

## Çeşitli Bor Oksit Katkılarının Kordiyerit Seramiklerin Sinterleme Davranışına ve Elektriksel Özelliklerine Etkilerinin Araştırılması

Süleyman AKPINAR<sup>1</sup>, Serhat TIKIZ<sup>2</sup>

<sup>1,2</sup> Afyon Kocatepe Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Malzeme Bilimi ve Mühendisliği Bölümü, Afyonkarahisar.

e-posta: [akpinar@aku.edu.tr](mailto:akpinar@aku.edu.tr) [stikiz@aku.edu.tr](mailto:stikiz@aku.edu.tr)

Geliş Tarihi: 26.09.2019; Kabul Tarihi: 09.10.2019

### Öz

Kordiyerit ( $2Mg \cdot 2Al_2O_3 \cdot 5SiO_2$ ), sahip olduğu düşük dielektrik sabiti ( $\epsilon = 5-6$ ), yüksek özdirenç ( $\rho > 10^{12} \Omega cm$ ) ve çok düşük ısıl genleşme katsayısı ( $\alpha = 1-2 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ C^{-1}$ ) gibi özellikleri sayesinde elektronik devre kartları, filtreler, katalitik dönüştürücüler ve termal yalıtkanlar gibi çeşitli alanlarda kullanılmaktadır. Kordiyerit seramiklerin ilgili özellikleri, kompozisyona, başlangıç hammaddelerinin doğasına, safsızlıkların varlığına, katkı maddelerine ve de üretim tekniğine oldukça bağlıdır. Yüksek mukavemete ve yoğunluğa ve de düşük ısıl genleşme katsayısına sahip polikristalin kordiyerit seramiklerin, dar sinterleme aralığı ve safsızlığa duyarlı yapısı nedeniyle elde edilmesi oldukça zordur. Çeşitli hammaddelerin karışımlarından sentezlenen kordiyerit seramiklerin yoğunlaştırılmasında, genellikle sinterleme yardımcılarına ihtiyaç vardır. Sinterleme katkılarının kullanımı durumunda genellikle müllit, korund, spinel, forsterit, enstatit, kristobalit gibi ikincil kristalin fazlar camsı kordiyerit fazı ile birlikte yer alabilmekte ve bu durumda kordiyeritin ısıl ve elektriksel özellikleri genellikle olumsuz yönde değişebilmektedir. Bu çalışmada, cam yapıcı özelliğinin yanı sıra camsı fazın erime noktasını, viskozitesini ve termal genişmesini azaltıcı etkileri nedeni ile seramik ve cam endüstrisinde kullanılan bor oksitin farklı kaynaklar ile kordiyerit mikro yapısına cam faz olarak dahil edilmesi amaçlanmıştır. Bu kapsamda kolemanit, susuz boraks ve bor atıkları gibi çeşitli bor oksit kaynaklarının, kordiyerit stokiometrisine uygun oranda karıştırılmış magnezya, kaolen ve kuvars hammaddelerine % 1, 2 ve 3 oranlarında ilavesi ile oluşturulan toz karışımlarından hazırlanan örnekler 1000-1300  $^\circ C$  sıcaklık aralığında sinterlenmiştir. Sinterlenmiş numuneler üzerinde makro incelemeler ve elektriksel ölçümler ile söz konusu katkıların, kordiyeritin sinterleme davranışı ve elektriksel özellikleri üzerindeki etkileri araştırılmıştır.

### Anahtar kelimeler

Kordiyerit; Bor oksit;  
Sinterleme Davranışı;  
Elektriksel Özellikler

## Effects of Various Boron Oxide Additives on Sintering Behaviour and Electrical Properties of Cordierite Ceramics

### Abstract

Cordierite has low dielectric constant ( $\epsilon=5-6$ ), high resistivity ( $\rho>10^{12}\Omega cm$ ), and very low thermal expansion coefficient ( $\alpha = 1-2 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ C^{-1}$ ). Cordierite ceramics are used in a variety of areas such as circuit boards, filters, catalytic converters, and thermal insulators, owing to the corresponding thermal and electrical properties of cordierite. Moreover, relevant properties of cordierite ceramics seem to be strongly dependent on the composition, nature of raw starting materials and the presence of impurities and additives, and also the fabrication technique. The polycrystalline cordierite ceramics with high strength and density and low coefficient of thermal expansion is very difficult to obtain due to its narrow sintering range and impurity-sensitive nature. In order to fabricate dense cordierite ceramics, formed by mixtures of various raw materials, sintering aids are usually needed. The secondary crystalline phases such as mullite, corundum, spinel, forsterite, enstatite, cristobalite are often present together with a glassy phase and the corresponding thermal and electrical properties of cordierite are degraded if such additives are utilised. Borates, which have an important place in the ceramic and glass industry, are known as the most important glassmaker after silica, as well as the effects of reducing the melting point, viscosity and thermal expansion of the glassy phase. In this study, it is aimed to incorporate boron oxide as a glass phase into the cordierite microstructure with different sources. In this context, colemanite, anhydrous borax and boron wastes at proportions 1, 2, and 3 wt. % was added to the mixtures of magnesia, kaolin, and quartz raw materials and the powder mixtures were

### Keywords

Cordierite; Boron  
Oxide; Sintering  
Behaviour; Electrical  
Properties

compacted and then sintered in the temperature range of 1000-1300 °C and the electrical properties of the sintered samples were characterized. The effects of these additives on sintering behaviour of cordierite and their electrical properties were investigated through macro visual inspection and electrical measurements.

## 1. Giriş

Kordiyerit ( $2\text{MgO} \cdot 2\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{SiO}_2$ ),  $\text{MgO-SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  sisteminin en ilgi çekici fazlarından birisidir. Kordiyerit seramikler düşük dielektrik sabiti ( $\epsilon = 5-6$ ), yüksek özdirenç ( $\rho > 10^{12} \Omega \text{cm}$ ) ve çok düşük ısıl genişleme katsayısına ( $\alpha = 1-2 \times 10^{-6} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ ) sahiptir. Bu özellikler, kordiyeritin çeşitli yüksek sıcaklık uygulamalarında ve yarı iletken malzeme olarak kullanılabilmesini sağlar. Kordiyerit seramiklerin özellikleri, hammaddelerin ve fazların bileşimi ve yapısı, safsızlıklar ve üretim tekniği gibi birçok faktörden etkilenir. Müllit, korund, spinel, forsterit, enstatit, kristobalit gibi ikincil kristal fazları genellikle camsı kordiyerit matriks yapısı içerisinde birlikte bulunabilir ve bu karmaşık nihai yapı, kordiyerit seramiklerin özelliklerini belirler. Özellikle, oksit tozların katı hal sinterlemesi ile hazırlanan kordiyerit seramiklerde, kordiyerit faza kaçınılmaz olarak, seramiklerin termal genişleme katsayısını artıran kristobalit ve spinel fazları eşlik eder. Aşırı sinterleme, kristalin kordiyeritin forsterit ve müllit fazlarına ayrışmasına neden olur; bu durum, termal genişlemeyi önemli ölçüde artırır; yetersiz sinterleme ise, düşük ısıl genişleme ve yüksek şok direnci için yeterli kristal kordiyerit fazını geliştiremez (Akpınar *et al.* 2015).

Erime noktası 1460 °C olan kordiyeritin çok dar bir sinterleme sıcaklık aralığına (1300-1400 °C) sahip olmasından dolayı sinterlenmesi zordur (Kumar *et al.* 2015). Çeşitli hammadde karışımlarından oluşan kordiyerit seramikler için tam bir yoğunlaşma elde etmek için, genellikle sinterleme yardımcılara ihtiyaç vardır. Bununla birlikte, devre kartları, filtreler, katalitik konvertörler ve termal izolatörler gibi çeşitli alanlarda hayati önem taşıyan kordiyeritin kendisine has ısıl ve elektriksel özellikleri, sinterleme katkıları kullanımı durumunda ikincil kristal fazların oluşumu nedeni ile değişmektedir (Akpınar 2019). Dolayısı ile

sinterleme katkılarına duyulan ihtiyaç, safsızlığa duyarlı doğası nedeniyle tek fazlı kordiyerit seramiklerin elde edilmesini oldukça zorlaştırmaktadır (Oliveira and Fernandes 2002). Kordiyerit ile ilgili yapılmış çalışmalar, sinterleme yardımcıları olmadan sinterleme sıcaklığında ısıtmanın çok zor olduğunu göstermektedir (Thorp and Hutton 1981).

Cam tozlarının viskoz bir akış mekanizması ile iyi sinterlendiği bilinmektedir. Frenkel, MacKenzie ve Shuttleworth tarafından türetilen temel teorik denklemler sinterlemenin ya tozun tane büyüklüğünü azaltarak ya da camın viskozitesini düşürerek arttırılabileceğini göstermektedir. Cam viskozitesinde azalma, sinterleme sıcaklığının arttırılmasıyla veya cam bileşiminin kimyasal modifikasyonu ile sağlanabilir. Birçok cam sisteminde, sinterleme sıcaklığının yükselmesi kristalleşmenin başlangıcı ile sınırlıdır, bu da viskozitenin aşırı bir şekilde artmasına neden olur ve böylece daha fazla sinterlemeyi engeller (Winter 1997).

$\text{MgO-SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  sisteminde sinterleme aralığı, metastabil prekürsör  $\beta$ -kuvars katı çözeltisinin kristalizasyon aralığı ile örtüşür ve bu da stokiometrik bir kordiyerit cam tozunun yoğunlaştırılmasını çok zorlaştırır. Kristalleşme davranışını kontrol etmek ve viskoziteyi düşürmek için, cam bileşimi  $\text{MgO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$  sistemi içinde modifiye edilebilir veya bazı katkı maddeleri eklenebilir. Bu katkılar başta  $\text{B}_2\text{O}_3$  ve  $\text{P}_2\text{O}_5$  olmak üzere  $\text{Li}_2\text{O}$ ,  $\text{Na}_2\text{O}$ ,  $\text{K}_2\text{O}$ ,  $\text{CaO}$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{ZrO}_2$  ve diğerleridir.  $\text{Li}_2\text{O}$  hariç,  $\text{B}_2\text{O}_3$  ve  $\text{P}_2\text{O}_5$  veya alkaliler gibi bazı ilaveler  $\beta$ -kuvarsın kristalleşmesini baskılar ve böylece sinterleme aralığının daha yüksek sıcaklıklara genişlemesine yardımcı olur (Winter 1997).

Kordiyerit seramiklerin sinterlenmesinde önemli etkiye sahip temel oksitler ile ilgili yapılmış çalışmalarda; kordiyeritin camsı geçiş sıcaklığı ve kristalleşme sıcaklığı, ağırlıkça % 1 B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ilavesiyle azaldığı görülmüştür. Ayrıca, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ilavesi ile α-kordiyerit (indialit) oluşumunun hızlandığı, P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ilavesi ile α-kordiyerit kristallerinin büyüme hızının μ-kordiyeritin büyüme hızından daha fazla olduğu tespit edilmiştir. ZnO ilavesi ile de camsı halden μ-kordiyerite dönüşüm oranının arttığı, ancak μ-kordiyeritin α-kordiyerite dönüşümü üzerinde bir etki sağlamadığı görülmüştür (Wu and Hwang 2000, Clark 2017).

Bu çalışmada, kordiyerit kristalizasyonunda önemli etkiye sahip olan bor oksit ilavesinin, farklı kaynaklarla kordiyerit yapısına dahil edilmesi ve farklı sıcaklıklarda sinterleme işlemleri sonrasında elde edilen örneklerin dielektrik özelliklerinin incelenmesi amaçlanmıştır. Bu çalışmanın yürütülmesinde itici güç olarak literatür bulgularında ifade edildiği üzere, kordiyerit sentezinde oluşması muhtemel ikincil fazların neden olacağı olumsuz etkileri önlemek adına düşük sıcaklıkta eriyerek cam faz oluşturan bor katkılarının kullanılmasıdır. Bor oksit saf halde pahalı olması nedeni ile yerine susuz boraks, kalsine kolemanit ve bor atığı katkıları ile nispeten daha ucuz bor oksit kaynakları ile kordiyeritin karakteristik özelliklerinden ödün vermeden dielektrik seramik malzeme üretimi hedeflenmiştir. Bu çerçevede kaolen, kuvars, magnezya hammaddeleri ile oluşturulan kordiyerit stokiometrisindeki karışıma ağırlıkça % 0, 1, 2 ve 3 oranlarında susuz boraks, kalsine kolemanit ve bor atığı ilaveleri yapılarak, şekillendirilen örnekler 1000, 1100, 1200 ve 1300 °C sıcaklıklarda sinterlenmiştir. Sinterleme işlemi sonrası numuneler üzerinde dielektrik sabiti ve tanjant kayıp faktörü ölçümleri gerçekleştirilmiştir.

## 2. Materyal ve Metot

### 2.1 Kullanılan Hammaddeler

Bu çalışmada kordiyerit esaslı seramik malzeme üretimi için seramik fabrikalarından temin edilen Kaolen ve Kuvars ile Konya-Krom Manyezit

işletmesinden temin edilen Sinter Magnezya hammaddesi kullanılmıştır. Katkı maddeleri olarak ise Eti Maden İşletmelerinden temin edilen Kolemanit, Susuz boraks ve Bor atığı hammaddeleri kullanılmıştır.

Kordiyerit sentezinde kullanılan hammaddelerin kimyasal bileşimleri Çizelge 1'de, özgül yüzey alanı ve tane büyüklüğü dağılımları da Çizelge 2'de sunulmuştur.

Çizelge 1. Hammaddelerin kimyasal bileşimleri

Bileşen (ağ.%)	Kaolen	Magnezya	Kuvars
SiO <sub>2</sub>	47.30	3.23	97.50
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	36.30	0.17	1.21
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.85	0.49	0.05
TiO <sub>2</sub>	0.05	0.00	0.05
CaO	0.10	3.73	0.02
K <sub>2</sub> O	2.29	0.00	0.03
Na <sub>2</sub> O	0.05	0.00	0.02
MgO	0.38	92.31	0.48
Diğerleri*	0.21	0.07	0.12
Kızdırma Kaybı	12.21	0.00	0.28

Çizelge 2. Kordiyerit karışımında yer alan hammaddelerin bazı özellikleri

Hammadde	Tane boyutu			Özgül yüzey alanı (m <sup>2</sup> /g)
	d <sub>0.9</sub>	d <sub>0.5</sub>	d <sub>0.1</sub>	
Magnezya	99.70	23.34	2.81	1.98
Kaolen	22.76	5.57	1.12	11.80
Kuvars	44.47	15.83	3.97	0.59

### 2.2 Reçete Oluşturma

Kordiyerit sentezi için karışımların hazırlanmasında kullanılan hammaddelerin karışım oranı kordiyerit stokiometrisine (2MgO.2Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.5SiO<sub>2</sub>) göre hesaplanmıştır. Hesaplama sadece MgO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve SiO<sub>2</sub> dikkate alınmıştır. Magnezya, kaolen ve kuvars içeren üçlü karışımlar, hem teorik kordiyerit bileşimindeki oksit oranlarına ve hem de hammaddelerin kimyasal bileşimine (Çizelge 1'de görüldüğü gibi) bağlı olarak hazırlanmıştır. Teorik hesaplama ilişkin olarak, karışımdaki MgO: Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: SiO<sub>2</sub> ağırlık oranı 13.7:34.9:51.4 olarak belirlenmiştir. Başlangıç hammaddeleri olarak,

karışımların hazırlanmasında ağırlıkça % 82.71 Kaolen, % 12.42 Magnezya ve % 4.87 Kuvars hammaddeleri kullanılmıştır.

Kordiyerit stokiyometrisine uygun olarak hazırlanan karışımlara ağırlıkça % 0, 1, 2 ve 3 oranlarında bor oksit içeren çeşitli katkılar yapılarak hazırlanan tüm reçeteler Çizelge 3’de sunulmuştur.

**Çizelge 3.** Kordiyerit seramik üretimi için oluşturulan reçeteler

Reçete	Kaolen + Kuvars + Magnezya Karışımı	Susuz Boraks	Kalsine Kolemanit	Bor Atığı
Katkısız	100	0	0	0
SB1	99	1	0	0
SB2	98	2	0	0
SB3	97	3	0	0
BA1	99	0	0	1
BA2	98	0	0	2
BA3	97	0	0	3
KK1	99	0	1	0
KK2	98	0	2	0
KK3	97	0	3	0

### 2.3 Şekillendirme

Hazırlanan toz karışımlarından alınan 1.5 gramlık numuneler çelik kalıp ile tek eksenli MSE markalı hidrolik preste 1.1 ton basınçta 1,5 cm çapında ve 0,5 cm yüksekliğinde silindir şeklinde tabletler halinde şekillendirilmiştir.



**Resim 1.** Hidrolik pres ve çelik kalıp

### 2.4 Sinterleme

Şekillendirilen numuneler Protherm marka PLF 130 model elektrik rezistanslı fırında 10 °C/dk fırın rejimi ile 1000, 1100, 1200 ve 1300 °C de sinterlenmiştir.



**Resim 2.** Fırın

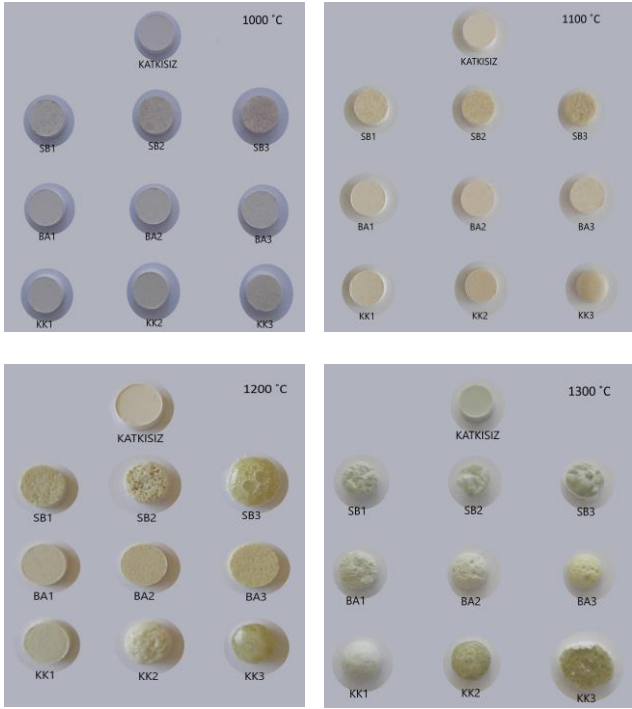
### 2.5 Karakterizasyon

Sinterlenmiş örnekler Bal-Tec marka SCD 005 model kaplama cihazında 100mA değerinde 30 s boyunca altın ile kaplanmıştır. Elektriksel ölçümler için hazır hale getirilen numuneler Gw İnstek marka Lcr-816 model lcr metre cihazında 100 Hz ve 1KHz değerlerine sahip olan iki farklı frekansta kapasitans ve dielektrik kayıp değerleri ölçümü gerçekleştirilmiştir.

### 3. Bulgular

Farklı sıcaklıklarda sinterlenen numunelerin görüntüleri Resim 3’de verilmiştir. 1300 °C’de sinterlenen % 2 ve 3 Kalsine kolemanit (KK2 ve KK3) ve Susuz boraks (SB2 ve SB3) katkılı numunelerin tamamen eriyerek camlaştığı görülmüştür. Diğer katkılı örneklerde ise numunelerde ergime ile deformasyon ve şekil bozuklukları gözlenmiştir. Dolayısı ile 1300 °C’de sinterlenen numunelerden sadece katkısız numune karakterizasyon aşamasında kullanılmıştır. 1200 °C’de sinterlenen numuneler içerisinde SB3 ve KK3 serisinde 1300 °C’deki gibi tamamen camlaşma durumu, SB2 ve KK2 serilerinde ise ergime ile birlikte şekil bozuklukları gözlenmesi nedeni ile bu numuneler de karakterizasyon aşamasında kullanılamamıştır. 1100 ve 1000 °C’de sinterlenmiş örneklerde ergime olmaması nedeni ile numunelerde herhangi bir deformasyon ve şekil

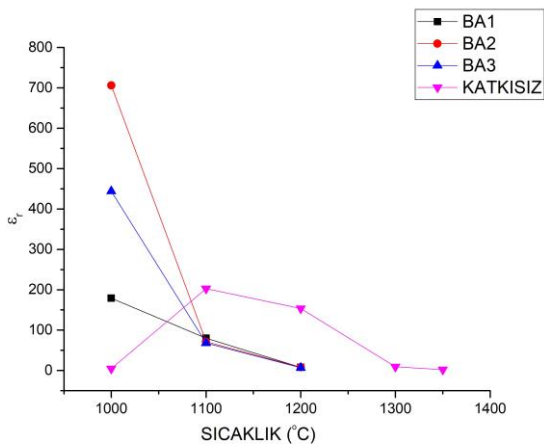
bozuklukları gözlenmemiş olup bu sıcaklıklarda sinterlenen tüm numuneler karakterizasyon aşamasında kullanılmıştır.



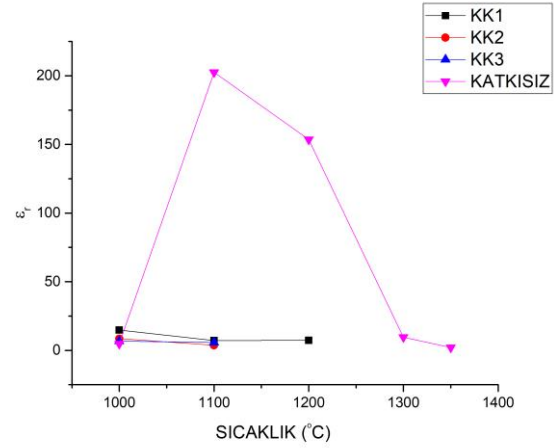
**Resim 3.** Farklı sıcaklıklarda sinterlenmiş numunelerin görünümü

Sinterlenen örneklerin 100Hz ve 1KHz değerlerinde olmak üzere iki farklı frekans değerinde kapasitans (C farad) ve dielektrik kayıp ( $\tan(\delta)$ ) ölçümleri yapılmıştır. Kapasitans değerinden faydalanarak  $\epsilon_r = \frac{Cxh}{\epsilon_0 x A}$  (1)

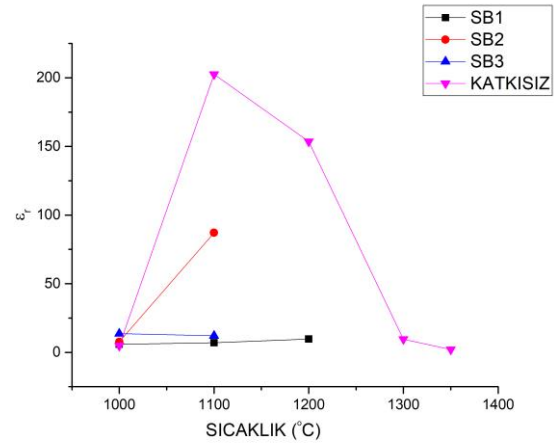
formülü ile dielektrik sabiti ( $\epsilon_r$ ) değerleri hesaplanmıştır. Formülde 'h (metre)' numunenin kalınlığı, ' $\epsilon_0$  (farad/metre)' boşluğun elektriksel geçirgenliği 'A (metre<sup>2</sup>)' numunenin yüzey alanı değerleridir. Elde edilen bulgular aşağıdaki grafiklerde gösterilmiştir.



**Şekil 1.** 100 Hz frekansta farklı sinterleme sıcaklıklarında %1, %2, %3 bor atığı katkıli numunelerin dielektrik sabiti değerlerinin grafiksel gösterimi



**Şekil 2.** 100 Hz frekansta farklı sinterleme sıcaklıklarında %1, %2, %3 kalsine kolemanit katkıli numunelerin dielektrik sabiti değerlerinin grafiksel gösterimi

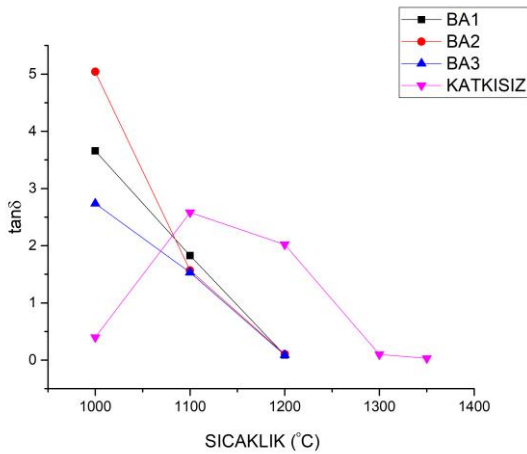


**Şekil 3.** 100 Hz frekansta farklı sinterleme sıcaklıklarında %1, %2, %3 susuz boraks katkıli numunelerin dielektrik sabiti değerlerinin grafiksel gösterimi

Şekil 1, 2 ve 3'de 100 Hz frekansta farklı sinterleme sıcaklıklarında sinterlenmiş susuz boraks, kalsine kolemanit ve bor atığı katkıli örneklerin dielektrik sabiti değerlerinin sıcaklıkla değişim grafikleri verilmiştir. Aynı bileşimdeki karışımdan elde edilen ve 1350 °C'de sinterleme ile tamamen kordiyerit fazının elde edildiği başka bir çalışmadaki (Akpınar 2019) örneklerin dielektrik özelliklerine ait değerler de karşılaştırma amacı ile grafiğe dahil edilmiştir. Tüm dielektrik ölçüm sonuçları Çizelge 4. ve Çizelge 5. te verilmiştir. 1350 °C'de kordiyerit numunenin  $\epsilon_r$  değeri 2,0 iken, 1300 °C'de bu değer 9,5 olarak



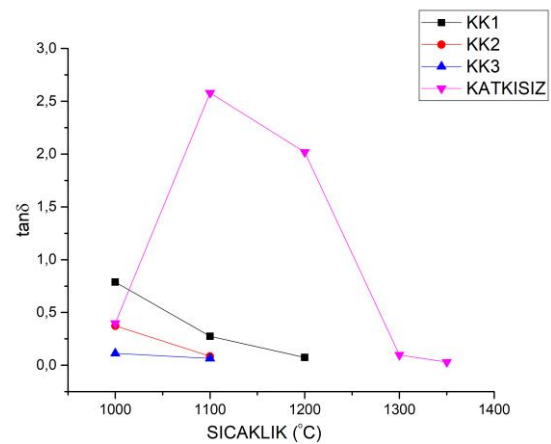
hesaplanmıştır. Kordiyerit dönüşümünün tamamen gerçekleşmediği ve enstatit, spinel, forsterit gibi fazların yer aldığı bilinen 1100 ve 1200 °C’de sinterlenmiş örneklerde  $\epsilon_r$  değerinin daha yüksek olduğu görülmektedir. Bor atığı (BA) katkısı ile düşük sıcaklıklarda yüksek  $\epsilon_r$  değerleri elde edilmiş ancak 1200 °C sinterleme sıcaklığında tüm katkı miktarlarında, 1300 °C’de sinterlenmiş katkısız numunedeki değerlere yakın değerler elde edilmiştir. Kalsine kolemanit (KK) katkısında Bor atığı katkısından farklı olarak  $\epsilon_r$  değerlerinin sıcaklığa ve katkı miktarına bağlı olarak önemli değişimler göstermediği tespit edilmiştir. % 1 ve % 3 Susuz boraks (SB) katkısında ise aynı miktardaki kalsine kolemanit katkılarındaki  $\epsilon_r$  değerlerinin sıcaklıkla değişimine benzer bir davranış gözlenmiştir. % 2 Susuz boraks katkısında ise sıcaklık artışı ile birlikte  $\epsilon_r$  değerinin arttığı görülmektedir. Sonuç olarak bor atığı katkısı ile 1200 °C sıcaklıkta sinterlenen örneklerde kordiyeritin  $\epsilon_r$  değerine yakın sonuçlar elde edilirken düşük sıcaklıklarda ise daha yüksek değerlerin elde edildiği tespit edilmiştir. Kalsine kolemanit ve susuz boraks katkılı örneklerde ise % 1 katkılarındaki 1100 ve 1200 °C sıcaklıklarda sinterlenen numunelerin benzer davranış sergilediği ve kordiyeritin  $\epsilon_r$  değerine yakın sonuçlar elde edildiği görülmüştür.



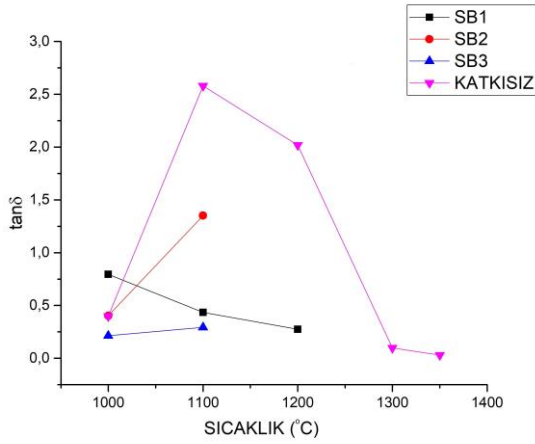
**Şekil 4.** 100 Hz frekansta farklı sinterleme sıcaklıklarında %1, %2, %3 bor atığı katkılı numunelerin dielektrik kayıp değerlerinin grafiksel gösterimi

**Çizelge 4.** 100 Hz frekans değerinde  $\epsilon_r$  ve  $\tan(\delta)$  ölçüm sonuçları

Numune Adı	Dielektrik Sabiti	Dielektrik Kayıp
KK1-1000	14,8	0,7883
KK2-1000	8,5	0,3731
KK3-1000	6,8	0,1130
BA1-1000	179,0	2,7360
BA2-1000	706,3	5,0403
BA3-1000	444,1	3,6577
SB1-1000	5,9	0,2137
SB2-1000	7,7	0,4029
SB3-1000	13,7	0,7953
KATKISIZ-1000	4,7	0,3979
KK1-1100	7,2	0,2749
KK2-1100	3,7	0,0844
KK3-1100	5,8	0,0657
BA1-1100	79,9	1,8283
BA2-1100	71,2	1,5680
BA3-1100	68,0	1,5307
SB1-1100	7,0	0,4339
SB2-1100	87,2	1,3513
SB3-1100	12,1	0,2936
KATKISIZ-1100	202,6	2,5793
KK1-1200	7,3	0,0738
BA1-1200	8,0	0,0869
BA2-1200	7,9	0,1023
BA3-1200	7,1	0,0893
SB1-1200	9,7	0,2748
KATKISIZ-1200	153,6	2,0187
KATKISIZ-1300	9,5	0,0982
KATKISIZ-1350	2,0	0,0295

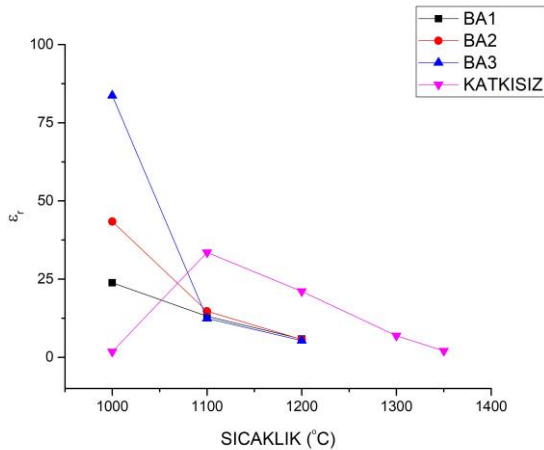


**Şekil 5.** 100 Hz frekansta farklı sinterleme sıcaklıklarında %1, %2, %3 kalsine kolemanit katkılı numunelerin dielektrik kayıp değerlerinin grafiksel gösterimi

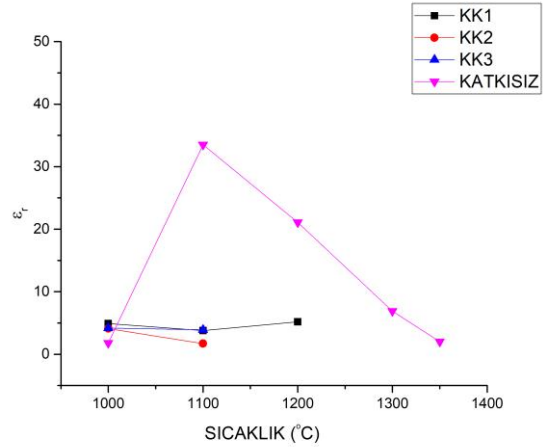


**Şekil 6.** 100 Hz frekansta farklı sinterleme sıcaklıklarında %1, %2, %3 susuz boraks katkılı numunelerin dielektrik kayıp değerlerinin grafiksel gösterimi

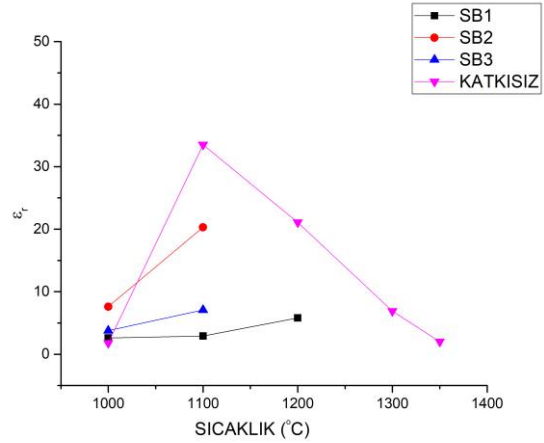
Şekil 4, 5 ve 6'da 100 Hz frekansta farklı sıcaklıklarda sinterlenmiş susuz boraks, kalsine kolemanit ve bor atığı katkılı örneklerin dielektrik kayıp değerlerinin sıcaklıkla değişim grafikleri verilmiştir. Elde edilen tüm sonuçlar dielektrik sabiti değerleri ile benzer eğilim gösterdiği tespit edilmiştir. Bor atığı katkısında 1200 °C'de sinterlenen örneklerin kayıp faktörlerinin 1300 ve 1350 °C'de sinterlenen kordiyerit fazının önemli oranda ve tamamen oluştuğu örneklerden elde edilen değerlere yakın olduğu görülmüştür. % 1 ve % 3 Susuz boraks katkısında ise aynı miktardaki kalsine kolemanit katkılarındaki numunelerde dielektrik kayıp değerlerinin sıcaklıkla değişiminin benzerlik gösterdiği ve kordiyerit numunesinin kayıp faktörü değerine en yakın değerlerin % 1 susuz boraks ve kalsine kolemanit katkılı örneklerde elde edildiği tespit edilmiştir.



**Şekil 7.** 1 KHz frekansta farklı sinterleme sıcaklıklarında %1, %2, %3 bor atığı katkılı numunelerin dielektrik sabiti değerlerinin grafiksel gösterimi



**Şekil 8.** 1 KHz frekansta farklı sinterleme sıcaklıklarında %1, %2, %3 kalsine kolemanit katkılı numunelerin dielektrik sabiti değerlerinin grafiksel gösterimi



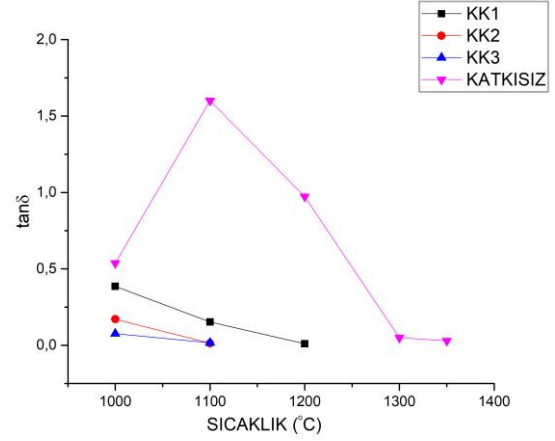
**Şekil 9.** 1 KHz frekansta farklı sinterleme sıcaklıklarında %1, %2, %3 susuz boraks katkılı numunelerin dielektrik sabiti değerlerinin grafiksel gösterimi

Şekil 7, 8 ve 9'da 1 KHz frekansta farklı sinterleme sıcaklıklarında sinterlenmiş susuz boraks, kalsine kolemanit ve bor atığı katkılı örneklerin dielektrik sabiti değerlerinin sıcaklıkla değişim grafikleri verilmiştir. Bor atığı katkılı örneklerde 100 Hz'deki elde edilen değerlerin sıcaklıkla değişimine benzer bir eğilim 1 KHz frekansta da elde edilmiş olup kordiyeritin  $\epsilon_r$  değerine en yakın değerlerin yine 1200 °C'de sıcaklıkta sinterleme ile elde edildiği tespit edilmiştir. Kalsine kolemanit katkısında ise kordiyeritin  $\epsilon_r$  değerine en yakın değerlerin 1100 °C'de sinterlenmiş % 2 katkı miktarında elde edildiği belirlenmiştir. Susuz boraks katkısında ise

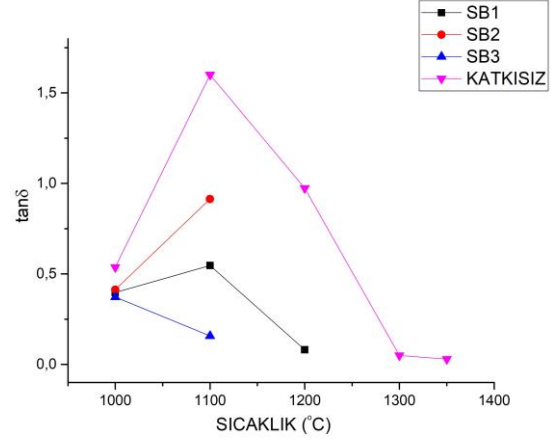
kordiyeritin  $\epsilon_r$  değerine en yakın değerin 1100 °C'de sinterlenmiş % 1 katkı miktarında elde edildiği tespit edilmiştir.

**Çizelge 5.** 1 KHz frekans değerinde  $\epsilon_r$  ve  $\tan(\delta)$  ölçüm sonuçları

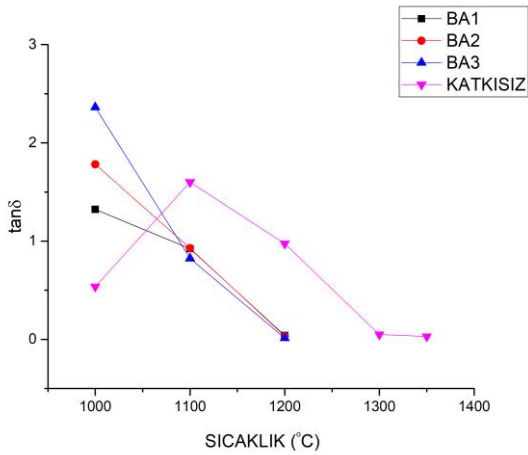
Numune Adı	Dielektrik Sabiti	Dielektrik Kayıp
KK1-1000	4,9	0,3855
KK2-1000	4,1	0,1706
KK3-1000	4,2	0,0766
BA1-1000	23,8	1,3220
BA2-1000	43,4	1,7820
BA3-1000	83,7	2,3633
SB1-1000	2,6	0,3968
SB2-1000	7,6	0,4131
SB3-1000	3,8	0,3728
KATKISIZ-1000	1,8	0,5368
KK1-1100	3,8	0,1526
KK2-1100	1,7	0,0133
KK3-1100	3,9	0,0159
BA1-1100	13,1	0,9223
BA2-1100	14,7	0,9269
BA3-1100	12,4	0,8235
SB1-1100	2,9	0,5462
SB2-1100	20,3	0,9142
SB3-1100	7,1	0,1570
KATKISIZ-1100	33,5	1,6007
KK1-1200	5,2	0,0102
BA1-1200	5,8	0,0385
BA2-1200	5,7	0,0331
BA3-1200	5,3	0,0145
SB1-1200	5,8	0,0810
KATKISIZ-1200	21,1	0,9733
KATKISIZ-1300	6,9	0,0496
KATKISIZ-1350	2,0	0,0295



**Şekil 11.** 1 KHz frekansta farklı sinterleme sıcaklıklarında %1, %2, %3 kalsine kolemanit katkıli numunelerin dielektrik kayıp değerlerinin grafiksel gösterimi



**Şekil 12.** 1 KHz frekansta farklı sinterleme sıcaklıklarında %1, %2, %3 susuz boraks katkıli numunelerin dielektrik kayıp değerlerinin grafiksel gösterimi



**Şekil 10.** 1 KHz frekansta farklı sinterleme sıcaklıklarında %1, %2, %3 bor atığı katkıli numunelerin dielektrik kayıp değerlerinin grafiksel gösterimi

Şekil 10, 11 ve 12'de 1 KHz frekansta farklı sinterleme sıcaklıklarında sinterlenmiş susuz boraks, kalsine kolemanit ve bor atığı katkıli örneklerin dielektrik kayıp değerlerinin sıcaklıkla değişim grafikleri verilmiştir. Bor atığı katkıli örneklerde kordiyeritin  $\tan(\delta)$  değerine en yakın değerlerin 1200 °C'de sinterlenmiş örneklerde elde edildiği görülmektedir. Kalsine kolemanit katkısında ise kordiyeritin  $\tan(\delta)$  değerine en yakın değerlerin % 1 katkıli örnekte 1200 °C'de, % 2 ve % 3 katkıli örneklerde 1100 °C'de elde edildiği görülmektedir. Susuz boraks katkısında ise kordiyeritin  $\tan(\delta)$  değerine en yakın değerlerin % 1 katkıli 1200 °C'de sinterlenmiş örnekte elde edildiği tespit edilmiştir.



#### 4. Tartışma ve Sonuç

Kalsine kolemanit ve susuz boraks katkılarının % 1'in üzerinde kullanıldığında 1200 °C üzerinde numunelerde camlaşmaya neden olduğu tespit edilmiştir. Bor atığı katkısı ile 1200 °C'de sinterleme işlemi ile kordiyeritin dielektrik özelliklerine yakın sonuçlar elde edilmiş olup katkı maddesi miktarının bu sonuçlar üzerinde önemli bir değişime neden olmadığı tespit edilmiştir. Kalsine kolemanit ve susuz boraks katkıları % 1 oranında kullanıldığında ve 1200 °C'de sinterleme işlemi gerçekleştirildiğinde kordiyeritin dielektrik özelliklerine benzer özellikler elde edildiği belirlenmiştir. Sonuç olarak çeşitli bor oksit içerikli katkılar ile farklı sıcaklıklarda gerçekleştirilen sinterleme işlemleri neticesinde 1200 °C'de kordiyeritin dielektrik özelliklerine benzer sonuçlar elde edildiği ve dolayısı ile kordiyeritin dielektrik özelliklerinden ödün vermeden bor oksit içerikli katkılar ile sinterleme sıcaklığında 100-150 °C'lik bir düşüş sağlanabileceği sonucuna ulaşılmıştır.

#### 5. Kaynaklar

- Akpınar, S., Kuşoğlu İ.M., Ertugrul O., Onel K., 2015. Microwave assisted sintering of in-situ cordierite foam, *Ceramics International*, **41**, 8605-8613.
- Kumar, M.S., Perumal, A.E., Vijayaram, T.R., 2015. Synthesis, characterization and sintering behavior influencing mechanical, thermal and physical properties of pure cordierite and cordierite–ceria, *Journal of Advanced Ceramics*, **4**, 22–30.
- Akpınar S., 2019. Influence of dispersing agents on microstructure-related properties of slip cast cordierite ceramics, *Ceramics International*, **45**, 15488-15495.
- Oliveira F.A.C., Fernandes J.C., 2002. Mechanical and thermal behaviour of cordierite–zirconia composites, *Ceramic International*, **28**, 79–91.
- Thorp J.S., Hutton W., 1981. Radiation induced paramagnetic centres in MgO–Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>–SiO<sub>2</sub> glasses containing TiO<sub>2</sub>, *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, **42**, 843–855.

- Winter W., 1997. Sintering and crystallization of volume- and surface-modified cordierite glass powders, *Journal of Materials Science*, **32**, 1649–1655.
- Wu, J.M., Hwang, S.P., 2000. Effects of (B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) additives on microstructural development and phase – transformation kinetics of stoichiometric cordierite glasses, *Journal of The American Ceramic Society*, **83**, 1259 – 1265.
- Clark, S.M., 2017. The kinetic analysis of irreversible consecutive solid state reactions: The effect of zinc on the formation of cordierite, *Journal of The American Ceramic Society*, **100**, 2525 – 2532.