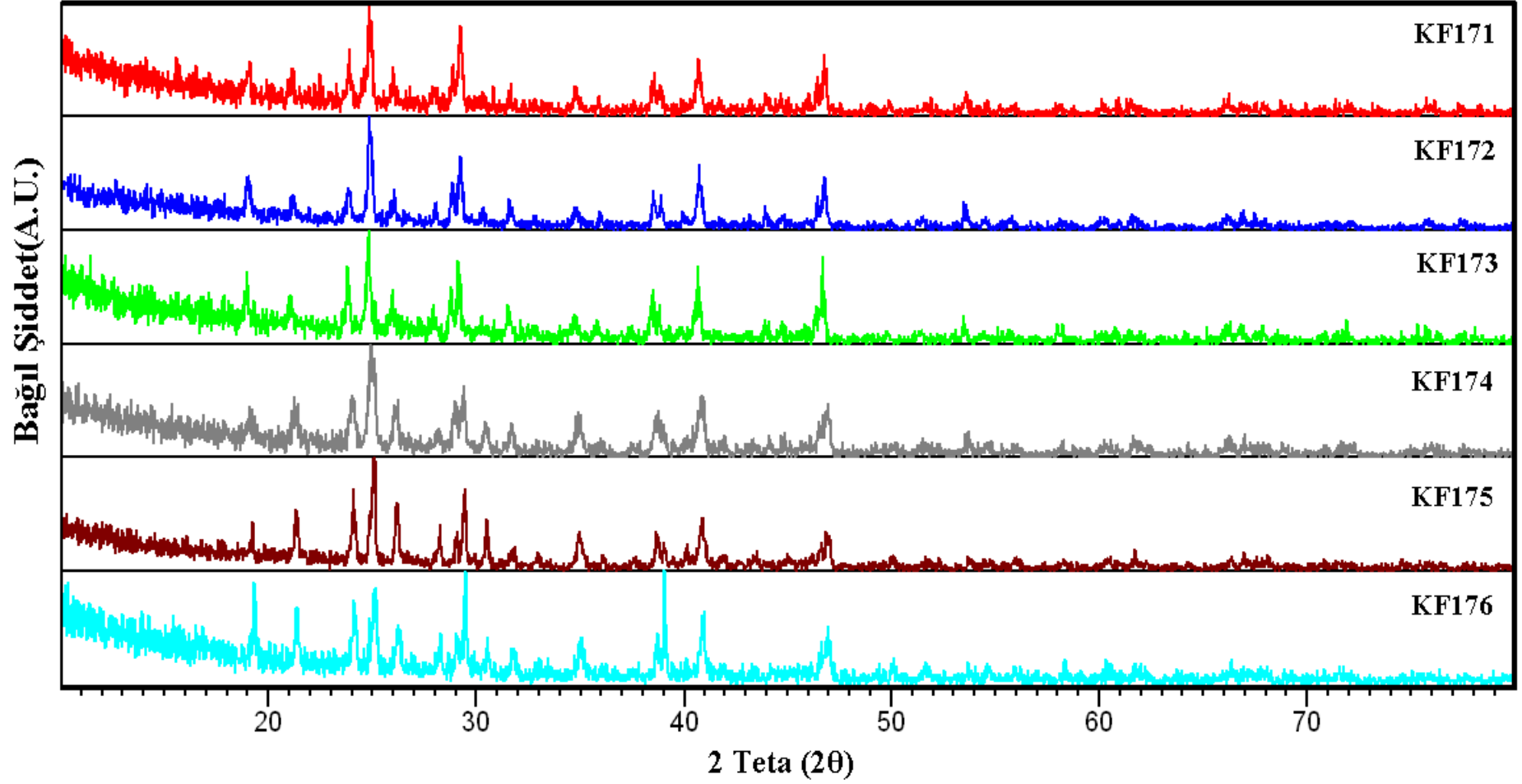
### 3.91 RE(Y, Er, Gd, La, Nd, Sm, Dy):BaCO<sub>3</sub> / H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> / NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> Sisteminde Kül Fırını Yöntemiyle Gerçekleştirilen Deneylerin Sonuçları

Tablo 3.71' de RE(Y, Er, Gd, La, Nd, Dy):BaCO<sub>3</sub> / H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> / NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> sisteminde gerçekleştirilen deneyler ve Tablo 3.72' de bu deneyler sonucunda elde edilen ürünler ICSD numaraları ile verilmiştir.

**Tablo 3.72:** RE(Y, Er, Gd, La, Nd,Dy):BaCO<sub>3</sub>/ H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>/ NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> sisteminde kül fırını yöntemiyle gerçekleştirilen deneyler ve ürünler.

<b>Kod</b>	<b>Sentezlenen ürün</b>
KF171	Y:BaBPO <sub>5</sub> (ICSD: 05-0875)
KF172	BaBPO <sub>5</sub> (ICSD: 05-0875) Ba <sub>3</sub> BP <sub>3</sub> O <sub>12</sub> (ICSD:07-7517)
KF173	Gd:BaBPO <sub>5</sub> (ICSD: 05-0875)
KF174	La:BaBPO <sub>5</sub> (ICSD: 05-0875)
KF175	Ba <sub>3</sub> BP <sub>3</sub> O <sub>12</sub> (ICSD:07-7517) BaBPO <sub>5</sub> (ICSD: 05-0875)
KF176	BaBPO <sub>5</sub> (ICSD: 05-0875) Ba <sub>3</sub> BP <sub>3</sub> O <sub>12</sub> (ICSD:07-7517)

Şekil 3.76' te KF171, KF172, KF173, KF174, KF175 ve KF176 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri verilmiştir. Elde edilen veriler literatür ile karşılaştırıldığında Y, Gd ve La metallerinin BaBPO<sub>5</sub> bileşiğinin kristal boşluklarına yerleştiği belirlenmiştir. Literatürde benzer bileşikler, 800-1150 °C sıcaklık aralıklarında çeşitli sürelerde sentezlenmiştir [70, 77, 80-82]. Bu bileşiklere ait “d” değerlerinin literatür verileri ile karşılaştırılması Tablo 3.75' te verilmiştir. KF172, KF175 ve KF176 bileşiklerinin ise çift faz olarak oluştuğu belirlenmiştir.



Şekil 3.76: KF171, KF172, KF173, KF174, KF175 ve KF176 deneylerine ait X-ışınları toz kırınım desenleri.



**Tablo 3.73:** KF171, KF173 ve KF174 deneylerine ait X-ışını toz kırınım verileri.

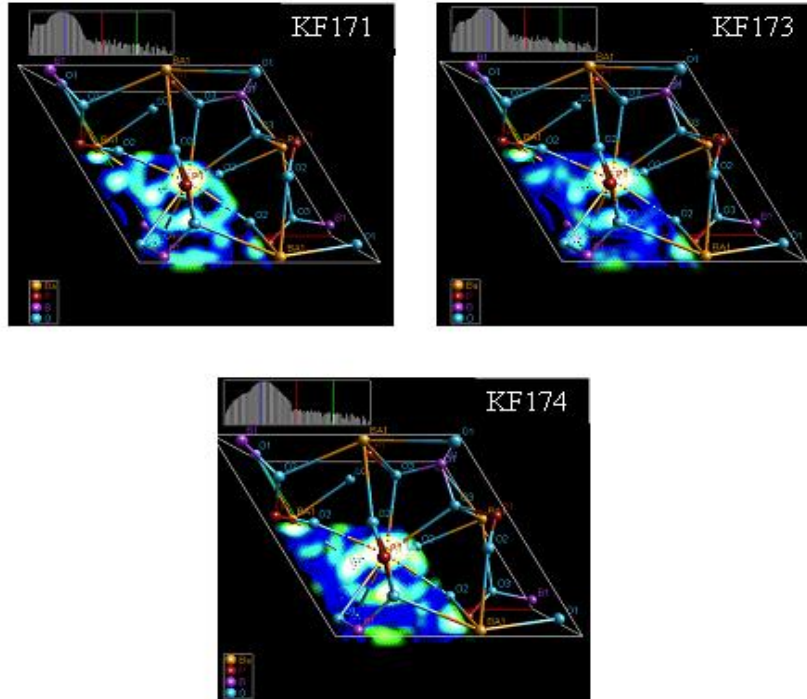
I/I <sub>0</sub>	h k l	BaBPO <sub>5</sub>	Y:BaBPO <sub>5</sub>	Gd:BaBPO <sub>5</sub>	La:BaBPO <sub>5</sub>
		d <sub>teorik</sub> (Å)	d <sub>deneysel</sub> (Å)	d <sub>deneysel</sub> (Å)	d <sub>deneysel</sub> (Å)
40,7	0 1 1	4,62006	4,65151	4,68764	4,62745
-	-	-	4,20909	4,20459	4,18009
-	-	-	3,72666	3,73120	3,69487
100,0	1 1 0	3,55450	3,57440	3,58329	3,57081
-	-	-	3,42843	3,43394	3,54558
8,6	1 1 1	3,16838	3,18869	3,19177	3,39991
17,4	0 2 0	3,07829	3,08847	3,09770	3,16655
79,7	1 0 2	3,03940	3,05179	3,06275	3,03469
14,0	2 0 1	2,81720	2,83222	2,83766	2,93518
-	-	-	2,57878	2,58016	2,82358
12,4	1 1 2	2,49211	2,49965	2,50687	2,56503
11,1	0 0 3	2,33000	2,32931	2,34045	2,33379
23,2	2 1 1	2,20784	2,21749	2,21812	2,20890
4,5	0 3 0	2,05219	2,05543	2,05950	2,15081
27,7	2 1 2	1,93693	1,94273	2,02360	2,05040
-	-	-	1,82805	1,94472	1,93342
6,7	1 3 0	,170753	1,70926	1,77877	1,77383
8,7	2 2 2	1,58419	1,58751	1,71193	1,70679
4,4	3 1 2	1,53421	1,53441	1,68387	1,67991
4,3	4 0 1	1,50314	1,50316	1,58780	1,64097

Tablo 3.74' te KF171, KF173 ve KF174 kodlu deneylere Rietveld yöntemi ile ilk kez bu çalışmada hesaplanmış olan hücre parametreleri verilmiştir. Gd:BaBPO<sub>5</sub> ve La:BaBPO<sub>5</sub> sistemlerinde hücre parametrelerinin büyüdüğü; Y:BaBPO<sub>5</sub> sisteminde ise hücre parametrelerinin küçüldüğü belirlenmiştir. Gd ve La iyonlarının yarıçaplarının baryum iyonunun yarıçapından çok farklı olmamasından dolayı iyonlar yer değiştirdiği için hücre parametreleri büyümüştür [98-106]. Y iyonunun yarıçapının, baryum iyonu çarıçapından oldukça küçük olması hücre parametrelerinin küçülmesine neden olmuştur [128, 129].

**Tablo 3.74:** KF171, KF173 ve KF174 kodlu deneylere ait hesaplanan hücre parametre verileri ve saf BaBPO<sub>5</sub> ile karşılaştırılması.

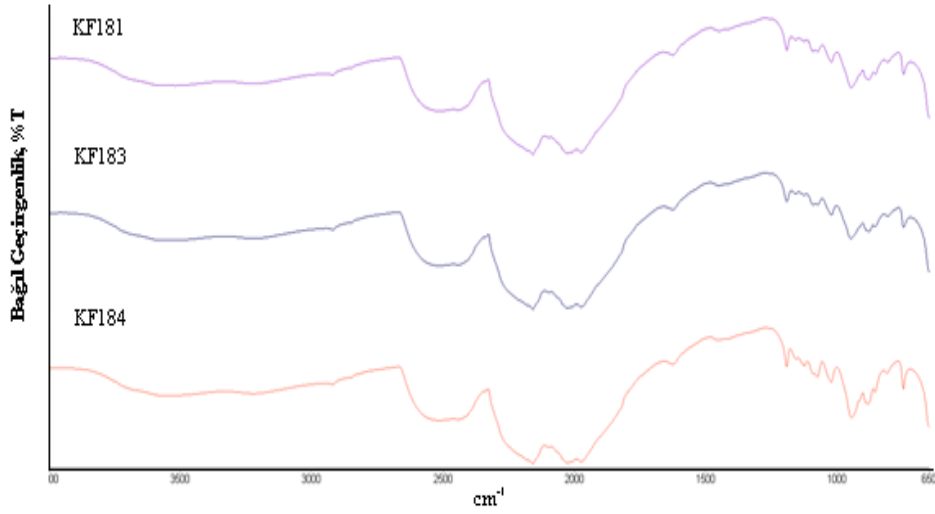
Bileşikler	BaBPO <sub>5</sub>	Y:BaBPO <sub>5</sub>	Gd:BaBPO <sub>5</sub>	La:BaBPO <sub>5</sub>
İyonik Yarıçaplar (pm)	149	104	107.8	117.2
Kristal Sistem	hekzagonal	hekzagonal	hekzagonal	hekzagonal
a (Å)	7.100321	7.096161	7.095432	7.097284
c (Å)	6.970488	6.972474	6.978899	6.975303

Şekil 3.77' de KF171, KF173 ve KF174 deneylerine ait Fourier haritaları verilmiştir. Haritalardan edinilen bilgiler, XRD verileri ve Rietveld hesaplamaları ile uyum göstermektedir.



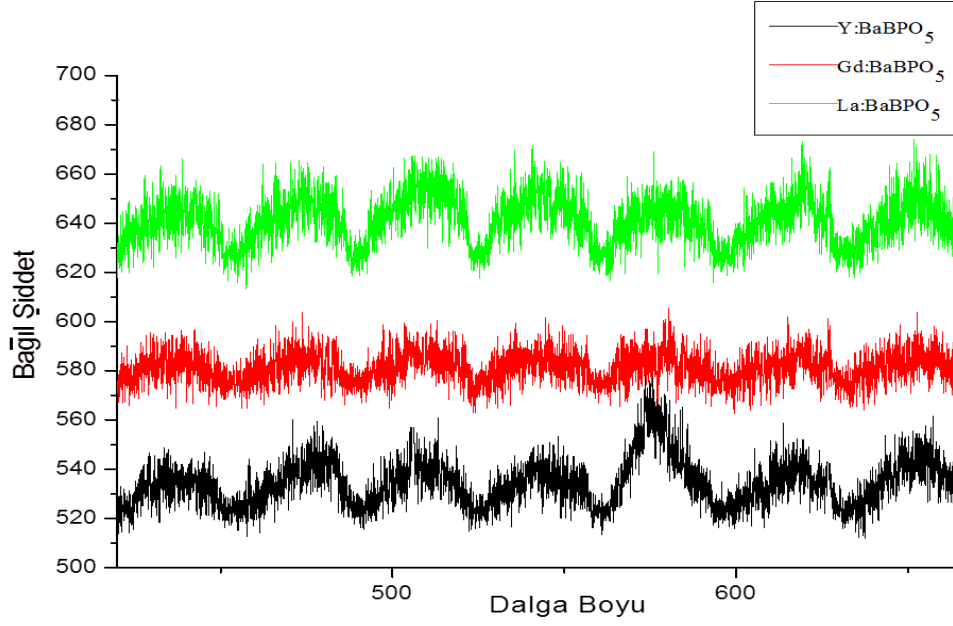
**Şekil 3.77:** KF171, KF173 ve KF174 deneylerine ait Fourier haritaları.

Şekil 3.78’ de KF171, KF173 ve KF174 deneylerine ait FTIR spektrumları verilmiştir. 650–673  $\text{cm}^{-1}$  aralığında bulunan dalga sayısı verileri  $\delta(\text{BOP})$  grubu [85, 86, 124], 681–750  $\text{cm}^{-1}$  aralığında bulunan dalga sayısı verileri  $\nu_s(\text{BOP})$  grubu [85, 86, 125] ve 796–850  $\text{cm}^{-1}$  aralığındaki değerler ise  $\nu_s(\text{BOP})$  grubu titreşimlerine aittir. Parmak izi bölgesinin dışında kalan yayvan dalga sayısı değerleri de atmosferden kaynaklan CO<sub>2</sub> titreşimlerine aittir [126, 127].



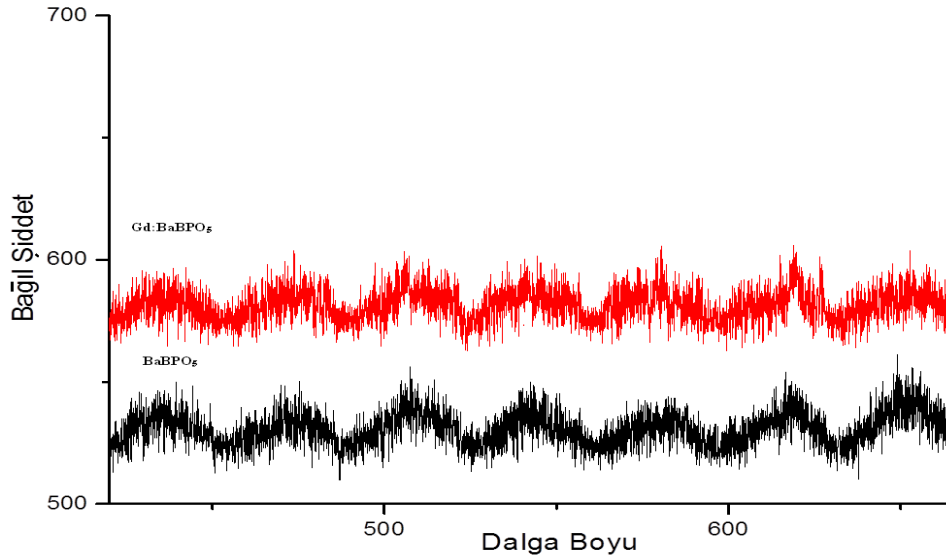
Şekil 3.78: KF171, KF173 ve KF174 deneylerine ait FTIR spektrumları.

Şekil 3.79’ da KF171, KF173 ve KF174 deneylerine ait VUV-PL spektrumları verilmiş olup, ilk kez bu çalışma ile bu bileşiklerin lüminesans özellikleri incelenmiştir. Her üç numune için de lüminesans şiddetinin kısmı olarak artmış olmasının yanı sıra, La dope edilmiş BaBPO<sub>5</sub> bileşiğinin 625 nm’ de vermiş olduğu fosforesans piki,  $^5\text{D}_0 \rightarrow ^7\text{F}_2$  geçişlerine aittir [133]. Y dope edilmiş BaBPO<sub>5</sub> bileşiğinin 575 nm civarında vermiş olduğu fosforesans piki ise yapısal kusurlardan kaynaklanmıştır [135,136].



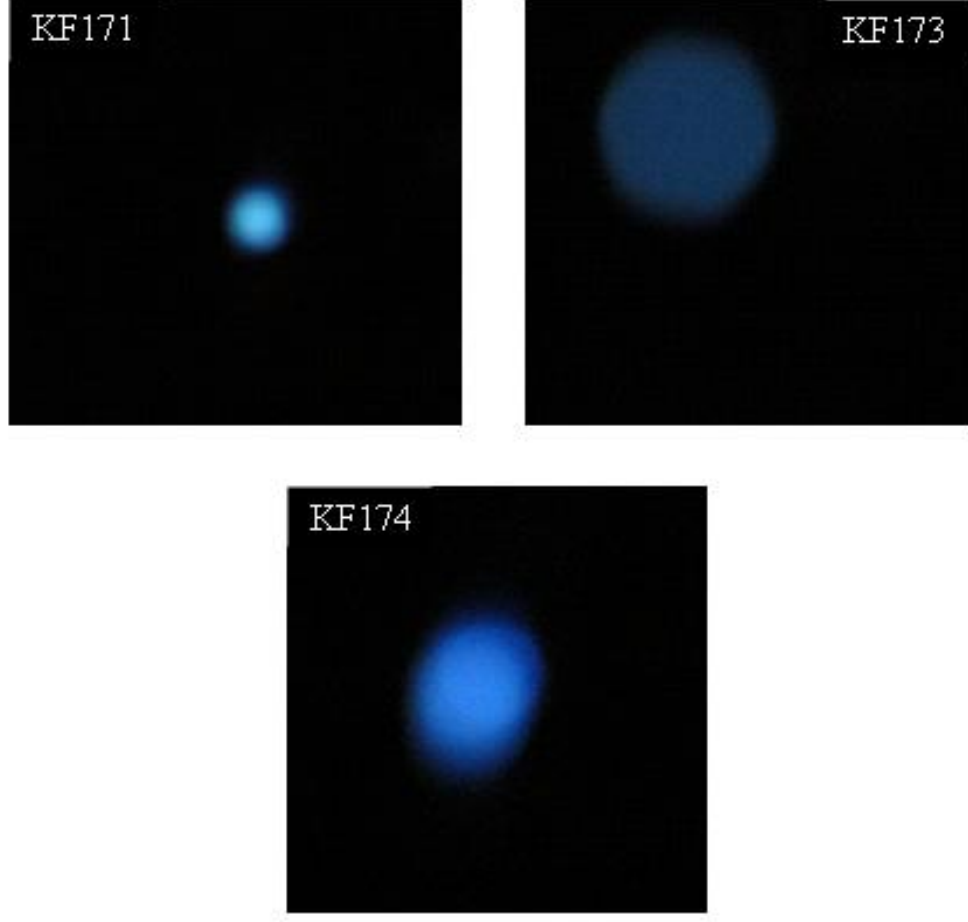
Şekil 3.79: KF171, KF173 ve KF174 deneylerine ait VUV-PL spektrumları.

Şekil 3.80’ de Gd:BaBPO<sub>5</sub> ve BaBPO<sub>5</sub> bileşiklerine ait VUV-PL spektrumları karşılaştırmalı olarak verilmiştir. Hiçbir nadir toprak metali dope edilmemiş olan saf haldeki BaBPO<sub>5</sub> bileşiğinin, dope edilen metaller arasında en düşük şiddete sahip olan Gd dope edilmiş BaBPO<sub>5</sub> bileşiğine kıyasla düşük lüminesans değerine sahip olduğu görülmektedir.



Şekil 3.80: Gd:BaBPO<sub>5</sub> ve BaBPO<sub>5</sub> bileşiklerine ait VUV-PL spektrumları.

Şekil 3.81’ de üzerine lazer ışını düşürülmüş olan KF171, KF173 ve KF174 kodlu numunelerin yapmış olduğu ışımaların görüntüleri verilmiştir. Elde edilen görüntülerin, PL spektrumları ile uyum içerisinde olduğu görülmektedir.



**Şekil 3.81:** KF171, KF173 ve KF174 deneylerine ait ışıma görüntüleri.

#### 4. SONUÇ VE ÖNERİLER

B / Aktif C sisteminde 1:1 mol oranında reaksiyonun gerçekleşmesi için en uygun sürenin belirlenmesi amacıyla numuneler, 5-30 dakika sürelerle 850 Watt güç değerinde mikrodalga ışına maruz bırakılmıştır. Reaksiyonlar için en uygun süre 30 dakika olarak belirlenmiştir. B / Aktif C sisteminde 1:1 mol oranında reaksiyonun gerçekleşmesi için en uygun gücün belirlenmesi amacıyla numuneler, 100-850 Watt güçlerde mikrodalga ışına maruz bırakılmıştır. Reaksiyonlar için en uygun güç 850 Watt olarak belirlenmiştir. B / Aktif C sisteminde 30 dakika sürede 850 Watt güç değerinde reaksiyonun gerçekleşmesi için en uygun mol oranının belirlenmesi amacıyla numuneler, 1' den 16' ya kadar değişen mol oranlarında hazırlanmıştır. En uygun mol oranının 16:1 olduğu belirlenmiştir.

B / B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, B / H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> ve B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> / H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> sistemlerinde 1:3, 3:2 ve 1:5 mol oranlarında homojenleştirici çözelti etkisini incelemek amacıyla; çözücü olmadan, etanol ve % 6' lık borik asit çözeltileri kullanılarak 850 Watt güç değerinde, 30 dakika süreyle gerçekleştirilen deneyler sonucunda, homojenleştirici çözünün reaksiyon üzerine bir etkisinin olmadığı belirlenmiştir.

B / Aktif C / B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sisteminde çeşitli mol oranlarında 850 Watt güç değerinde, 30 dakika süreyle gerçekleştirilen deneyler sonucunda hedeflenen bileşikler elde edilememiştir.

B / Aktif C / Üre sisteminde çeşitli mol oranlarında 850 Watt güç değerinde, 30 dakika süreyle deneyler gerçekleştirilmiştir. 1:1:1 mol oranında gerçekleştirilen deney sonucunda yaklaşık B, C, N ve O elementlerini içeren bir bileşik ilk kez bu çalışmada elde edilmiştir. Bileşik, monoklinik sistemde kristallenmiştir ve hücre parametrelerinin a=12.9575 Å, b=9.3264 Å, c=9.6529, β=113.277 olduğu ilk kez bu çalışma ile belirlenmiştir. Bileşiğe ait XRD, FTIR, SEM/EDX, TG/DTA analizleri ve POWD hesaplamaları yapılmıştır.

B / Aktif C / Glisin sisteminde çeşitli mol oranlarında 850 Watt güç değerinde, 30 dakika süreyle deneyler gerçekleştirilmiştir. Ancak hedeflenen B<sub>6</sub>O bileşiği elde edilememiştir.

B / B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> / Üre sisteminde çeşitli mol oranlarında 850 Watt güç değerinde, 30 dakika süreyle deneyler gerçekleştirilmiştir. Ancak hedeflenen B<sub>6</sub>O bileşiği elde edilememiştir.

16:1 mol oranında B / Üre sisteminde 850 Watt güç değerinde, 30 dakika süreyle deneyler gerçekleştirilmiştir. Ancak hedeflenen B<sub>6</sub>O bileşiği elde edilememiştir.

% 10-90 üre kullanılarak B elementinin hedef bileşiğe dönüşmesi amacıyla 850 Watt güç değerinde, 30 dakika süreyle çeşitli deneyler gerçekleştirilmiştir. Ancak hedeflenen B<sub>6</sub>O bileşiği elde edilememiştir.

B / Glisin sisteminde çeşitli mol oranlarında 850 Watt güç değerinde, 30 dakika süreyle deneyler gerçekleştirilmiştir. 16:1 mol oranında gerçekleştirilen deney sonucunda hedeflenen B<sub>6</sub>O bileşiği ilk kez bu çalışmada düşük bir kristallenme ile elde edilmiştir. Bununla birlikte, amorf olarak elde edilmesinden dolayı Rietveld analizi gerçekleştirilememiştir.

% 10-90 glisin kullanılarak B elementinin hedef bileşiğe dönüşmesi amacıyla 850 Watt güç değerinde, 30 dakika süreyle çeşitli deneyler gerçekleştirilmiştir. Ancak hedeflenen B<sub>6</sub>O bileşiği elde edilememiştir.

% 22-38 glisin kullanılarak B elementinin hedef bileşiğe dönüşmesi amacıyla 850 Watt güç değerinde, 30 dakika süreyle hem açık atmosferde hem de azot atmosferini içeren cam sisteminde çeşitli deneyler gerçekleştirilmiştir. Ancak hedeflenen B<sub>6</sub>O bileşiği elde edilememiştir.

Aktif C / H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> sisteminde çeşitli mol oranlarında 850 Watt güç değerinde, 30 dakika süreyle hem açık atmosferde hem de azot atmosferini içeren cam sisteminde deneyler gerçekleştirilmiştir. Ancak hedeflenen B<sub>6</sub>O bileşiği elde edilememiştir.

Aktif C / B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sisteminde çeşitli mol oranlarında 850 Watt güç değerinde, 30 dakika süreyle azot atmosferini içeren cam sisteminde deneyler gerçekleştirilmiştir. Ancak hedeflenen B<sub>4</sub>C bileşiği elde edilememiştir.

Mg / B veya  $H_3BO_3$  / Aktif C sisteminde çeşitli mol oranlarında 850 Watt güç değerinde, 30 dakika süreyle hem açık atmosferde hem de azot atmosferini içeren cam sisteminde deneyler gerçekleştirilmiştir. Ancak hedeflenen  $MgB_2$  bileşiği elde edilememiştir.

$M^{2+}$  (Ba, Sr, Co, Ni) /  $Y_2O_3$  /  $H_3BO_3$  / Üre sisteminde çeşitli mol oranlarında 850 Watt güç değerinde, 30 dakika süreyle deneyler gerçekleştirilmiştir. Ancak hedeflenen  $M_3Y_2(BO_3)_2$  (M=Ba, Sr, Co, Ni) bileşikleri elde edilememiştir.

$M^{2+}$  (Ba, Sr, Co, Ni) /  $MoO_3$  /  $H_3BO_3$  / Üre sisteminde çeşitli mol oranlarında 850 Watt güç değerinde, 30 dakika süreyle deneyler gerçekleştirilmiştir. Ancak hedeflenen  $M_3Mo_2(BO_3)_2$  (M=Ba, Sr, Co, Ni) bileşikleri elde edilememiştir.

$M^{2+}$  (Ba, Sr, Co, Ni) /  $Y_2O_3$  /  $H_3BO_3$  sisteminde çeşitli mol oranlarında 900 °C' sıcaklık ve 4 saat süreyle kül fırınında deneyler gerçekleştirilmiştir.  $Ba_3Y(BO_3)_3$  (ICSD:09-9180),  $Sr_3Y_2B_4O_{12}$  (ICSD:05-4759),  $Ni_3B_2O_6$  (ICSD:00-2016)/  $YBO_3$  (ICSD:10-9264) bileşikleri elde edilmiştir.

$M^{2+}$  (Ba, Sr, Co, Ni) /  $MoO_3$  /  $H_3BO_3$  sisteminde çeşitli mol oranlarında 900 °C' sıcaklık ve 4 saat süreyle kül fırınında deneyler gerçekleştirilmiştir.  $SrMoO_4$  (ICSD:24-5802)/  $SrB_2O_4$  (ICSD:20-3226) ve  $MoNiO_4$  (ICSD:08-1059)/  $Ni_3B_2O_6$  (ICSD:00-2016) bileşikleri çift fazlı olarak elde edilmiştir.

$M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  sisteminde 1:1:2 mol oranında 900 °C' sıcaklık ve 4 saat süreyle kül fırınında çeşitli deneyler gerçekleştirilmiştir.  $BaZr(BO_3)_2$  (ICSD:09-5527) bileşiği elde edilmiştir.

Li /  $M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  sisteminde 1:1:1:3 mol oranında 900 °C' sıcaklık ve 4 saat süreyle kül fırınında çeşitli deneyler gerçekleştirilmiştir. Ürünler karakteristik amorf özellik göstermektedir.

$M^{2+}$  (Be, Mg, Ca, Sr, Ba) /  $ZrO_2$  /  $H_3BO_3$  /  $NH_4H_2PO_4$  sisteminde Taguchi yöntemi kullanılarak; süre, sıcaklık ve mol oranı parametrelerinin optimum koşulları belirlenmeye çalışılmıştır. Ancak hedeflenen  $MZrBPO_5$  (M = Be, Mg, Ca, Sr, Ba) bileşikleri bu şartlarda elde edilemediğinden optimum koşullarda belirlenememiştir.



$RE(Y, Er, Gd, La, Nd):CaCO_3 / H_3BO_3 / NH_4H_2PO_4$  sisteminde 1:1:1:0.001 mol oranında 400 °C’ de 2 saat süreyle gerçekleştirilen ön kalsinasyon işleminin ardından 900 °C sıcaklık ve 4 saat süreyle kül fırını yöntemiyle çeşitli deneyler gerçekleştirilmiştir. Bu deneyler sonucunda; Y:CaBPO<sub>5</sub>, Er:CaBPO<sub>5</sub>, Gd:CaBPO<sub>5</sub>, La:CaBPO<sub>5</sub> ve Nd:CaBPO<sub>5</sub> bileşikleri ilk kez bu çalışma ile elde edilmiştir. Bileşiklere ait Rietveld analizleri, Fourier haritaları, FTIR, VUV-PL ve SEM/EDX analizleri yapılmıştır.

$RE(Y, Er, Gd, La, Nd, Sm, Dy):SrCO_3 / H_3BO_3 / NH_4H_2PO_4$  sisteminde 1:1:1:0.001 mol oranında 400 °C’ de 2 saat süreyle gerçekleştirilen ön kalsinasyon işleminin ardından 900 °C sıcaklık ve 4 saat süreyle kül fırını yöntemiyle çeşitli deneyler gerçekleştirilmiştir. Bu deneyler sonucunda; Y:SrBPO<sub>5</sub>, Er:SrBPO<sub>5</sub>, Gd:SrBPO<sub>5</sub>, La:SrBPO<sub>5</sub>, Nd:SrBPO<sub>5</sub>, Sm:SrBPO<sub>5</sub> ve Dy:SrBPO<sub>5</sub> bileşikleri ilk kez bu çalışmada elde edilmiştir. Bileşiklere ait Rietveld analizleri, Fourier haritaları, FTIR, VUV-PL ve SEM/EDX analizleri yapılmıştır.

$RE(Y, Er, Gd, La, Nd, Sm, Dy):BaCO_3 / H_3BO_3 / NH_4H_2PO_4$  sisteminde 1:1:1:0.001 mol oranında 400 °C’ de 2 saat süreyle gerçekleştirilen ön kalsinasyon işleminin ardından 900 °C sıcaklık ve 4 saat süreyle kül fırını yöntemiyle çeşitli deneyler gerçekleştirilmiştir. Bu deneyler sonucunda; Y:BaBPO<sub>5</sub>, Gd:BaBPO<sub>5</sub> ve La:BaPO<sub>5</sub> bileşikleri ilk kez bu çalışma ile elde edilmiştir. Bileşiklere ait Rietveld analizleri, Fourier haritaları, FTIR, VUV-PL ve SEM/EDX analizleri yapılmıştır. Ayrıca Ba<sub>3</sub>BP<sub>3</sub>O<sub>12</sub> (ICSD:07-7517)/ BaBPO<sub>5</sub> (ICSD:05-0875) bileşikleri çift fazlı olarak elde edilmiştir.

## 5. KAYNAKLAR

- [1] Sung, C. M. and Sung M., “Carbon nitride and other speculative superhard materials”, *Mater. Chem. Pyhs.*, 43 (1), 1-18, (1996).
- [2] Sun, H., Jhi, S., Roundy, D., Cohen, M. L. and Louie, S. G., “Structural forms of cubic BC<sub>2</sub>N”, *Phys. Rev. B*, 64, 094108, (2001).
- [3] Hall, H. T. and Compton, L. A., “Group IV analogs and high pressure, high temperature synthesis of B<sub>2</sub>O”, *Inorg. Chem.*, 4 (8), 1213-1216, (1965).
- [4] Wentorf, R. H., De Vires, R. C. and Bundy, F. P., “Sintered superhard materials”, *Science*, 208, 873-880, (1980).
- [5] Liu, A. Y. and Cohen, M. L., “Prediction of new low compressibility solids”, *Science*, 245, 841-842, (1989).
- [6] Hubert, H., Devouard, B., Garvie, L. A. J., Keeffe, M. O., Buseck, P. R., Petuskey, W. T. and Mcmillan, P. F., “Icosahedral packing of B<sub>12</sub> icosahedra in boron suboxide (B<sub>6</sub>O)”, *Nature (London)*, 391, 376-378, (1998).
- [7] Veprek, S., Zeer, A. and Riedel, R., *Handbook of Ceramic Hard Materials*, Weinheim: Wiley Publication, (2000).
- [8] Lundström, T., “Structure and bulk modulus of high-strength boron compounds”, *Solid State Chem.*, 133 (1), 88-92, (1997).
- [9] Bundy, F. P., “Superhard materials”, *Am. Mineral.*, 231, 62-70, (1974).
- [10] Solozhenko, V. L., Andrault, D., Figuet, G., Mezouar, M. and Rubie, D. C., “Synthesis of superhard cubic BC<sub>2</sub>N”, *App. Phys. Lett.*, 78 (10), 1385-1387, (2001).
- [11] Bundy, F. P., Hall, H. T., Strong, H. M. and Wentorf, R. H., “Man-made diamonds”, *Nature*, 176, 51-54, (1955).

- [12] Lundström, T. and Andreev, Y. G., “Superhard boron-rich borides and studies of the BCN system”, *Mater. Sci. Eng. A*, 209, 16-22, (1996).
- [13] Lundström, T. and Bolmgren, H., “On refractory compounds crystallizing in B<sub>4</sub>C-type structures”, *11th International Symposium of Boron, Borides and Related Compounds*, Proceeding, Tsukuba, 10, 1, (1994).
- [14] Aselage, T. L., “Novel refractory semiconductors”, *Materials Research Society Symposia Proceedings*, edited by Emin, D., Pittsburgh, 97, 101, (1987).
- [15] Kosolapova, T. Y., *Poroskli. Metall.*, 1, 27, (1971).
- [16] Sasagi, K., *New Diamond*, 10, 14, (1994).
- [17] Kakudate, Y., *Proc. UIMRS-ICAM*, 2, (1993).
- [18] Badzian, A. R., Niemyski, T., Oppenheimer, S. and Olkusnik, E., “Graphite-boron nitride solid solutions by chemical vapour deposition”, *Khim. Svyaz. Polupropodn. Polumetall.* 3, 747-753, (1972).
- [19] Guryunova, N. A., *The Chemistry of Diamond-like Semiconductors*, J. C. Anderson (ed.), MIT Press. Cambridge, MA, 1963.
- [20] Sung, C. M. “*Unpublished research notes*” Specialty Materials Department of General Electric Company, 1979.
- [21] McMillan, P. F., “New materials from high-pressure experiments”, *Nature Materials*, 1, 19-25, (2002).
- [22] Petrak, D. R., Ruh, R. and Goosey, B. F., “Preparation and characterization of boron suboxide”, *5th Materials Research Symposium*, NBS Spec. Pub., 364, 605-611, (1972).
- [23] LaPlaca, S. and Post, B., *Planseeber. Pulvermet.* 9, 109-112, (1961).
- [24] Pasternak, R. A., “Crystallographic evidence for the existence of B<sub>7</sub>O”, *Acta Crystallogr.*, 12 (8), 612-613, (1959).

- [25] Liu, X., Zhao, X., Hou, W. and Su, W., “A new route for the synthesis of boron suboxide  $B_7O$ ”, *J. Alloys Compd.*, 223, L7-L9, (1995).
- [26] Kobayashi, M., Higashi, I., Brodhag, C. and Thevenot, F., “Structure of  $B_6O$  boron-suboxide by Rietveld refinement”, *J. Mater. Sci.*, 28, 2129-2134, (1993).
- [27] Higashi, I., Kobayashi, M., Bernard, J., Brodhag, C. and Thévenot, F., *Boron-Rich Solids/A.I.P Conference and Proceedings*, New York, 231, 201, (1991).
- [28] Bolmgren, H., Lundström, T. and Okada, S., *Boron-Rich Solids/A.I.P Conference and Proceedings*, New York, 231, 197-200, (1991).
- [29] Hubert, H., Garvie, L. A. J., Devouard, B., Buseck, P. R., Petuskey, W. T. and Mcmillan, P. F., “High-pressure, high-temperature synthesis and characterization of boron suboxide ( $B_6O$ )”, *Chem. Mater.*, 10 (6), 1530-1537, (1998).
- [30] [http://en.wikipedia.org/wiki/Boron\\_suboxide](http://en.wikipedia.org/wiki/Boron_suboxide), 2011.
- [31] Ellison, H. C., Emond, G. T. and Kuo, S. Y., *Abrasion of surfaces with boron suboxide*, U.S Patent 920357, (1994).
- [32] Badzian, A. R., “Superhard material comparable in hardness to diamond”, *Appl. Phys. Lett.*, 53 (25), 2495-2497, (1988).
- [33] Rizzo, H. F., Simmons, W. C. and Beilstein, H. O., “The existence and formation of the solid  $B_6O$ ”, *Electrochem. Soc.*, 109 (11), 1079-1082, (1962).
- [34] Bairamashshvili, I. A., Kalandadze, G. I., Eristavi, A. V., Jobava, J. S. Chotulidi, V. V. and Saloev, Y. I., “An investigation of the physicomaterial properties of  $B_6O$  and  $SiB_4$ ”, *J. Less-Common Met.*, 67 (2), 455-461, (1979).
- [35] Lee, S., Kim, S. W., Bylander, D. M. and Kleinman, L., “Crystal structure, formation enthalpy, and energy bands of  $B_6O$ ”, *Phys. Rev. B*, 44 (8), 3550-3554, (1991).
- [36] Brodhag, C. and Thévenot, F., “Hot pressing of boron suboxide  $B_{12}O_2$ ”, *J. Less-Common Met.*, 117, 1-6, (1986).

- [37] Okada, S., Kudou, K., Hamano, K. and Lundström, T., "Preparation of hexaboron monoxide ( $B_6O$ ) by reaction of metal oxides and amorphous boron", *J. Chem. Soc. Jpn, Ind. Chem.*, 6, 709-714, (1993).
- [38] Holcombe, C. E. and Horne, O. J. J., "Preparation of boron suboxide,  $B_7O$ ", *J. Am. Ceram. Soc.*, 55 (2), 106, (1972).
- [39] Lundström, T., "Structure, defects and properties of some refractory borides", *35th IUPAC Congress*, 57 (10), 1383-1390, Istanbul, (1985).
- [40] Liu, X., Zhao, X., Hou, W. and Su, W., "A new route for the synthesis of boron suboxide  $B_7O$ ", *J. Alloys Compd.*, 223 (1), L7-L9, (1995).
- [41] Gladkaya, I. S., Dyuzheva, T. I., Ekimov, E. A., Nikolaev, V. A. and Bendeliani, N. A., "Crystal growth at high pressure and the problem of characterization of the interstitial phases in the B-C-O system", *J. Alloys Compd.*, 329 (1-2), 153-156, (2001).
- [42] He, D., Akaishi, M., Scott, B. L. and Zhao, Y., "Growth of boron suboxide crystals in the B- $B_2O_3$  system at high temperature and high temperature", *J. Mater. Res.*, 17, 284-290, (2002).
- [43] He, D., Zhao, Y., Daeman, L., Qian, J. and Shen, T. D., "Boron suboxide: as hard as cubic boron nitride", *Appl. Phys. Lett.*, 81, 643-645, (2002).
- [44] Greenwood, N. N. and Earnshaw, A., "*Chemistry of the Elements*" (2nd ed.), Butterworth-Heinemann. p. 149, (1997)
- [45] Pradyot, P., "*Handbook of Inorganic Chemicals*", McGraw-Hill, (2002).
- [46] Rutgers, "Working on body armor", Asbury Park Press. August 11, (2012).
- [47] Ridgway, R. R., "*Boron Carbide*", European Patent CA339873 (A), publication date: 1934.

- [48] Musiri, M., Balakrishnarajan, P., Pancharatna, D. and Hoffmann, R. “Structure and bonding in boron carbide: The invincibility of imperfections”, *New J. Chem.*, 31 (4), 473, (2007).
- [49] Ektarawong, A., Simak, S. I., Hultman, L., Birch, J. and Alling, B. “Configurational order-disorder induced metal-nonmetal transition in  $B_{13}C_2$  studied with first-principles superatom-special quasirandom structure method”, *Phys. Rev. B* 92, 014202, (2015).
- [50] Zhang, F. X., Xu, F. F., Mori, T., Liu, Q. L., Sato, A. and Tanaka, T. “Crystal structure of new rare-earth boron-rich solids:  $REB_{28.5}C_4$ ”, *J. Alloys Compd.*, 329, 168–172, (2001).
- [51] Domnich, V., Reynaud, S. and Haber, R. A., “Boron carbide: structure, properties, and stability under stress”, *J. Am. Ceram. Soc.*, 94 (11), 3605–3628, (2011).
- [52] Bud’ko, S. L., Lapertot, G., Petrovic, C., Cunningham, C. E., Anderson, N. and Canfield, P. C., “Boron isotope effect in superconducting  $MgB_2$ ”, *Physical Review Letters*, 86 (9), 1877, (2001).
- [53] Jones, M. E. and Marsh, R. E. “The preparation and structure of magnesium boride,  $MgB_2$ ”, *J. Am. Chem. Soc.*, 76 (5), 1434, (1954).
- [54] Nagamatsu, J., Nakagawa, N., Muranaka, T., Zenitani, Y. and Akimitsu, J., “Superconductivity at 39 K in magnesium diboride”, *Nature*, 410, 63–64. (2001).
- [55] Larbalestier, D. C., Cooley, L. D., Rikel, M. O., Polyanskii, A. A., Jiang, J., Patnaik, S., Cai, X. Y. and Feldmann, D. M., “Strongly linked current flow in polycrystalline forms of the superconductor  $MgB_2$ ”, *Nature*, 410, 186–189, (2001).
- [56] Vinod, K., Kumar, R. G. And Syamaprasad, U., “Prospects for  $MgB_2$  superconductors for magnet application”, *Superconductor Science and Technology*, 20, R1–R13, (2007).

- [57] Sologubenko, A. V., Jun, J., Kazakov, S. M., Karpinski, J. and Ott, H. R., "Thermal conductivity of single crystalline  $MgB_2$ ", *Physical Review B*, 66, 14504, (2002).
- [58] Yıldız, K. and Alp, A., "Using of microwave in metallurgical processes", *Metalurji*, 24, 1300-4824,(1999).
- [59] Sutton, W. H., "Microwave processing of ceramic materials", *Ceram. Bull.*, 68 (2), 376-386, (1989).
- [60] Toraman, Ö. ve Depçi, T., "Kömürde mikrodalga ile önişlem uygulamaları" *Madencilik*, 46, 43-53, (2007).
- [61] Panias D. and Krestou A., "Use of microwave energy in metallurgy", *AMIREG*, 215-220, (2004).
- [62] Ganesh, I., Srinivas, B., Johnson, R., Saha, B. P. and Mahanjan, Y. R., "Microwave assisted solid state reaction synthesis of  $MgAl_2O_4$  spinel powders", *J. Am. Ceram. Soc.*,24, 201-227, (2004).
- [63] Das, R. N., "Nanocrystalline ceramics from sucrose process", *Mater. Lett.*, 47 (6), 344-350, (2001).
- [64] Schaber, P. M., Colson, J., Higgins, S., Thielen, D., Anspach, B. and Brauer, J., "Thermal decomposition (pyrolysis) of urea in an open reaction vessel", *Thermochim. Acta*, 424 (1-2), 131-142, (2004).
- [65] Garcia, A. M., Ortiz, M., Martines, R., Ortiz, P. and Reguera, E., "The condensation of furfural with urea", *Ind. Crop. Prod.*, 19 (2), 99-106, (2004).
- [66] Godfrey, P., Brown, R. and Hunter, A., "The shape of urea", *J. Mol. Struc.*, 413-414, 405-414, (1997).
- [67] Backer, H. J., "Boerhaave's ontdekking van het ureum" (Boerhaave's discovery of urea), *Nederlands Tijdschrift voor Geneeskunde (Dutch Journal of Medicine)*, 87, 1274-1278, (1943).

- [68] Kurzer, F. and Sanderson, P. M., "Urea in the history of organic chemistry", *J. Chem. Edu.*, 33 (9), 452-459, (1956).
- [69] Wöhler, F., "Ueber künstliche bildung des harnstoffs", *Annalen der Physik und Chemie*, 88 (2), 253-256, (1828).
- [70] Costa, N. K. and Montagnon T., "*Molecules that changed the world*" Wiley-VCH., 11, (2008).
- [71] Gibb, B. C., "Teetering towards chaos and complexity", *Nature Chemistry*, 1 (1), 17-18, (2009).
- [72] Dawson, R. M. C., "*Data for biochemical research*", Oxford, Clarendon Press, (1959).
- [73] Dixon, H. B. F., "Nomenclature and symbolism for amino acids and peptides", *Pure Appl. Chem.*, 56 (5), 595-624, (1984).
- [74] Shi, Y., Liang, J., Zhang, H., Liu, Q., Chen, X., Yang, J., Zhuang, W. and Rao, G. J., "Crystal structure and thermal decomposition studies of barium borophosphate, BaBPO<sub>5</sub>", *Solid State Chemistry*, 135 (1), 43-51, (1998).
- [75] Wells, A. F., "*Structural Inorganic Chemistry*", 4th ed., p. 851. Oxford Univ. Press, Oxford, 1975.
- [76] Bell, R. J. and Carnevale, A., "A structural model for B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> glass", *Philos. Mag. B*, 43(3), 389-399, (1981).
- [77] Ysker, J. S., Bohlho, R., Bambauer, H. and Homann, W., *Z. Kristallogr.*, 132, 457, (1970).
- [78] Rulmont, A. and Almou, M., "Vibrational spectra of metaborates with infinite chain structure: LiBO<sub>2</sub>, CaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, SrB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>", *Spectrochim. Acta Part A*, 45(5), 603-610, (1989).
- [79] Krasnikov, V. V., Konstant, Z. A. and Belskii, V. K., *Neorg. Mater.* 21, 1560-1563, (1985).



- [80] Levesseur, A., Olazcuaga, R., Kbala, M., Zahir, M., Hagenmuller, P. and Couzi, M., “Etudes electrique et Raman des verres des systemes  $B_2O_3 \cdot M_2O \cdot M_3PO_4$  (M=Li, Na)”, *Solid State Ionics*, 2 (3), 205-213, (1981).
- [81] Duan, C. J., Li, W. F., Wu, X. Y., Chen, H. H., Yang, X. X. and Zhao, J. T., “Syntheses and X-ray excited luminescence properties of  $Ba_3BP_3O_{12}$ ,  $BaBPO_5$  and  $Ba_3BPO_7$ ”, *J. Luminescence*, 117 (1), 83-89, (2006).
- [82] Bauer, H., “Über eine eeihe isotyper erdalkaliboratphosphate und –arsenate vom Typus  $2MeO.X_2O_5.B_2O_3$ ”, *Z. An. All. Che*, 337 (3-4), 183-190, (1965).
- [83] Gözel, G., “Preparation and structural investigation of alkaline-earth borophosphates”, PhD Thesis, *METU*, Ankara, 1993.
- [84] Bauer, H., “Die verbindungen  $2BaO.P_2O_5.B_2O_3$  und  $2BaO.As_2O_5.B_2O_3$ ”, *Z. An. All. Che*, 345 (5-6), 225-229, (1966).
- [85] Baykal, A., Kızılyallı, M., Gözel, G. and Kniep, R., “Synthesis of strontium borophosphate,  $SrBPO_5$  by solid state and hydrothermal methods and characterization”, *Cryst. Res. Technol.*, 35 (3), 247-254, (2000).
- [86] Baykal, A., Gözel, G., Kızılyallı, M., Toprak, M., Kniep, R., “X-ray powder diffraction and IR study of calcium borophosphate,  $CaBPO_5$ ”, *Turk J. Chem.*, 24, 381-388, (2000).
- [87] Ranjit, K. R., “*A primer on the Taguchi method*”, Van Nostrand Reinhold, 1990.
- [88] Güral, G., “Gaz Kaynağında proses parametrelerinin optimizasyonu”, *Dokuz Eylül Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, Yüksek Lisans Tezi, İzmir, 2003.
- [89] Yurdakul, Ş., “*Spektroskopi ve grup teorisinin temelleri*”, Gazi Kitabevi, Ankara, (2010).
- [90] Kitai, A.H., “*Solid State Luminescence*”, Chapman & Hall, London, (1993).

- [91] Carnall, W.T., Fields, P. R. and Rajnak, K., “Electronic energy levels in the trivalent lanthanide aquo Ions. I.  $\text{Pr}^{3+}$ ,  $\text{Nd}^{3+}$ ,  $\text{Pm}^{3+}$ ,  $\text{Sm}^{3+}$ ,  $\text{Dy}^{3+}$ ,  $\text{Ho}^{3+}$ ,  $\text{Er}^{3+}$ , and  $\text{Tm}^{3+}$ ”, *J. Chem. Phys.*, 49, 4424-4442, (1968).
- [92] Duan, C. K., Tanner, P. A., Makhov, V. N. and Kirm, M., “Vacuum ultraviolet spectra and crystal field analysis of  $\text{YAlO}_3$  doped with  $\text{Nd}^{3+}$  and  $\text{Er}^{3+}$ ”, *Phys. Rev. B*, 75 (19), 195130, (2007).
- [93] Duan, C. K. and Tanner, P.A., “What use are crystal field parameters? a chemist’s viewpoint “, *J. Chem. Phys. A*, 114 (19), 6055-6062, (2010).
- [94] Pan, Z., Duan, C. K. and Tanner, P.A., “Electronic spectra and crystal field analysis of  $\text{Yb}^{2+}$  in  $\text{SrC}_{12}$ ”, *Phys. Rev. B*, 77 (8), 085114, (2008).
- [95] Duan, C. K. and Tanner, P.A., “Simulation of  $4f \rightarrow 5d$  transitions of  $\text{Yb}^{2+}$  in potassium and sodium halides”, *J. Phys.:Conds. Matter*, 20 (21), 215228, (2008).
- [96] Reid, M. F., Pieterse, V. L., Wegh, R. T. and Meijerink, A., “Spectroscopy and calculations for  $4f^N \rightarrow 4f^{N-1} 5d$  transitions of lanthanide ions in  $\text{LiYF}_4$ ”, *Phys. Rev. B*, 62 (22), 14744-14749, (2000).
- [97] Hu, L., Wen, J., Xia, S. and Yin, M., “Theoretical study of the VUV spectroscopy of  $\text{Ce}^{3+}$  and  $\text{Tb}^{3+}$  in  $\text{BaBPO}_5$  crystal using an empirical-ab initio hybrid method”, *J. Rare Earths*, 28 (6), 899-902, (2010).
- [98] Zeng, Q., Kilah, N. and Riley, M., “The luminescence of  $\text{Sm}^{2+}$  in alkaline earth borophosphates”, *J. Luminescence*, 101 (3), 167-174, (2003).
- [99] Bauer, H., “Über eine reihe isotyper erdalkaliboratphosphate und -arsenate vom Typus  $2 \text{MeO} \cdot \text{X}_2\text{O}_5 \cdot \text{B}_2\text{O}_3$ ”, *Z. Anorg. Chem.*, 337 (3-4), 183-190, (1965).
- [100] Liang, H. B., Su, Q., Tao, Y., Hu, T. D., Liu, T. and Shulin, S. L. E., “XAFS at  $\text{Eu}-\text{L}_3$  edge and UV-VUV excited luminescence of europium doped strontium borophosphate prepared in air”, *J. Phys. Chem. Solids*, 63 (5), 719-724, (2002).
- [101] Jing, H. Q., Wu, G. Q. and Du, B. S., “Preparation of phosphors  $\text{MBPO}_5:\text{Eu}^{2+}$  and  $\text{MBPO}_5:\text{Yb}^{2+}$  in air”, *Chem. J. Chi. Univ.*, 18, 1425-1432, (1997).

- [102] Liang, H., Zeng, Q., Tao, Y., Wang, S. and Su, Q., “VUV-UV excited luminescent properties of calcium borophosphate doped with rare earth ions”, *Mater. Sci. Eng. B*, 98 (3), 213-219, (2003).
- [103] Smart, L. E. and Moore, E. A., “*Solid State Chemistry*”, T&F Group, CRC Press., (2005).
- [104] Nakamoto, K., “*Infrared and Raman Spectroscopy of Inorganic and Coordination Compounds*”, Part B, John Wiley & Sons, New York, (1997).
- [105] Huppertz, H., “High-pressure preparation, crystal structure, and properties of  $RE_4B_6O_{15}$  ( $RE = Dy, Ho$ ) with an extension of the “fundamental building block”-descriptors”, *Z. Naturforsch*, 58b, 278-290, (2003).
- [106] Zhang, Y., Chen, X. L., Liang, J. K. and Xu, T., “Synthesis and structural study of new rare earth sodium borates  $Na_3Ln(BO_3)_2$  ( $Ln=Y, Gd$ )”, *J. Alloys and Compounds*, 333 (1-2), 72-75, (2002).
- [107] Shi, Y., Liang, J., Zhang, H., Yang, J., Zhuang, W. and Rao, G., “X-Ray powder diffraction and vibrational spectra studies of rare earth borophosphates,  $Ln_7O_6(BO_3)(PO_4)_2$  ( $Ln=La, Nd, Gd, \text{ and } Dy$ )”, *J. Solid State Chemistry*, 129 (1), 45-52, (1997).
- [108] Lemanceau, S., Bertrand, G. C., Mahiou, R., El-Ghozzi, M., Cousseins, J. C., Conflint, P. and Vannier, R. N., “Synthesis and characterization of H- $LnBO_3$  orthoborates ( $Ln=La, Nd, Sm, \text{ and } Eu$ )”, *J. Solid State Chemistry*, 148 (2), 229-235, (1999).
- [109] Huppertz, H., Altmannshofer, S. and Heymann, G., “High-pressure preparation, crystal structure, and properties of the new rare-earth oxoborate  $\beta$ - $Dy_2B_4O_9$ ”, *J. Solid State Chemistry*, 170 (2), 320-329, (2003).
- [110] Zhang, G., Wu, Y., Fu, P., Wang, G., Liu, H., Fan, G. and Chen, C., “A new sodium samarium borate  $Na_3Sm_2(BO_3)_3$ ”, *J. Physics and Chemistry of Solid*, 63 (1), 145-149, (2002).

- [111] Gözel, G., Baykal, A., Kızılyallı, M. and Kniep, R., “Solid-state synthesis, X-ray powder investigation and IR study of  $\alpha$ -Mg<sub>3</sub>[BPO<sub>7</sub>] “, *J. European Ceramic Society*, 18 (14), 2241-2246, (1998).
- [112] Shyichuk, A. A. and Lis, S., “Photoluminescence properties of nanosized strontium-yttrium borate phosphor Sr<sub>3</sub>Y<sub>2</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub>:Eu<sup>3+</sup> obtained by the sol-gel Pechini method”, *J. Rare Earths*, 29(12), 1161, (2011).
- [113] Hornebecq, V., Gravereau, P., Chaminade, J. P. and Lebraud, E., “BaZr(BO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>: a non-centrosymmetric dolomite-type superstructure”, *Mater. Res. Bull.*, 32, 2165, (2002).
- [114] Khanna, A. and Dutta, P. S., “Tunable color temperature solid state white light source using flux grown phosphor crystals of Eu<sup>3+</sup>, Dy<sup>3+</sup> and Tb<sup>3+</sup> activated calcium sodium molybdenum oxide”, *Optical Mater.*, 37, 646-655, (2014).
- [115] Mohapatra, M., Naik, Y. P., Natarajan, V., Seshagiri, T. K., Singh, Z. and Godbole, S. V., “Rare earth doped lithium titanate (Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub>) for potential phosphor applications”, *J. Luminescence*, 130, 2402-2406, (2010).
- [116] Zhu, C., Wang, J., Ren, X., Zhang, Y., Liu, S., Shen, J. and Yue, Y., “Sintering temperature and atmosphere modulated evolution of structure and luminescence of 2CaO–P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>–B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: Eu phosphors”, *J. Luminescence*, 145, 110-113, (2014).
- [117] Yuan, J. L., Zhang, Z. J., Wang, X. J., Chen, H. H., Zhao, J. T., Zhang, G. B. and Shi, C. S., “Synthesis and VUV-UV spectroscopic properties of rare earth borosilicate oxyapatite: RE<sub>5</sub>Si<sub>2</sub>BO<sub>13</sub>: Ln<sup>3+</sup> (RE= La, Gd, Y; Ln = Eu, Tb)”, *J. Solid State Chem.*, 180, 1365-1371, (2007).
- [118] Boukhris, A., Hidouri, M., Glorieux, B. and Amara, M. B., “Na<sub>2</sub>BaMg(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>: synthesis, crystal structure and europium photoluminescence properties”, *J. Rare Earths*, 31(9), 849-856, (2013).
- [119] Boyer, L., Carpena, J. and Lacout, J. L., “Synthesis of phosphate-silicate apatites at atmospheric pressure”, *Solid State Ionics*, 95, 121-129, (1997).

- [120] Gao, J., Song, L., Liu, X., Guo, T., Lü, T., Hu, X. and Zhang, D., “Enhanced photoluminescence properties of (Y,Bi)  $\text{BO}_3\text{:RE}^{3+}$  (RE=Eu, Tb) phosphors synthesized at low temperature”, *J. Rare Earths*, 29(4), 335-339, (2011).
- [121] Zhang, J., Yin, J., Liu, P., Gao, B., Bie, L., “Preparation and luminescent properties of  $\text{MgTiO}_3\text{:Eu}^{3+}$  phosphor for white LEDs”, *J. Rare Earths*, 30(10), 1009-1012, (2012).
- [122] Deng, Y., Yi, S., Huang, J., Zhao, W. and Fang, X., “A novel long lasting phosphor  $\text{Sr}_5(\text{PO}_4)_3\text{F}_x\text{Cl}_{1-x}\text{:Eu}^{3+}$ ,  $\text{Gd}^{3+}$  prepared in air condition”, *J. Rare Earths*, 31(10), 962-968, (2013).
- [123] Zhong, J., Zhao, W., Lan, L. and Wang, J., “Hydrothermal synthesis and luminescence properties of  $\text{Eu}^{3+}$  and  $\text{Sm}^{3+}$  codoped  $\text{BiPO}_4$ ”, *J. Rare Earths*, 32(1), 5-11, (2014).
- [124] Ren, M., Lin, J. H., Dong, Y., Yang, L. Q., Su, M. Z. and You, L. P., “Structure and phase transition of  $\text{GdBO}_3$ ”, *Chem. Mater.*, 11 (6), 1576-1580, (1999).
- [125] Baykal, A., Kızılyalı, M. and Kniep, R., “X-ray powder diffraction and IR study of  $\text{NaMg}(\text{H}_2\text{O})_2[\text{BP}_2\text{O}_8]\cdot\text{H}_2\text{O}$  and  $\text{NH}_4\text{Mg}(\text{H}_2\text{O})_2[\text{BP}_2\text{O}_8]\cdot\text{H}_2\text{O}$ ”, *J. Mater.Sci.*, 35 (18), 4621-4626, (2000).
- [126] Nyquist, R. A. and Kagel, R. O., “*Infrared Spectra of Inorganic Compounds*”, Academic Pres., New York and London, (1971).
- [127] Xu, H., Zhuang, W., Wen, X., Liu, R., Hu, Y. and Xia, T., “Effect of  $\text{Li}^+$  ions doping on structure and luminescence of  $(\text{Y,Gd})\text{BO}_3\text{:Tb}^{3+}$ ”, *J. Rare Earths*, 28(5), 701-704, (2010).
- [128] Yu, Y., Chen, G., Zhou, Y. and Han, Z., “Recent advances in rare-earth elements modifications of inorganic semiconductor-based photocatalysts for efficient solar energy conversion: A review”, *J. Rare Earths*, 33(5), 453-462, (2015).
- [129] Ropp, R. C., “*Luminescence and the Solid State*”, Studies in Inorganic Chemistry, 12, Elsevier, Amsterdam, Netherlands, 1991.

- [130] Naidu, B. S., Vishwanadh, B., Sudarsa, V. and Vatsa, R. K., “BiPO<sub>4</sub>: A better host for doping lanthanide ions”, *Dalton Trans.*, 41, 3194-3203, (2012).
- [131] Yan, X. S., Li, W. W. and Sun, K. A., “A novel red emitting phosphor CaIn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>:Eu<sup>3+</sup>, Sm<sup>3+</sup> with a broadened near-ultraviolet absorption band for solid-state lighting”, *Mater. Res. Bull.*, 46, 87-91, (2010).
- [132] Chan, Y. S., Shih, H. R., Tsai, M. T., Liu, K. T. and Teoh, L. G., “Photoluminescence properties of La<sup>3+</sup>-doped BaY<sub>1.94</sub>Eu<sub>0.06</sub>ZnO<sub>5</sub> phosphor prepared using a sol-gel method”, *J. Luminescence*, 157, 98-103, (2015).
- [133] Yun, M., Zhang, W., Xia, S. and Krupa, J. C., “Luminescence of nanometric scale Y<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>:Eu<sup>3+</sup>”, *J. Luminescence*, 68 (6), 335-339, (1996).
- [134] Kumar, K. S., Song, C. G., Bak, G. M., Heo, G., Seong, M. J. and Yoon, J. W., “Phase control of yttrium (Y)-doped TiO<sub>2</sub> nanofibers and intensive visible photoluminescence”, *J. Alloys and Comp.*, 617, 683–687, (2014).
- [135] Lee, K. W., Kumar, K. S., Heo, G., Seong, M. J. and Yoon, J. W., “Characterization of hollow BaTiO<sub>3</sub> nanofibers and intense visible photoluminescence”, *J. Appl. Physics*, 114, 134303, (2013).

# **EKLER**

## 6. EKLER

### EK A Bazı Fonksiyonel Grupların ve Bileşiklerin FTIR Spektrumu Dalga Sayıları

Titreşimler	Dalga Sayıları (cm <sup>-1</sup> )
$\nu(\text{BO}_3)$	1371 [90]
$\nu_{\text{as}}(\text{BO}_3)$	1190 [91]
$\nu_3(\text{BO}_3)$	1190 [92, 93]
$\nu(\text{BO}_4)$	1190 [90], 883 [90, 94]
$\delta_{\text{dd}}(\text{BO}_3)$	883 [91], 706 [91]
$\nu_2(\text{BO}_3)$	706 [93], 633 [93]
$\delta_{\text{di}}(\text{BO}_3)$	633 [91]
$\nu_4(\text{BO}_3)$	633 [92, 95, 96]
$\delta(\text{BOP})$	650-673 [70, 71, 107]
$\nu_{\text{s}}(\text{BOP})$	681-750 [70, 71, 108]
$\nu_{\text{as}}(\text{BOP})$	796-850 [70, 71]
$\nu_1(\text{CO}_2)$	1337 [109, 110]