



**T.C.
İSTANBUL ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**



YÜKSEK LİSANS TEZİ

**ÇOK KRİSTALLİ SAYDAM YAG ($Y_3Al_5O_{12}$) SERAMİK
MALZEMESİNİN OKSİT TOZLARINDAN ÜRETİMİ VE
KARAKTERİZASYONU**

Mutlucan SOZAK

Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Anabilim Dalı

Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Programı

Danışman

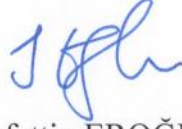
Prof. Dr. Şerafettin EROĞLU

Haziran, 2016

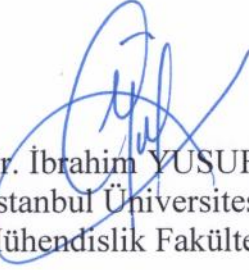
İSTANBUL

Bu çalışma 21/06/2016 tarihinde ařağıdaki jüri tarafından Metalurji ve Malzeme Mühendisliğı Anabilim Dalı, Metalurji ve Malzeme Mühendisliğı programında Yüksek Lisans Tezi olarak kabul edilmiştir.

Tez Jürisi:



Prof. Dr. Şerafettin EROĞLU (Danışman)
İstanbul Üniversitesi
Mühendislik Fakültesi



Prof. Dr. İbrahim YUSUFOĞLU
İstanbul Üniversitesi
Mühendislik Fakültesi



Prof. Dr. Suat YILMAZ
İstanbul Üniversitesi
Mühendislik Fakültesi



Prof. Dr. Halil İ. BAKAN
Kocaeli Üniversitesi
Mühendislik Fakültesi



Yar. Doç. Dr. İlven MUTLU
(Doçent Unvanlı)
İstanbul Üniversitesi
Mühendislik Fakültesi

ÖNSÖZ

Bu çalışma TÜBİTAK MAM Malzeme Enstitüsü 5135510 kodlu proje kapsamında desteklenmiştir.

TÜBİTAK projesine dahil olmama vesile olan, bana yeni ufuklar açan, çalışmalarımız sırasında engin malzeme bilgisi ve tecrübesinden çokça yararlandığım, bugünlere gelmemde ve bu tez çalışmasının tamamlanmasında çok yardımcı olan değerli hocam Sn. Prof. Dr. Şerafettin EROĞLU'na derin saygılarımı ve sevgilerimi sunar, teşekkürü borç bilirim.

Proje çalışmalarına destek veren TÜBİTAK MAM Başkanlığı'na (Sn. Doç. Dr. Bahadır TUNABOYLU'ya) ve Malzeme Enstitüsü Yönetimi'ne (Sn. Prof. Dr. Metin USTA ve Sn. Ahmet TAŞKIN'a) teşekkür ederim.

Malzeme Enstitüsü'nde çalıştığım proje yürütücülerim Sn. Prof. Dr. Halil İ. BAKAN ve Sn. Dr. Mehmet GÜNEŞ'e bana olan güvenleri ve desteklerinden ötürü teşekkür ederim.

Aynı ofisi paylaştığım, bana olan daimi inancı ve yanımda olmasının verdiği güven ile çalışmalarına aynı azim ve kararlılıkla devam etmemi sağlayan çok değerli büyüğüm, abim, çalışma arkadaşım sayın Sn. Dr. Mehmet KAYHAN'a teşekkür ederim. Her daim yanımda olan değerli mesai arkadaşım, sevgili abim, Sn. Erdem GÜNGÖR'e teşekkür ederim. Bana her konuda yardımcı olan, benim için her zaman en iyisini isteyen Sn. Dr. Ayşen KILIÇ ve Sn. Yasemin TABAK'a teşekkürü borç bilirim. Malzeme Enstitüsü Seramik Laboratuvarı değerli çalışanları Sn. Bayise KAVAKLI VATANSEVER ve Sn. Erbay KELEŞ'e yardımları ve destekleri için teşekkür ederim. Karakterizasyon çalışmalarında bana yardımcı olan Sn. Emre KARABEYOĞLU, Cem BERK, Hidayet BODUR, Bilal TEYMUR ve Cemalettin ÇAMYURDU'na teşekkür ederim.

Can dostlarım, yol arkadaşlarım her zaman her koşulda yanımda olan çok değerli kardeşlerim Koray, Ümmet ve Caner'e ve onların ailelerine her zaman yanımda oldukları için gönülden teşekkürlerimi sunarım.

Beni bugünlere getiren canım aileme, bana olan sonsuz sevgi, güven ve destekleri için saygılarımı, sevgilerimi ve teşekkürlerimi sunarım.

Haziran, 2016

Mutlucan SOZAK

İÇİNDEKİLER

Sayfa No

ÖNSÖZ.....	i
İÇİNDEKİLER	ii
ŞEKİL LİSTESİ.....	v
TABLO LİSTESİ	viii
SİMGE VE KISALTMA LİSTESİ	ix
ÖZET.....	x
SUMMARY	xii
1. GİRİŞ.....	1
2. GENEL KISIMLAR	3
2.1. İTRİYUM ALÜMİNYUM GARNET (YAG)	3
2.2. YAG ÜRETİM YÖNTEMLERİ	7
2.2.1. Tek Kristalli YAG Üretimi	7
2.2.2. Çok Kristalli YAG Üretimi.....	8
2.2.2.1. YAG Tozu Üretimi	9
2.2.2.2. Şekillendirme Yöntemleri	12
2.2.2.3. Sinterleme Yöntemleri	17
2.3. UYGULAMA ALANLARI.....	26
2.3.1. Kaplama Uygulamaları	26
2.3.2. Işık Yayan Diyot (LED) Uygulamaları.....	27
3. MALZEME VE YÖNTEM	29
3.1. KULLANILAN MADDELER	29
3.2. YÖNTEM	29
3.3. DENEYSEL PLANLAMA	30
3.3.1. Tozların Karıştırılması	30
3.3.2. Toz Karıştırma Süresinin Etkisi.....	31
3.3.3. Soğuk İzostatik Presleme Basıncının Etkisi	32
3.3.4. Sinterleme Sıcaklığının Etkisi.....	32
3.3.5. Sinterleme Süresinin Etkisi.....	33

3.3.6. Tavlama Sıcaklığının Etkisi	34
3.4. KARAKTERİZASYON TEKNİKLERİ	34
3.4.1. Partikül Boyutu Analizleri	34
3.4.2. XRD Analizleri	34
3.4.3. Taramalı Elektron Mikroskobu Analizleri.....	34
3.4.4. Yoğunluk Ölçümleri	35
3.4.5. Parlatma İşlemi	35
3.4.6. Sertlik Ölçümleri.....	36
3.4.7. Optik Geçirgenlik Ölçümleri	36
4. BULGULAR	37
4.1. HAMMADDELERİN KARAKTERİZASYONU	37
4.1.1. Faz Analizleri.....	37
4.1.2. Morfoloji Analizleri	38
4.1.3. Partikül Boyutu Analizleri	39
4.2. KARIŞTIRMA SÜRESİNİN VE KARIŞTIRMA TEKNİĞİNİN SİNERLEMEYE ETKİSİ.....	41
4.2.1. Yoğunluk Ölçümleri	41
4.2.2. Faz Analizleri.....	45
4.2.3. Mikroyapı Analizleri.....	46
4.2.4. Sertlik İncelemeleri	48
4.3. PRES BASINCININ HAM YOĞUNLUĞA VE SİNER SONRASI YOĞUNLUĞA ETKİSİ	49
4.3.1. Yoğunluk Ölçümleri	49
4.4. SİNERLEME SICAKLIĞININ ETKİSİ.....	51
4.4.1. Yoğunluk Ölçümleri	51
4.4.2. Faz Analizleri.....	52
4.4.3. Mikroyapı Analizleri.....	53
4.4.4. Optik Geçirgenlik Ölçümleri	54
4.4.5. Sertlik Ölçümleri.....	57
4.5. SİNERLEME SÜRESİNİN ETKİSİ.....	58
4.5.1. Yoğunluk Ölçümleri	58
4.5.2. Faz Analizleri.....	59
4.5.3. Mikroyapı Analizleri.....	60
4.5.4. Optik Geçirgenlik Ölçümleri	61
4.5.5. Sertlik Ölçümleri.....	63

4.6. TAVLAMA SICAKLIĞININ ETKİSİ.....	64
4.6.1. Faz Analizleri.....	64
4.6.2. Mikroyapı Analizleri.....	64
4.6.3. Optik Geçirgenlik Ölçümleri	66
4.6.4. Sertlik Ölçümleri.....	67
5. TARTIŞMA VE SONUÇ	68
5.1. SİNERLEŞME DAVRANIŞI	68
5.1.1. Karıştırma Süresinin ve Karıştırma Tekniğinin Sinterleşmeye Etkileri	68
5.1.2. Pres Basıncının Yoğunluğa Etkisi	69
5.1.3. Sıcaklığın, Sürenin ve Sinter Katkısının Yoğunlaşmaya Etkileri	70
5.2. SERTLİK VE MİKROYAPI.....	71
5.3. OPTİK GEÇİRGENLİK (SAYDAMLIK)	71
5.4. GENEL SONUÇLAR.....	74
KAYNAKLAR	75
ÖZGEÇMİŞ.....	85

ŞEKİL LİSTESİ

Sayfa No

Şekil 2.1: Garnet kristal yapısı [14].....	4
Şekil 2.2: $Y_2O_3 - Al_2O_3$ faz diyagramı [21].....	5
Şekil 2.3: Y_2O_3 ve Al_2O_3 toz karışımının sinterleme modeli [25].	6
Şekil 2.4: Czochralski yönteminin şematik gösterimi [29].	8
Şekil 2.5: Jel dökme yöntemi akış şeması [66].....	14
Şekil 2.6: (a) $1720^{\circ}C$ 'de 6 saat sinterlenmiş 0.5 mm kalınlıktaki numunenin geçirgenliği. (b) YAG numunesinin resmi [69].	15
Şekil 2.7: Sulu ve susuz yöntemle üretilen numunelerin optik geçirgenlik değerleri [70].....	17
Şekil 2.8: $G^3 - G_0^3 = kt$ değişimi. (a) $1500^{\circ}C$ ve (b) $1730^{\circ}C$ [24].	19
Şekil 2.9: Spark plazma yönteminin şematik gösterimi [84].....	21
Şekil 2.10: (a) Değişik spark plazma sinterleme koşullarında YAG numunelerinin görünür ışık dalga boylarındaki geçirgenlik değerleri. (b) Spark plazma yöntemi ile üretilen numunenin görünümü [90].	22
Şekil 2.11: Sıcak pres yönteminin şematik gösterimi [105].	24
Şekil 2.12: Sıcak izostatik pres yöntemi ile gözenek giderme işleminin mikroyapı modeli [111].....	25
Şekil 2.13: Magnezyum üzerinde YAG seramik kaplama kesit görüntüsü [128].	27
Şekil 2.14: (a) LED yapısı. (b) mavi LED çipinin ve fosforun yaptığı ışınım [133].	28
Şekil 3.1: YAG üretimi için proses akış şeması.	30
Şekil 4.1: Al_2O_3 tozuna ait XRD paterni.	37
Şekil 4.2: Y_2O_3 tozuna ait XRD paterni.	38
Şekil 4.3: Al_2O_3 tozuna ait SEM görüntüleri.	39
Şekil 4.4: Y_2O_3 tozuna ait SEM görüntüleri.	39
Şekil 4.5: Y_2O_3 ve Al_2O_3 tozlarında hacim-partikül boyut dağılımı eğrileri.	40
Şekil 4.6: Al_2O_3 tozunun şiddet-partikül boyutu dağılım grafiği.	40

Şekil 4.7: Ham yoğunluğun karıştırma süresi ile değişimi.....	41
Şekil 4.8: 1700 °C’de 1 saat sinterlenen numunelerin yoğunluğuna karıştırma süresinin etkisi.....	42
Şekil 4.9: 1700 °C’de 5 saat sinterlenen numunelerin yoğunluğuna karıştırma süresinin etkisi.....	43
Şekil 4.10: Turbula ile karıştırılan tozlarda ham pelet yoğunluğuna karıştırma süresinin etkisi.....	44
Şekil 4.11: Turbula karıştırıcıda farklı sürelerde karıştırılarak elde edilen ham peletlerin 5 saat sinterlenmesinin ardından karıştırma süresinin sinter sonrası yoğunluğa etkisi.....	44
Şekil 4.12: Turbula karıştırıcıda farklı sürelerde karıştırılarak elde edilen ham peletlerin 20 saat sinterlenmesinin ardından karıştırma süresinin sinter sonrası yoğunluğa etkisi.....	45
Şekil 4.13: Değişik karıştırma sürelerinde elde edilen sinterlenmiş ürünlere ait XRD paternleri.....	46
Şekil 4.14: Karıştırma süresinin ve türünün numunenin mikroyapısına etkisi. a) 0,5 b) 4 c) 8 d) 16 e) 24 saat Retsch marka bilyeli değirmende f) 24 saat Turbula’da karıştırılan numunelere ait SEM görüntüleri	47
Şekil 4.15: Karıştırma süresinin ve türünün numunenin mikroyapısına etkisi. a) 0,5 b) 4 c) 8 d) 16 e) 24 saat Retsch marka bilyeli değirmende f) 24 saat Turbula’da karıştırılan numunelere ait SEM görüntüleri	48
Şekil 4.16: Oksit tozlarının karıştırma süresinin sinterlenen numunelerin sertliklerine etkisi.	49
Şekil 4.17: SİP basıncının ham pelet yoğunluğuna etkisi.....	50
Şekil 4.18: SİP basıncının 1700 °C’de 5 saat sinterleme sonrası pelet yoğunluğuna etkisi.	51
Şekil 4.19: Al ₂ O ₃ ve Y ₂ O ₃ toz karışımının sinter yoğunluğuna sıcaklığın etkisi.....	52
Şekil 4.20: Farklı sıcaklıklarda sinterlenen sinter katkılı ve katkısız numunelere ait XRD paternleri.....	53
Şekil 4.21: Sinterleme sıcaklığının ve sinter katkısının numunenin mikroyapısına etkisi. a) 1500 b) 1600 c) 1700 °C’de sinterlenen katkısız numunelere, d) 1500 e) 1600 f) 1700 °C’de sinterlenen katkılı numunelere ait SEM görüntüleri.	54
Şekil 4.22: 1500, 1600 ve 1700°C sıcaklıkta 5 saat süreyle sinterlenen ve sinter katkısı içermeyen 2,3 mm kalınlığındaki numunelerin görüntüsü.	55
Şekil 4.23: 1500, 1600, 1700 °C sıcaklıkta 5 saat süre ile sinterlenen ve sinter katkısı içermeyen numunelerin geçirgenliğinin dalgaboyu ile değişimi.	55
Şekil 4.24: 1500, 1600 ve 1700°C sıcaklıkta 5 saat süreyle sinterlenen ve sinter katkısı içeren 2 mm kalınlığındaki numunelerin görüntüsü.	56
Şekil 4.25: 1500, 1600, 1700 °C sıcaklıkta 5 saat süre ile sinterlenen ve sinter katkısı içeren numunelerin geçirgenliğinin dalgaboyu ile değişimi.....	56

Şekil 4.26: Sinter katkısı içeren ve içermeyen numunelerde sinterleme sıcaklığının numunenin Vickers sertliğine etkisi.	57
Şekil 4.27: Sinter katkısı içermeyen ham peletlerin sinter yoğunluğuna 1700 °C'deki sinterleme süresinin etkisi.....	58
Şekil 4.28: Sinter katkısı içeren numunelerin 1700 °C'de sinter yoğunluklarına sinterleme süresinin etkisi.	59
Şekil 4.29: Farklı sürelerde sinterlenen numunelerin XRD paternleri.	60
Şekil 4.30: Sinterleme süresinin ve sinter katkısının numunenin mikroyapısına etkisi. a) 1 b) 2 c) 5 d) 10 e) 17 saat süre ile sinterlenen katkısız numunelere, f) 17 saat süre ile sinterlenen numuneye ait SEM görüntüleri.	61
Şekil 4.31: 1700 °C sıcaklıkta farklı sürelerde sinterlenen numunelerin görüntüsü. (1, 2, 5 ve 10 saat sinterlenen numuneler 2,4 mm, 17 saat sinterlenenler ise 2 mm kalınlıktadır.)	62
Şekil 4.32: 1700 °C'de farklı sürelerde sinterlenen numunelerin geçirgenliğinin dalgaboyu ile değişimi. (Sarı renkli eğri katkılı numuneye aittir.).....	62
Şekil 4.33: 1700°C'de elde edilen numunelerde sinterleme süresine bağlı olarak numunelerin Vickers sertliğinin değişimi.	63
Şekil 4.34: Farklı sıcaklıklarda 10 saat tavlanan numunelere ait XRD paternleri.....	64
Şekil 4.35: Değişik sıcaklıklarda 10 saat süre ile tavllanmış numunelerin mikroyapı görüntüleri. (a-b) 1375, (c-d) 1450, (e-f) 1525, (g-h) 1600 °C'de tavlanan numunelere ait SEM görüntüleri. (Soldaki görüntüler düşük büyütmede, sağdakiler yüksek büyütmede çekilmiştir.)	65
Şekil 4.36: Değişik sıcaklıklarda tavlanan 2,6 mm kalınlığındaki numunelerin görüntüsü.	66
Şekil 4.37: Değişik sıcaklıklarda tavllanmış numunelerin geçirgenliğinin dalgaboyu ile değişimi.	66
Şekil 4.38: Tavlama sıcaklığının Vickers sertliğine etkisi.	67
Şekil 5.1: Bilyeli değirmende değişik süreler karıştırılan tozların partikül boyut dağılım eğrileri.....	69
Şekil 5.2: (a) saydam, (b) yarı saydam, (c) opak malzemede ışık yayılımı [134].	72
Şekil 5.3: Çok kristalli seramiklerde ışık saçılma kaynakları [135].	72

TABLO LİSTESİ

Sayfa No

Tablo 2.1: YAG'ın fiziksel özellikleri [10].....	3
Tablo 2.2: $Y_2O_3 - Al_2O_3$ arasında oluşan bileşikler için stokiyometrik molar oranlar [22].....	5
Tablo 3.1: Karıştırma süresi deney planı.	31
Tablo 3.2: SİP basıncı deney planı.....	32
Tablo 3.3: Sinterleme sıcaklığı deney planı.....	33
Tablo 3.4: Sinterleme süresi deney planı.	33
Tablo 3.5: Tavlama sıcaklığı deney planı.	34

SİMGE VE KISALTMA LİSTESİ

Simgeler	Açıklama
C	: Celcius
K	: Kelvin
Θ	: Difraksiyon açısı
G	: Gibbs serbest enerjisi
T	: Geçirgenlik

Kisaltmalar	Açıklama
MPa	: Megapaskal
GPa	: Gigapaskal
nm	: nanometre
μm	: mikrometre
cm	: santimetre
g	: gram
kg	: kilogram
W	: watt
kW	: kilowatt
dk	: dakika
sa	: saat
ppm	: milyonda bir
SPS	: Spark plazma sinterleme
SİP	: Soğuk izostatik presleme

ÖZET

YÜKSEK LİSANS TEZİ

ÇOK KRİSTALLİ SAYDAM YAG ($Y_3Al_5O_{12}$) SERAMİK MALZEMESİNİN OKSİT TOZLARINDAN ÜRETİMİ VE KARAKTERİZASYONU

Mutlucan SOZAK

İstanbul Üniversitesi

Fen Bilimleri Enstitüsü

Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Anabilim Dalı

Danışman : Prof. Dr. Şerafettin EROĞLU

İtriyum alüminyum garnet (YAG), $Y_3Al_5O_{12}$, yüksek sıcaklık dayanımı, kimyasal direnci, yüksek mukavemeti ve iyi optik özellikler gösterdiği için medikal, endüstriyel ve askeri uygulama alanlarında kullanılmaktadır. Sıvı fazdan üretilen tek kristal YAG bu uygulama alanlarında yaygın olarak kullanılmaktadır. Sinterlenmiş polikristal YAG seramik, tek kristale kıyasla üstün özelliklere sahip olması ve daha kolay üretimi nedeniyle yakın geçmişte önemli derecede dikkat çekmiştir.

Bu tez çalışmasında oksit tozlarından presleme ve sinterleme yöntemiyle çok kristalli saydam YAG seramik malzemesi elde edilmesi amaçlanmıştır. Karıştırma süresi (0.5-24 saat), pres basıncı (200-400 MPa), karıştırma tekniği (bilyeli değirmen, Turbula karıştırıcı), sinter katkısı, sinter sıcaklığı (1500-1700 °C) ve süresinin (1-20 saat) sinterlenmiş ürünün özelliklerine (yoğunluk, mikroyapı, faz içerikleri, sertlik, ışık geçirgenliği) etkileri incelenmiştir.

Çalışılan tüm şartlar altında stokiometrik Al_2O_3 ve Y_2O_3 toz karışımların sinterlenmesiyle tek faz YAG elde edilmiştir. Turbula karıştırıcıdan elde edilen toz karışımlar kullanıldığında ise sinter sonrası yoğunluklar nispeten teorik yoğunluğun altında düşük seviyelerde kalmıştır. Artan bilyeli değirmen karıştırma süresiyle yoğunluk teorik yoğunluğa ulaşmıştır. Sinter sıcaklığı arttıkça yoğunluk artmıştır. Sinter katkısız numunelerde 1700 °C'de 5 saat içinde teorik yoğunluğa erişilmiştir. Sinter katkılı numunelerde sinterleme sırasında oluşan sıvı faz içinde iyon taşınımı arttığından dolayı, daha düşük sıcaklıkta 1600 °C'de 5 saat içinde teorik yoğunluğa ulaşmıştır.

Sinter süresi arttıkça yoğunluk artmıştır. Katkısız numunelerde 1700 °C’de 5 saat içinde katkılı numunelerde ise 2 saat içinde teorik yoğunluğa ulaşılmıştır.

Numune içindeki boşluklar azaldığından artan sıcaklık ve süreyle sertlikte artış gözlenmiştir. Ancak teorik yoğunluğa erişildikten sonra sinterleme sıcaklığı ve süre artırıldığında tane büyümesi olduğundan sertlikte biraz düşüş gözlenmiştir. Benzer şekilde sinter katkısı tane büyümesine neden olduğu için katkısız numuneye kıyasla katkılı numunede sertlik değerinde düşüş olmuştur. Turbula karıştırıcıda elde edilen numuneler yetersiz yoğunlaşmadan dolayı opak (ışık geçirmez) görünüm sergilemiştir. Bilyeli değirmenden elde edilen numunelerde, sinter sıcaklığı ve süresi arttıkça boşluklar azaldığı için, optik geçirgenlik artmıştır. Teorik yoğunluğa sahip numuneler tam saydam görünüm (optik geçirgenlik maks. %80) göstermiştir.

Mayıs 2016, 98 sayfa

Anahtar kelimeler: İtiryum Alüminyum Garnet, Polikristal Saydam Seramikler, Sinterleme, Optik Geçirgenlik

SUMMARY

M.Sc. THESIS

PRODUCTION AND CHARACTERIZATION OF POLYCRYSTALLINE TRANSPARENT YAG ($\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$) CERAMIC MATERIAL FROM OXIDE POWDERS

Mutlucan SOZAK

Istanbul University

Institute of Graduate Studies in Science and Engineering

Department of Metallurgical and Materials Engineering

Supervisor: Prof. Dr. Şerafettin EROĞLU

Yttrium Aluminum Garnet (YAG), $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, is used for medical, industrial and military applications because it has high temperature strength, chemical resistance, high strength and good optical properties. Single crystal YAG produced from its liquid is extensively used for these applications. Recently, sintered polycrystalline YAG ceramic is receiving considerable attention owing to its facile fabrication and superior properties compared to single crystal YAG.

The present thesis aims to produce polycrystalline YAG ceramic material by pressing and sintering of the oxide powders. Effects of mixing time (0.5-24 hr), press pressure (200-400 MPa), mixing technique (ball mill, Turbula mixer), sintering aid, sintering temperature (1500-1700°C) and time (1-20 hr) on the properties of sintered products (density, microstructure, phase content, hardness, optical transmittance) were investigated. Under all the experimental conditions studied, single phase YAG was obtained by sintering of the stoichiometric oxide powder mixtures. In the case of using Turbula mixed powders, sintered densities were found to be lower than the theoretical density. Increasing ball milling time increases sintered density to theoretical density. Density also increases with increasing sintering temperature. The theoretical density was attained within 5 hour at 1700°C in the samples without sintering aid. In the samples with sintering aid, the theoretical density was obtained within 5 hour at a lower temperature of 1600°C owing to the presence of a liquid phase which facilitates ion

transports. Density also increases with increasing sintering time. The theoretical density was achieved in 5 hour and 2 hour at 1700°C for the samples without and with sintering aid, respectively. Hardness increases with increasing temperature and time because porosity decreases. However, after reaching the theoretical density, the hardness is observed to decrease slightly as sinter temperature and time increase owing to grain coarsening. The samples prepared from Turbula mixed powders exhibit opaque appearance (no optical transmittance) due to incomplete densification. The samples obtained from ball milled powders, however, show much better optical transmittance. In these samples, optical transmittance is observed to increase with sintering temperature and time because porosity decreases. The samples with the theoretical density exhibit complete transparent appearance with max. optical transmittance of %80 at 1064 nm.

May 2016, 98 pages

Keywords: Yttrium Aluminum Garnet, Polycrystalline Transparent Ceramics, Sintering, Optical Transmittance

1. GİRİŞ

Sıvıdan tek kristal büyütme teknolojisi sayesinde seramik yapılı malzemelerin de saydam olarak üretilebileceği 1960'lı yıllarda ortaya çıkmıştır. CaWO_4 kristal çekme yöntemi kullanılarak üretilen ilk oksit yapılı malzeme olmuştur [1]. Tek kristal itriyum alüminyum garnet (YAG) ise ilk kez 1967 yılında Czochralski yöntemi kullanılarak üretilmiştir [2]. Böylece tek kristal saydam seramik malzemeler yüksek sıcaklık dayanımı, yüksek mukavemet ve kimyasal direnç gibi öne çıkan özelliklerinden dolayı kritik öneme sahip optik uygulamalarda kullanılmaya başlanmıştır.

Kristal çekmenin pahalı, çok uzun süreler gerektiren ve büyük çapta üretime uymayan bir proses olması nedeniyle araştırmacılar optik uygulamalarda kullanılan bu özel malzemeleri üretmek üzere farklı yollar aramışlardır. 1995 yılında Ikesue ve Furusato, tek kristal yöntemine göre çok daha ucuz olan ve bu yöntemle göre daha kısa süre gerektiren aynı zamanda kütle üretimine ve karmaşık şekilli üretime de imkan tanıyan bir yöntem olan katı hal reaktif sinterleme ile çok kristalli saydam seramiklerin üretimini gerçekleştirmişlerdir [3].

Çok kristalli saydam seramik malzemelerin üretimindeki bir diğer gelişime ise 1998 yılında Japon Konoshima Co. tarafından saydam YAG seramiklerinin üretiminde reaktif olmayan sinterleme yöntemi kullanılarak gösterilmiştir [4]. Bu yöntemle, kimyasal çöktürme yolu izlenerek elde edilen YAG nano tozunun slip döküm ile şekillendirilerek 1700°C 'nin üzerindeki sıcaklıklarda sinterlenmesiyle saydam YAG seramiklerinin üretimi gerçekleştirilmiştir.

Ikesue ve Furusato ile Konoshima Co. tarafından çok kristalli saydam seramikler üzerine yapılan bu çalışmalardan sonra itriyum oksit ve bazı nadir toprak elementlerinin oksitleri ve perovskit yapılı seramikler gibi çeşitli seramik malzemeleri saydam hale getirmek üzerine katı hal sinterleme tekniklerini kullanarak araştırmalara devam edilmiştir [5]. Kısa zamanda, çok kristalli saydam kızılötesi camlar, kızılötesi dome'lar (uçak ve füzelerin burun malzemeleri), ışık kaynakları, saydam zırhlar gibi kritik öneme

sahip optik uygulamalarda kullanılan malzemeler katı hal sinterleme yöntemleri ile üretilmeye başlanarak tek kristal olan muadillerinin yerini almaya başlamıştır [6].

Saydam oksit seramiklerin üretiminde kullanılan iki ana yol vardır. Bunlar, tek kademeli ve iki kademeli prosesler olarak tanımlanır. Reaktif sinterleme olarak da tanımlanan tek kademeli proses, oksit tozların uygun stokiyometride karıştırılması, şekillendirilmesi ve ısıtma işlemiyle tozlar arasında gerçekleşen kimyasal reaksiyonlar sonucunda istenilen bileşimin oluşturulması adımlarından oluşmaktadır. İki kademeli proses (reaktif olmayan sinterleme) ilk kademe olarak, istenilen bileşimdeki tozun kimyasal sentez yöntemlerinden biri ile sentezlenmesi, ikinci kademe olarak ise tozun şekillendirilmesi ve reaktif olmayan sinterleme ile sinterlenmesi aşamalarından meydana gelmektedir [5].

Saydam çok kristalli seramiklerin üretimindeki en büyük zorluklar, prosesten kaynaklanan numune içerisinde safsızlık kalması ve sinterleme işleminden sonra numunenin gözenekler ihtiva etmesidir. Numunede yüksek optik geçirgenlikler elde etmek ancak empüritelerin ve gözeneklerin minimum seviyede tutulması ile mümkündür. Aksi takdirde numunedeki safsızlıklar ve boşluklar ışık saçılma noktaları gibi davranıp gelen ışığın saçılmasına neden olacak ve numunenin optik geçirgenliğini düşürecektir. Eğer stokiyometri doğru şekilde kontrol edilmezse reaktif sinterleme sonucunda oluşabilecek ikincil fazlar da geçirgenliği düşürücü etki yapacaktır. Sonuç olarak, numunede yüksek optik geçirgenlik elde edebilmek için safsızlık ve boşluk içermeyen, homojen bir yapı elde etmek gerekmektedir [7].

Bu tez çalışması kapsamında; askeri, tıbbi ve sanayide önemli uygulama alanları bulunan çok kristalli saydam seramiklerden itriyum alüminyum garnet (YAG) malzemenin üretimi ve karakterizasyonu yapılmıştır. Al_2O_3 ve Y_2O_3 tozları kullanılarak şekillendirme ve sinterleme çalışmaları yapılmış, proses parametreleri-mikroyapı-özellik ilişkileri incelenmiştir. Tez çalışmasının amacı sinter sıcaklığı, süre, karıştırma tekniği ve sinter katkısının elde edilen YAG numunelerin özelliklerine (yoğunluk, sertlik, mikroyapı, optik geçirgenlik) etkilerini incelemek, anlamak ve yüksek geçirgenliğe sahip numunelerin proses koşullarını ortaya koymaktır.

2. GENEL KISIMLAR

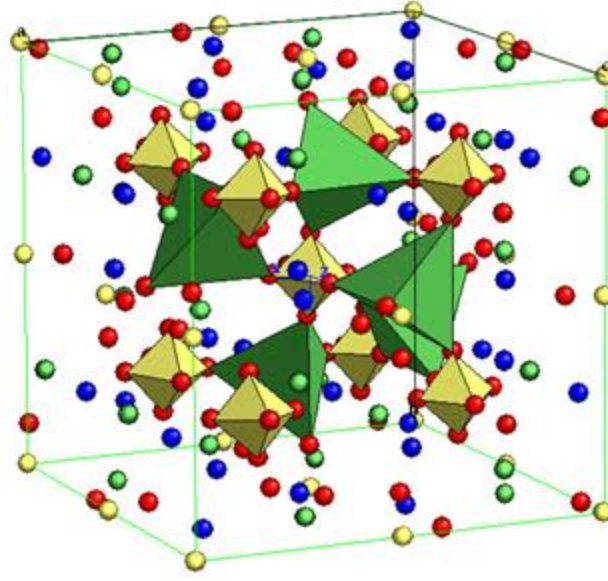
2.1. İTRİYUM ALÜMİNYUM GARNET (YAG)

İtriyum Alüminyum Garnet (YAG – Yttrium Aluminum Garnet), $Y_3Al_5O_{12}$ bileşiminde, yüksek sıcaklık dayanımına, yüksek kimyasal kararlılığa ve iyi mekanik özelliklere sahip seramik malzemedir. İtriyum Alüminyum Garnet'in fiziksel özellikleri **Tablo 2.1**'de verilmiştir [8, 9].

Tablo 2.1: YAG'ın fiziksel özellikleri [10].

Özellik	$Y_3Al_5O_{12}$
Kristal sistemi	Kübik
Yapı tipi	Garnet
Kafes sabiti	12.002 Å
Ergime noktası	1940 °C
Yoğunluk	4.56 g cm ⁻³
Vickers sertlik	12.8 GPa
Kırılma indisi	1.81
Elastik Modül	308 GPa

İtriyum alüminyum garnet, kübik garnet kristal yapısına sahip bir malzemedir [11]. Garnet yapısı ilk olarak 1926 yılında Menzer tarafından çözümlenmiştir [12]. Şekil 2.1'de verilen garnet yapısına göre $P_3Q_2(RO_4)_3$ garnet birim hücresi 8 molekülden oluşmaktadır. YAG yapısında P itriyum atomlarını, Q ve R ise alüminyum atomlarını ifade etmektedir. Böylece YAG'ın bileşik formülü $Y_3Al_2(AlO_4)_3$ şeklinde olmaktadır. Katyonlar P,Q ve R olarak belirtilmiştir ve bu katyonlar sırasıyla 8, 6 ve 4 oksijen tarafından kuşatılmıştır. Şekil 2.1'de verilen birim hücrede mavi Y^{3+} katyonlarını, sarı Al^{3+} katyonlarını, yeşil Al^{3+} katyonlarını, kırmızı O^{2-} anyonları temsil etmektedir [13].



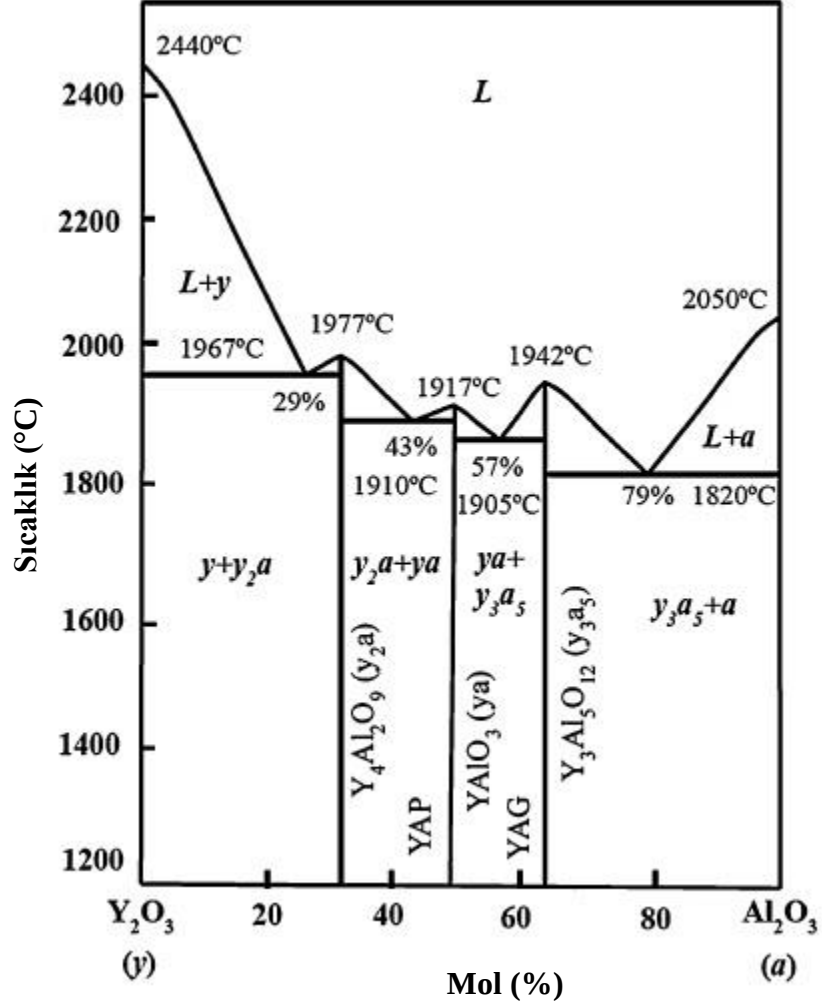
Şekil 2.1: Garnet kristal yapısı [14].

YAG'ın ergime noktası, değişik araştırma gruplarının çalışmalarında farklı sıcaklık değerlerinde rapor edilmiştir. Warshaw ve diğ. ve Abell ve diğ. tarafından YAG'ın ergime noktası 1970 °C olarak rapor edilmiştir [15, 16]. Toropov ve diğ. ve Mizuno ve diğ. tarafından ise YAG'ın ergime noktası 1930 °C olarak rapor edilmiştir [17, 18]. Caslavsky ve diğ. ise optik diferansiyel termal analiz yöntemini kullanarak yaptıkları çalışma sonucunda ergime noktasının 1940 ± 7 °C olduğunu gözlemlemişlerdir [19].

Yagi ve diğ., 2007 yılında YAG'ın ısı iletkenliğini, farklı sıcaklıklarda elastisite modülünü ve poisson oranını ölçmüştür. Oda sıcaklığında YAG'ın elastisite modülü 308 GPa, 1400 °C sıcaklıkta ise 264 GPa olarak rapor edilmiştir. Düşük sıcaklıklarda çok kristalli seramiklerin ısı iletkenliklerinin tane boyutuna bağlı olduğunu ve tane boyutu büyüdükçe ısı iletkenliğinin arttığını gözlemlemişlerdir. En yüksek ısı iletkenlikler ise 46, 39 ve 37 K'de 3, 4 ve 7.5 µm tane boyutlarındaki numuneler için 0.64, 0.99 ve 1.1 W/cm K değerlerinde rapor edilmiştir [20].

Şekil 2.2'de verilen $Y_2O_3 - Al_2O_3$ faz diyagramında görüldüğü üzere üç adet bileşik bulunmaktadır. Bunlar garnet yapısında olan YAG ($Y_3Al_5O_{12}$), perovskit yapıdaki YAP ($YAlO_3$) ve monoklinik yapıdaki YAM ($Y_4Al_2O_9$) bileşikleridir. Bileşikleri oluşturmak

için Y_2O_3 ve Al_2O_3 arasındaki stokiyometrik molar oranlar Tablo 2.2’de verilmiştir [16].



Şekil 2.2: Y_2O_3 – Al_2O_3 faz diyagramı [21].

Tablo 2.2: Y_2O_3 – Al_2O_3 arasında oluşan bileşikler için stokiyometrik molar oranlar [22].

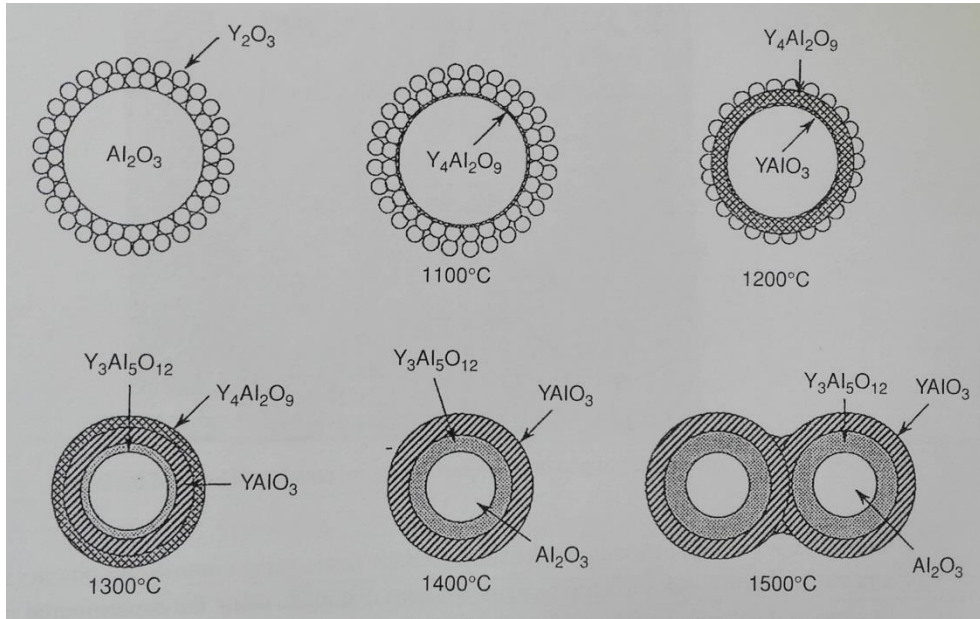
Bileşik	$Y_2O_3:Al_2O_3$ molar oranı
YAG	3:5
YAP	1:1
YAM	2:1

Kinsman ve diğ., 1994 yılında nanometre boyutlu Al_2O_3 ve Y_2O_3 tozlarının katı hal reaksiyonu sırasında faz dönüşüm reaksiyonlarını incelemişlerdir. Rapor edilen fazlar ve dönüşüm reaksiyonlarının başladığı ve tamamlandığı sıcaklıklar aşağıda verilmiştir [23].



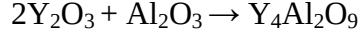
Katı hal reaksiyonu yönteminde reaksiyonların yanında verilen faz dönüşüm reaksiyonlarının gerçekleştiği sıcaklıklar, kullanılan tozların morfolojik yapısına bağlı olarak biraz değişebilmektedir [24].

İkesue ve diğ., Al_2O_3 ve Y_2O_3 tozlarının bilyeli öğütücüde öğütülüp, sprey kurutucuda kurutulması ile büyük Al_2O_3 partiküllerinin üzerinde küçük Y_2O_3 partiküllerinin biriktiğini varsayarak Şekil 2.3'de verilen sinterleme modelini oluşturmuşlardır. Sinterleme mekanizması, Y_2O_3 'ün kendisinin sinterlenmesi ve Y_2O_3 ve Al_2O_3 arasındaki difüzyon mekanizması ile sinterlenmesi olarak iki şekilde gerçekleşir.

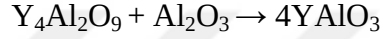


Şekil 2.3: Y_2O_3 ve Al_2O_3 toz karışımının sinterleme modeli [25].

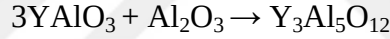
İkesue ve arkadaşlarının oluşturduğu bu modele göre Y_2O_3 ve Al_2O_3 tozlarının temas eden yüzeylerinde ilk olarak



faz dönüşüm reaksiyonu uyarınca $Y_4Al_2O_9$ (YAM – itriyum alüminyum monoklinik) fazı oluşmaktadır. Bu sırada Y_2O_3 'ün kendisi de sinterlenmektedir. Bu aşamada % 6 sinterleme büzülmesi gerçekleşir. Sıcaklık $1200\text{ }^{\circ}C$ 'ye yükseldiğinde katı hal reaksiyonu ilerlemeye devam ederek $Y_4Al_2O_9$ faz miktarı artar. Daha sonra Al_2O_3 ve $Y_4Al_2O_9$ faz sınırında



reaksiyonuna göre $YAlO_3$ (YAP – itriyum alüminyum perovskit) fazı oluşmaya başlar. Y_2O_3 $1300\text{ }^{\circ}C$ 'nin üzerinde tamamen reaksiyona girer. $YAlO_3$ fazı, $Y_4Al_2O_9$ fazının tükenmesi ile oluşur. $1400\text{ }^{\circ}C$ 'de partikül $YAlO_3$ ve Al_2O_3 fazından oluşur. Bu sıcaklığın üzerinde

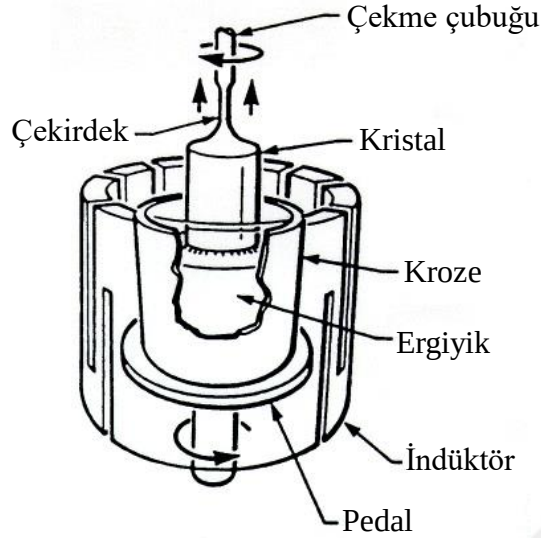


reaksiyonuna göre YAG fazı oluşmaya başlar [25].

2.2. YAG ÜRETİM YÖNTEMLERİ

2.2.1. Tek Kristalli YAG Üretimi

Czochralski yöntemi diğer bir adıyla “kristal çekme”, tek kristalli malzemeleri üretmede sıklıkla kullanılan bir yöntemdir [26, 27]. Bu yöntemle sıvı eriyikten kristal çekilir [28]. Czochralski yönteminin şematik gösterimi Şekil 2.4'de verilmiştir. Tek kristal olarak çekilecek olan malzeme platin, platin bazlı ya da iridyum krozedde ergitilir. Eriyik malzemeye temas ettirilen çekirdek kristal yavaşça çekilirken aynı zamanda da döndürülür. Czochralski yöntemi ile yarıiletken, elektronik ve optik endüstrilerinde kullanılmak üzere silisyum, galyum arsenür, indiyum fosfat ve kadmiyum tellür gibi malzemelerin tek kristal şeklinde üretimleri yapılmaktadır.



Şekil 2.4: Czochralski yönteminin şematik gösterimi [29].

2.2.2. Çok Kristalli YAG Üretimi

Çok kristalli saydam seramik üretmek üzere ilk çalışmalar Greskovich ve Wood [30], de With ve Dijk [31], Mulder ve de With [32] tarafından yapılmıştır. Bu çalışmalar sonucunda elde edilen YAG'ın optik geçirgenliği, optik uygulamalarda kullanmak için yetersiz kalmıştır [33].

İlk başarılı çok kristalli saydam YAG seramiği üretimi Ikesue ve Furusato [3] tarafından 1995 yılında gerçekleştirilmiştir. Ikesue ve Furusato, yüksek saflıkta Y_2O_3 ve Al_2O_3 tozlarını kullanarak elde ettikleri peletleri 1600 -1850 °C sıcaklıkta katı hal reaksiyonu yöntemi ile 5 saat süreyle vakum altında sinterleyerek çok kristalli YAG üretmeyi başarmıştır. Üretilen çok kristalli YAG'ın optik özelliklerinin, mikro sertliğinin ve termal iletkenliğinin, 1800 °C'de sinterlenmiş tek kristal YAG'a hemen hemen eşdeğer olduğu rapor edilmiştir.

Çok kristalli YAG seramiklerinin üretimi için iki farklı başlangıç hammaddesi kullanılmaktadır. Bunlar, doğrudan YAG tozu ve Y_2O_3 - Al_2O_3 toz karışımıdır.

2.2.2.1. YAG Tozu Üretimi

İtiryum alüminyum garnet tozlarını sentezlemek için sol-jel prosesi [34-36], birlikte çöktürme [11, 37, 38], jel yakma [39, 40], hidro-termal sentez [41, 42], solvo-termal sentez [43-46], gliko-termal sentez [47], Pechini [48], sitrat-nitrat yakma [49], poliakrilamid jel [50], sprey piroliz [51, 52] gibi farklı yöntemler kullanılmaktadır.

Fujioka ve diğ. [53] tarafından yapılan ve sol-jel yöntemi ile YAG sentezlenen çalışmada başlangıç kimyasalları olarak $\text{Al}[\text{O}(\text{CH}_3)\text{CHC}_2\text{H}_5]_3$ (Alüminyum tri-sekonder-bütoksit), $\text{Y}(\text{CH}_3\text{COO})_3 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ (itiryum asetat tetrahidrat) ve susuz 2-propanol kullanılmıştır. Alüminyum tri-sekonder-butoksit-2-propanol karışımı sulu itiryum asetat çözeltisine eklenmiştir. Karışımın 80 °C'ye ısıtılarak bir saat süreyle karıştırılmasının ardından karışım jelleşmiştir. Elde edilen jel kurutulduktan sonra organik safsızlıkların tamamen uzaklaştırılması için oksijen ortamında 800 °C'ye ısıtılarak 100 saat bu sıcaklıkta tutulmuştur. Bu işlemin ardından elde edilen tozlar 900-1400 °C'de sinterlenmiştir.

Manalert ve Rahaman [54], $\text{Al}(\text{OC}_4\text{H}_9)_3$ (alüminyum tri-sekonder-bütoksit) ve $\text{Y}(\text{O}_2\text{C}_2\text{H}_3)_3 \cdot x(\text{H}_2\text{O})$ (itiryum tri-asetat hidrat) kullanarak YAG tozlarını sol-jel prosesi ile üretmişlerdir. Alüminyum sekonder-bütoksit izo-bütanol ile seyreltilmiş ve ardından itiryum asetat ve su karışımı içerisine damlatılarak eklenmiştir. Karışım 80 °C'de yarım saat karıştırıldıktan sonra jelleşmiştir. Elde edilen jel kurutulup kalsine edildikten sonra YAG tozu üretimi gerçekleşmiştir.

Li ve diğ. [55], YAG tozunun birlikte çöktürme yöntemi kullanılarak üretimini alüminyum tri-nitrat ve itiryum tri-nitrat kullanarak gerçekleştirmişlerdir. İtiryum tri-nitrat çözeltisi, itiryum oksitin nitrik asit çözeltisi içerisinde ısıtılması ile hazırlanmıştır. Alüminyum tri-nitrat çözeltisi ise saf su içerisinde çözülmüştür. Karıştırılan nitratlara çöktürücü olarak amonyum bi-karbonat ve amonyum sülfat eklenmiştir. Süspansiyon 6 saat süreyle karıştırılmış ardından 12 saat beklenmiştir. Filtre edilen süspansiyon su ile yıkanmış ve 24 saat süreyle 70 °C'de kurutulmuştur. Kurutulmuş karışımın 1200 °C'de kalsine edilmesiyle YAG tozu elde edilmiştir.

Jel yakma prosesi kullanılarak yapılan YAG üretiminde Xia ve diğ. [56] tarafından başlangıç olarak alüminyum tri-nitrat ve itiryum tri-nitrat kimyasalları kullanılmıştır.

Kimyasallar YAG oluşumunu sağlayacak stokiyostride tartılarak saf suyun içerisinde çözündürülmüştür. Karışıma nitrat-sitrik asit mol oranı 1:1 olacak şekilde sitrik asit eklenmiştir. Karışım 60 °C’de sarı renge dönene kadar karıştırılmış daha sonra sıcaklık 80 °C’ye çıkartılarak jel elde edilinceye kadar karıştırmaya devam edilmiştir. Jel, 200 °C’ye ısıtılarak yanma prosesi gerçekleştirilmiştir. Elde edilen karışımın 800-1200 °C sıcaklıklarda kalsine edilmesi ile YAG tozu üretimi yapılmıştır.

Yang ve diğ. [41] hidro-termal çöktürme yöntemini kullanarak YAG sentezlemeyi başarmışlardır. Alüminyum tri-nitrat, itriyum tri-nitrat ve seryum tri-nitrat saf suda çözündürülmüştür. Üzerine üre eklenen çözelti teflon şişeye alınarak çelik bir kaba konulmuştur. Kap, 4 saat süreyle 100 °C’de ardından 20 saat süreyle 200 °C’de tutulmuştur. Çökelti filtrelenmiş ve saf su ile yıkanarak 100 °C’de kurutulmuştur. daha sonra 1200 °C’de yapılan kalsinasyon işlemi ile Ce:YAG tozları elde edilmiştir.

Zhang ve diğ. [44] tarafından itriyum alüminyum garnet tozu solvo-termal yöntem kullanılarak sentezlenmiştir. Başlangıç olarak, alüminyum tri-nitrat saf suda çözündürülmüştür. İttriym oksit tozu bir miktar nitrik asit çözeltisi ve su ile çözündürülmüştür. Çözeltiler YAG stokiyostride karıştırılmıştır. Amonyum hidroksit, karıştırılan nitrat çözeltisine damlatılarak eklenmiştir. Nitrat ve amonyum iyonlarının uzaklaştırılması için çökelti su ile yıkanmıştır. Yıkanan çökelti etil alkol içerisinde süspanse edilerek otoklava yerleştirilmiş ve 2-4 saat süreyle ısıtılmıştır. Elde edilen kristaller santrifüj edilmiş, saf su ile yıkanmış ve 80 °C’de 2 saat süreyle kurutulmuştur.

Inoue ve diğ. [47] alüminyum izopropoksit ve itriyum tri-asetatı 1.4-butanediol içerisinde süspanse etmişler ve otoklavda 300 °C’de 2 saat süreyle tutarak gerçekleştirdikleri deney sonucunda çok kristalli YAG elde etmeyi başarmışlardır.

Hassanzadeh-Tabrizi [48] Pechini yöntemini kullanarak Ce:YAG ürettiği çalışmada başlangıç maddeleri olarak alüminyum tri-nitrat, itriyum tri-nitrat, sitrik asit ve etilen glikol kullanmıştır. Nitrat tuzları 80 mL saf suda çözündürüldükten sonra çözeltiye sitrik asit ilave edilerek çözelti karıştırılmaya devam edilmiştir. Etilen glikol karışıma ilave edilerek 80 °C’de karıştırma işlemi jel kıvamı elde edilinceye kadar devam

etmiştir. Elde edilen jel 100 °C’de 24 saat süreyle kurutulmuş ardından kalsine edilmiştir.

Sitrat-nitrat yakma yöntemini kullanarak YAG üretiminde Roy ve diğ.[49] tarafından gerçekleştirilen çalışmada Y^{3+} ve Al^{3+} başlangıç maddesi olarak itriyum tri-nitrat ve alüminyum tri-nitrat kullanılmıştır. 50 mL izopropanol içerisine konulan itriyum ve alüminyum tri-nitratlar manyetik karıştırıcı ile karıştırılmıştır. Isıtma sırasında yanma reaksiyonunun gerçekleştirilmesi için karışıma sitrik asit ilave edilerek karıştırılmaya devam edilmiştir. Çözücü (izopropanol) 60 °C’de ısıtıcılı manyetik karıştırıcıda uçurulmuştur. Uçurma işlemi tamamlandığında elde edilen beyaz katı ürün 200 °C’de tutularak kahverengi katı ürün elde edilmiştir. Bu ürün kalsine edilerek YAG tozu elde edilmiştir.

Liu ve diğ. [50] tarafından itriyum oksit, alüminyum tri-nitrat, seryum tri-nitrat, N-metilen-bis-akrilamid, akrilamid ve amonyum persülfat maddeleri kullanılarak Ce:YAG tozları sentezlenmiştir. İtriyum oksidin nitrik asit ile 65 °C’de karıştırılması ile elde edilen çözeltiye alüminyum tri-nitrat ve seryum tri-nitrat eklenerek karıştırılmaya devam edilmiştir. Daha sonra çözeltiye N-metilen-bis-akrilamid, akrilamid ve amonyum persülfat maddeleri eklenerek 80 °C’de 2 saat karıştırmanın ardından jel elde edilmiştir. Bu jel kurutulduktan sonra tekrar ısıtılarak arta kalan su ve organik maddelerin buharlaşması sağlanmıştır. Takip eden kalsinasyon işlemi (800-1300°C) ile YAG tozlarının sentezi tamamlanmıştır.

Zhou ve diğ. [51] tarafından Eu:YAG tozlarının sprej piroliz yöntemiyle sentezi başlangıç malzemesi olarak itriyum oksit (Y_2O_3), evropiyum oksit (Eu_2O_3) ve alüminyum tri-nitrat nonahidrat ($Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$) kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Y_2O_3 ve Eu_2O_3 seyreltilmiş nitrik asit çözeltisinde çözündürülmüştür. Alüminyum tri-nitrat stokiyometrik orana göre eklenerek çözelti yarım saat süreyle karıştırılmıştır. Bu işlemi takiben sitrik asit mono-hidrat ve polietilenglikol (PEG) çözeltiye ilave edilerek 2 saat daha karıştırma işlemi sürdürülmüştür. Çözelti sprej kurutucu cihazından geçirilerek partiküller halinde elde edilmiştir. Bu partiküller 800-1200 °C’de 4 saat süreyle sinterlenerek YAG tozları elde edilmiştir.

2.2.2.2. Şekillendirme Yöntemleri

YAG tozlarının veya $Y_2O_3-Al_2O_3$ toz karışımının sinterlenmek üzere şekillendirilmesi için literatürde kullanılan yöntemler aşağıda verilmiştir.

- Kuru presleme – Soğuk izostatik presleme
- Slip döküm
- Jel döküm
- Şerit döküm
- Yüksek basınçlı döküm

Kuru presleme, seramik veya metal tozlarının hidrolik pres yardımıyla çelik bir kalıp içerisinde tek eksenli olarak preslenmesi ile şekillendirildiği yöntemdir [57]. Soğuk izostatik presleme ise sıvıların üzerlerine uygulanan basıncı her noktaya eşit olarak iletmesi prensibinden yararlanılarak havası alınmış bir plastik kalıp ya da poşet içerisine konulmuş tozların veya ham peletin sıvı içerisinde her noktadan eşit şekilde sıkıştırıldığı yöntemdir. YAG üretim prosesinde numunelere soğuk izostatik presleme genellikle kuru presleme işlemini takiben uygulanır. Li ve diğ. [58] uygun stokiometride tartılan oksit tozları bilyeli öğütücüde etil alkol ortamında sinterleme katkısı olarak tetraetil ortosilikat ile birlikte karıştırılıp kurutulduktan sonra kuru preste 15 mm'lik diskler halinde preslemişlerdir. Daha sonra elde edilen peletler soğuk izostatik pres cihazında 250 MPa basınç altında preslenmiştir. Organik bileşiği uçurmak amacıyla yapılan ön sinterleme işleminin ardından numunelerin vakum ortamında 20 saate kadar sinterlenmesi sonucunda YAG seramikleri üretilmiştir.

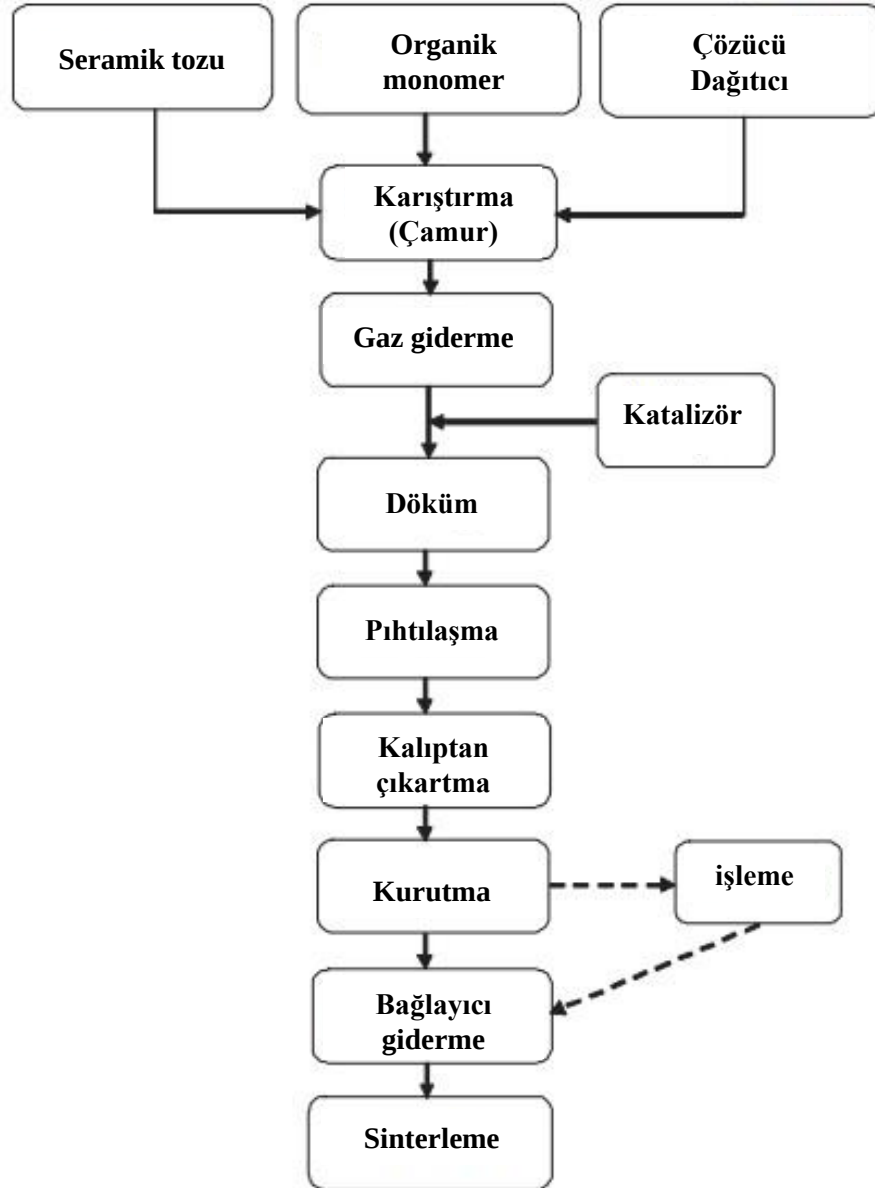
Ham numuneye uygulanan soğuk izostatik pres basıncının nihai olarak üretilen YAG seramiğinin optik geçirgenliğine etkisini incelemek amacıyla Esposito ve diğ. [7] tarafından 10 MPa basınç altında elde edilen ham peletlere 150 ila 400 MPa arasında değişen izostatik pres basınçları uygulanmıştır. Elde edilen numunelerin optik geçirgenlik değerleri ve yoğunlukları incelenmiş, optimum izostatik pres basıncının 250 MPa olduğu rapor edilmiştir.

Seramik malzemelerin şekillendirilmesinde sıklıkla kullanılan bir diğer yöntem olan slip döküm, literatürde koloidal proses olarak da geçer, genel olarak beş adımdan oluşmaktadır: (1) toz sentezi, (2) süspansiyon hazırlama, (3) şekillendirme, (4) çözücü uzaklaştırma, (5) yoğunlaştırma [59]. Süspansiyon hazırlama sentezlenmiş tozlar yerine doğrudan oksit tozların kullanımı ile de yapılabilir. Appiagyei ve diğ. [60] Al_2O_3 ve Y_2O_3 oksit tozlarını, bağlayıcı (polietilenglikol - PEG 4000), dağıtıcı (poliakrilik asit ve sitrik asit) ve sinter katkısı (tetraetil ortosilikat) kullanarak sulu karışımı (çamur) slip döküm yöntemiyle şekillendirmişlerdir. Kurutulan numuneler vakum sinterleme tekniği kullanılarak $1800\text{ }^{\circ}C$ 'de 16 saat süreyle sinterlendikten sonra YAG seramikleri elde edilmiştir.

Jel döküm ilk olarak Janney ve diğ. [61] tarafından Oak Ridge Ulusal Laboratuvarları'nda geliştirilmiştir. Yöntem, geliştirilmesinden bu yana alümina, zirkonya, SiC ve seramik köpükler gibi pek çok seramik malzemenin üretiminde kullanılmıştır [61-65]. Jel döküm, monomerlerin tepkimeye girerek 3 boyutlu polimer ağ yapısı oluşturmasıyla süspansiyon içerisinde askıda bulunan partikülleri dondurması prensibine dayanmaktadır [66]. Jel döküm yönteminin genel akış şeması Şekil 2.5'te gösterilmiştir. Slip döküm ile karşılaştırıldığında, jel döküm ile üretilen ham parçaların daha homojen ve daha yüksek ham yoğunluğa sahip olması yöntemin en önemli avantajları olmasının yanında karmaşık şekilli parçaların üretilmesi, ucuz ekipman, ucuz kalıp maliyeti, seri üretime uygunluğu gibi faktörler bu yöntemin diğer avantajlarıdır [67].

Qin ve diğ. [68] tarafından jel döküm yöntemini kullanarak YAG seramiklerinin üretiminin rapor edildiği çalışmada başlangıçta Al_2O_3 ve Y_2O_3 tozları, dağıtıcı olarak izobütlen, jelleştirme ajanı olarak maleik anhidrit (Isobam) ve sinter katkısı olarak tetraetil ortosilikat malzemeleri kullanılmıştır. Farklı katı yükleme oranlarında ve farklı jelleştirme ajanı miktarlarında hazırlanan çamurların reolojik özellikleri (zeta potansiyeli, viskozite) incelenmiştir. Farklı miktarlarda Isobam içeren çamurlarla üretilen nihai ürünlerin mikroyapıları numunelerin parlatılan yüzeylerinden incelenmiştir. Çamuru hazırlamak için ağ. % 68-74 katı yükleme oranındaki karışımlar bilyeli öğütme cihazında ağ. % 0.3-1 aralığında Isobam ilavesi ile yarım saat süreyle karıştırılmıştır. 10 Pa vakum altında gaz giderme işlemi yapılan çamurlar, jelleştirilmek

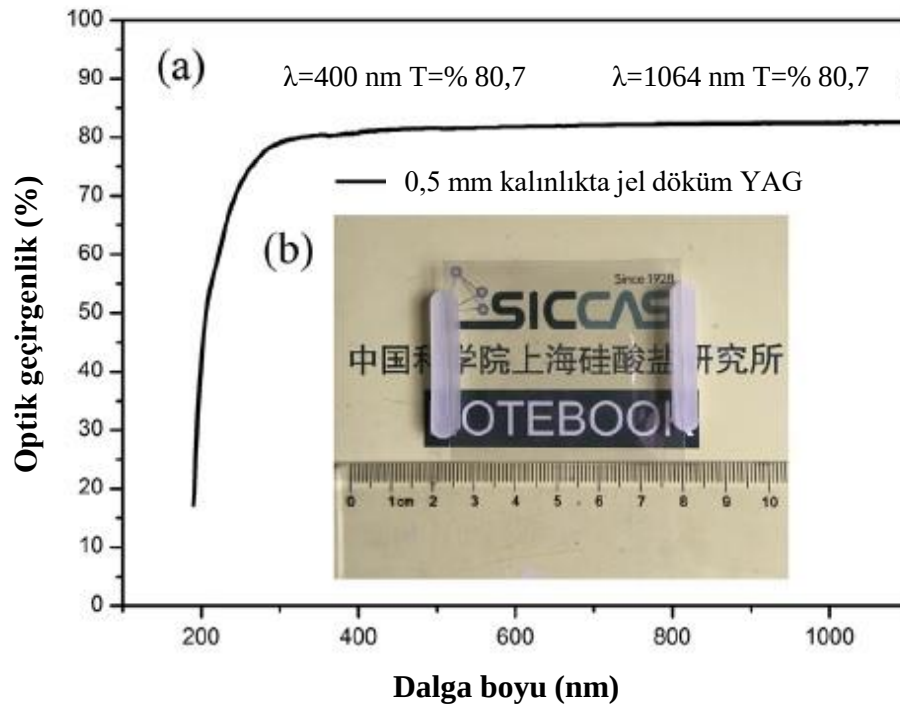
üzere plastik kalıplara dökülmüştür. Kalıptan çıkarılan numuneler oda sıcaklığında 24 saat süreyle kurutulduktan sonra 600 °C’de 2 saat bekletilerek organikler uçurulmuştur. Vakum ortamında (10^{-3} Pa) 1780 °C’de 6 saat süreyle sinterlenen numunelere 1450 °C’de 10 saat tavlama yapılarak saydam YAG seramikleri üretilmiştir.



Şekil 2.5: Jel dökme yöntemi akış şeması [66].

Sun ve diğ. [69] ince tabaka halindeki YAG seramiklerini jel döküm şekillendirme ve reaktif sinterleme yöntemlerini kullanarak üretmişlerdir. Al_2O_3 ve Y_2O_3 tozları ve sinter katkısı olarak tetraetil ortosilikat bilyeli öğütücüde karıştırılmış, kurutulmuş ve elekten

geçirilmiştir. Çamurlar ağırlık % 75 katı yükleme oranında olacak şekilde hazırlanmıştır. Tozlar ve dağıtıcı (ağırlık % 0.5 poliakrilik asitin amonyum tuzu) saf su içerisinde karıştırılmıştır. Karışıma 10 g su için 0.6 g etilen glikol diglisarit eter (EGDGE) ve 1.5 g tetra etilen pentamin (TEPA) eklenmiştir. Çamur bilyeli öğütücü cihazında oda sıcaklığında iki saat süreyle karıştırılmıştır. Cam kalıplara döküm yapılmadan önce çamur gaz giderme işlemine tabi tutulmuştur. Çamurlar kalıplarda jelleşme için 6 saat süreyle tutulmuş ardından kalıplardan çıkarılmıştır. Numuneler oda sıcaklığında 48 saat kurutulmuş daha sonra 110 °C’de 48 saat süreyle tutulmuştur. Bağlayıcı giderme işlemi 1000 °C’de 2 saat süreyle yapılan numuneler 1720 °C’de 6 saat boyunca vakum ortamında sinterlenmiştir. 1400 °C’de 5 saat tavlama işleminin ardından **Şekil 2.6**’da gösterilen ince tabaka saydam YAG seramikleri elde edilmiştir.



Şekil 2.6: (a) 1720°C’de 6 saat sinterlenmiş 0.5 mm kalınlıktaki numunenin geçirgenliği. (b) YAG numunesinin resmi [69].

Şerit döküm yöntemi ince film malzeme şekillendirmek için uygun bir yöntemdir [70]. Yöntem ilk olarak 1947 yılında Howwatt tarafından seramik malzeme hazırlamak

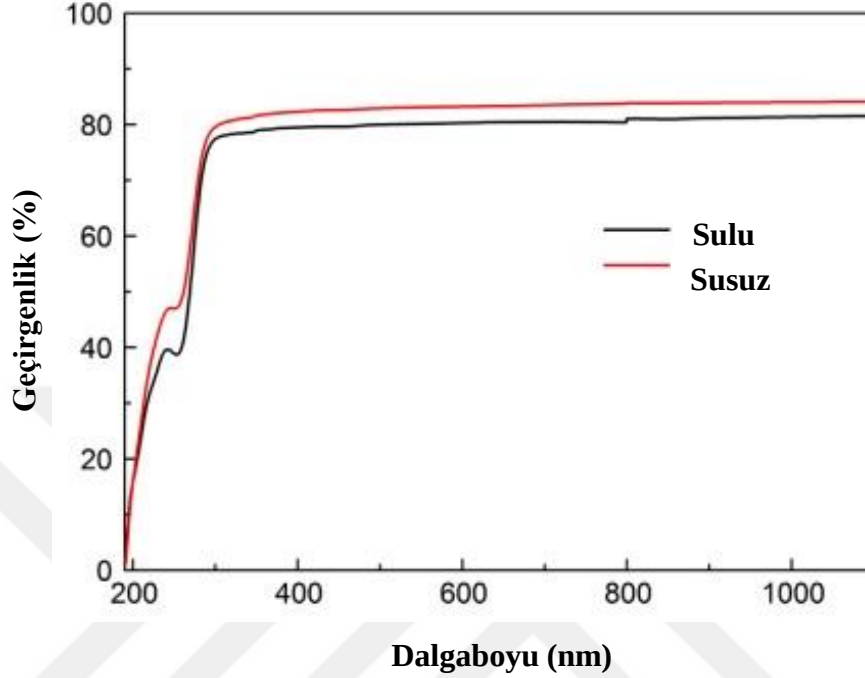
amacıyla kullanılmıştır [71]. Şerit döküm yöntemi elektronik endüstrisi, katı oksit yakıt hücresi ve yapı malzemeleri gibi pek çok alanda farklı türden seramik malzemelerin üretiminde kullanılmaktadır [72-76]. Şerit döküm yöntemi temel olarak seramik tozlarının bir çözücü içerisinde dağıtıcı, bağlayıcı ve plastikleştirici ilavesi ile dağıtılarak sabit veya hareketli bir yüzey üzerine dökülmesi prensibine dayanır. Döküm kalınlığı 30-1000 μm arasında değişebilmektedir [77]. Döküm kalınlığının ayarlanmasında “doktor bıçağı” adı verilen ekipman kullanılır.

Şerit döküm yöntemi, kullanılan çözücü tipine göre ikiye ayrılmaktadır: sulu şerit döküm ve susuz şerit döküm. Şerit döküm için genellikle organik çözücüler kullanılmaktadır [78, 79]. Bununla beraber seramik tozuna ve şeridin kalınlığına bağlı olarak alkoller, ketonlar ve hidrokarbonlar gibi organik çözücüler de kullanılabilir. Ancak bu çözücüler düşük kaynama noktasına sahip olmalarının yanında zehirleyici ve yanıcı olabilmektedirler [77].

Ba ve diğ. [80] saydam YAG seramiklerini sulu (aqueous) şerit döküm yöntemini kullanarak üretilmişlerdir. Başlangıç malzemeleri olarak Y_2O_3 , Al_2O_3 , tetraetil ortosilikat, MgO, poliakrilik asit (PAA), polivinil alkol (PVA), polietilen glikol (PEG 400) kullanılmıştır. Y_2O_3 ve Al_2O_3 stokiometrik orana göre tartılmış ve saf su içerisinde sinter katkılarıyla beraber 8 saat süreyle karıştırılmıştır. Daha sonra bağlayıcı (PVA) ve plastikleştirici (PEG 400) ilave edilen çamur 24 saat süreyle bilyeli öğütücüde karıştırılmıştır. Çamur elekten geçirilmiş ve vakum sistemiyle hava boşlukları giderilmiştir. Doktor bıçağının döküm boşluğu 300-500 μm ve döküm hızı 10 mm/s olacak şekilde ayarlanarak döküm yapıldıktan sonra şeritler 36 saat oda sıcaklığında kurumaya bırakılmıştır. Kurutulan şeritler yuvarlak şekilli bir kalıp kullanılarak kesilmiştir. Numunelere 600 °C’de 48 saat süreyle bağlayıcı giderme işlemi uygulandıktan sonra ham şeritler 200 MPa basınç altında soğuk izostatik pres cihazında 2 dakika süreyle preslenmiştir. Elde edilen numuneler reaktif sinterleme yöntemi kullanılarak 10^{-3} mbar vakum altında 1750 °C’de 10 saat sinterlenmiştir.

Ba ve diğ. [70] bir diğer çalışmalarında saydam YAG seramikleri üretiminde sulu ve susuz şerit döküm yöntemlerini karşılaştırmalı olarak çalışmışlardır. Susuz şerit döküm yöntemi ile üretilen şeritte boşlukların daha az olmasının bir sonucu olarak bu

numunenin sinterleme sonrasında ölçülen optik geçirgenlik değeri sulu yöntemle üretilen YAG numunesinden Şekil 2.7’de görüldüğü üzere daha yüksektir.



Şekil 2.7: Sulu ve susuz yöntemle üretilen numunelerin optik geçirgenlik değerleri [70].

2.2.2.3. Sinterleme Yöntemleri

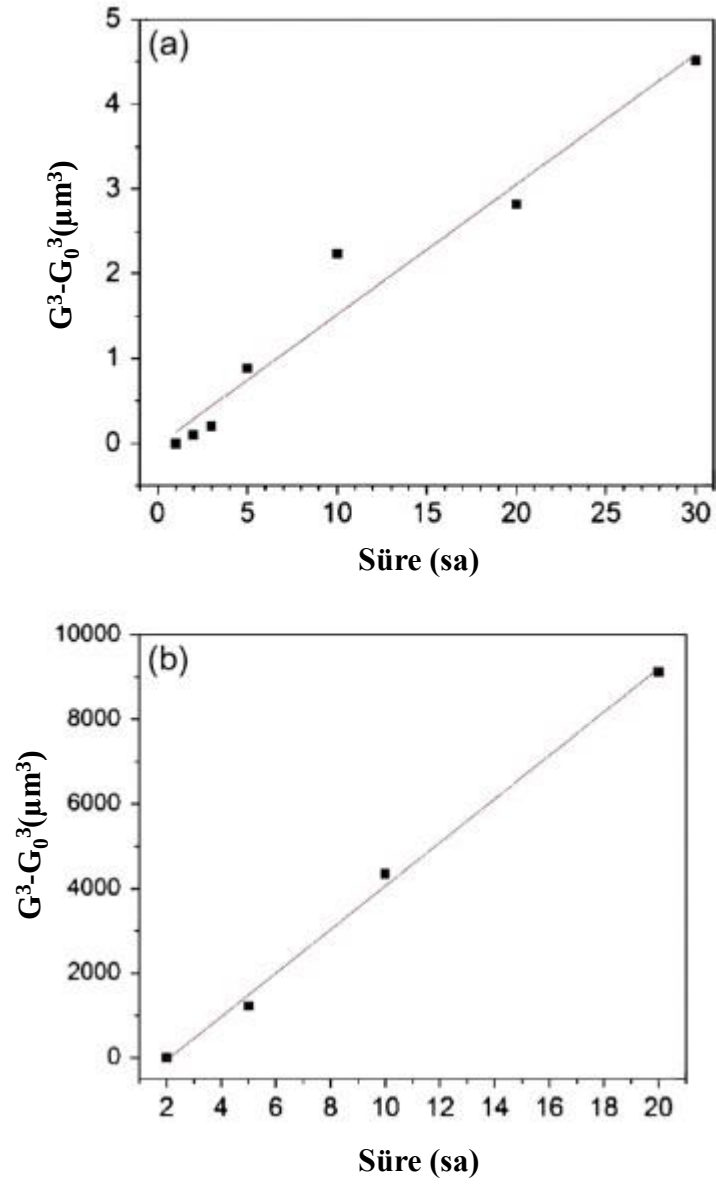
İkesue ve Furusato’nun oksit tozlarını vakum altında sinterleyerek, oksit tozlarının katı hal reaksiyonu sonucunda YAG seramiklerini elde etmesinin ardından araştırmacılar İkesue ve Furusato gibi vakum sinterleme tekniğini ve diğer sinterleme tekniklerini kullanarak YAG seramiklerini elde etmişlerdir. Literatürde oksit tozlarının katı hal reaksiyonu için kullanılan sinterleme teknikleri şu şekildedir:

- Vakum Sinterleme
- Sıcak Presleme
- Mikrodalga Sinterleme
- Spark Plazma Sinterleme
- Sıcak İzostatik Presleme
- İki Aşamalı Sinterleme

Zhou ve diğ. [81], farklı miktarlarda dopant kullanarak hazırladıkları oksit toz karışımlarının vakum altında sinterlenmesiyle katı hal reaksiyonu sonucu YAG seramiklerini üretmişlerdir. Liu ve diğ. [24] tarafından vakum sinterleme yöntemi kullanılarak oksit tozlarının katı hal reaksiyonu sonucunda YAG seramikleri elde edilmiştir. Yapılan çalışmada faz dönüşümleri, mikroyapı değişimleri, yoğunlaşma ve tane büyüme kinetiği incelemeleri yapılmıştır. Tane büyüme kinetiği mertebesi (n) ve hız sabitini (k) belirlemek amacıyla aşağıdaki formül kullanılmıştır:

$$G^n - G_0^n = kt \quad (2.1)$$

Denklemde G , t anındaki ortalama tane boyutunu ve G_0 ise her sıcaklık için tane boyutunun başlangıç değerini ifade etmektedir. Tane büyüme kinetiği modelinde saf YAG'da katı hal kütle transferinin olduğu durumda $n = 2$, sıvı faz kütle transferinin olduğu durumda $n = 3$ olarak alınmaktadır [82, 83]. Liu ve diğ. tane büyümesinin çalışılan sıcaklıklarda difüzyon kontrolünde gerçekleştiği kabul ederek tane büyüme kinetiği mertebesi için 3 değeri kullanılmıştır. Şekil 2.8'de 1500 °C ve 1730 °C'de sinterlenmiş YAG seramiklerinin tane büyüme kinetik eğrileri verilmiştir.



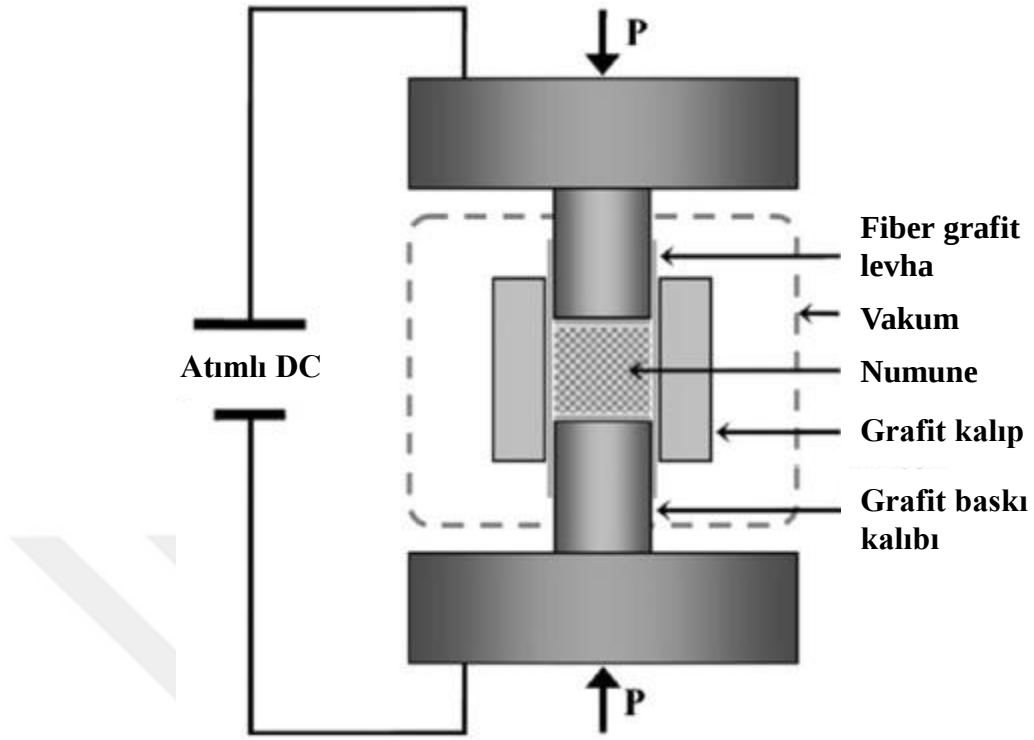
Şekil 2.8: $G^3 - G_0^3 = kt$ değişimi. (a) 1500 °C ve (b) 1730 °C [24].

1500 °C ve 1730 °C için k değerleri eğrilerin eğiminden sırasıyla $4.27 \times 10^{-23} \text{ m}^3/\text{s}$ ve $1.43 \times 10^{-19} \text{ m}^3/\text{s}$ olarak hesaplanmıştır. 1500 °C ile 1730 °C arasındaki tane büyümesi için aktivasyon enerjisi Arrhenius bağıntısı kullanılarak hesaplanmıştır:

$$\ln(k) = \frac{-E_a}{RT} + \ln(k_0) \quad (2.2)$$

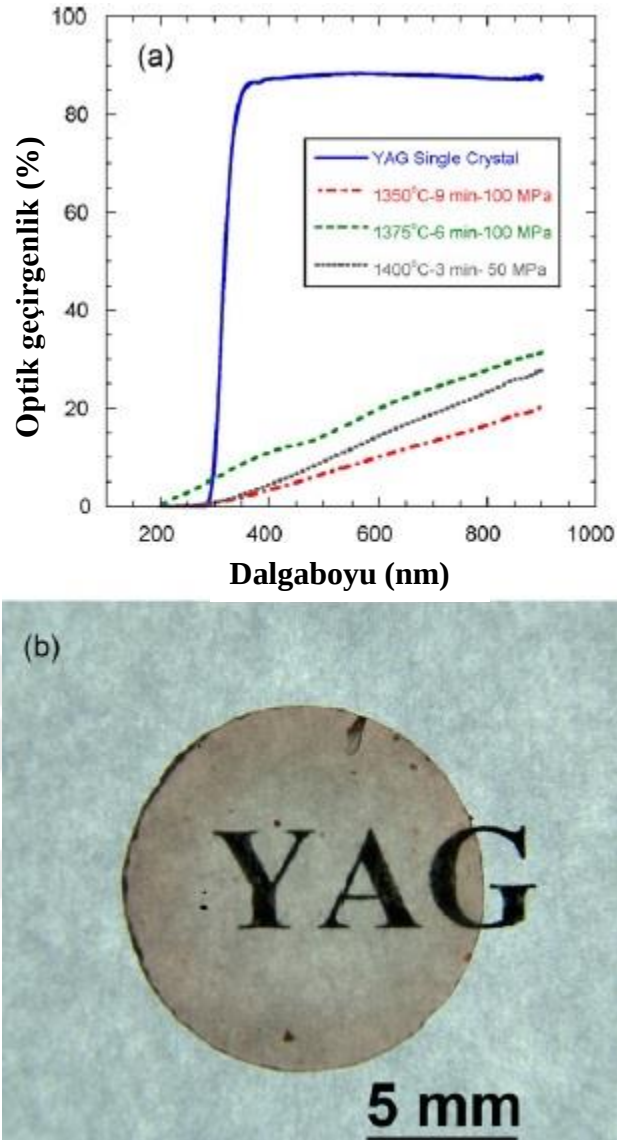
k tane büyüme kinetiği hız sabiti, E_a görünür aktivasyon enerjisi, R gaz sabiti, T sıcaklık ve $\ln(k_0)$ bir sabiti ifade etmektedir. YAG'ın tane büyümesi aktivasyon enerjisi 1042 KJ/mol olarak önerilmiştir.

Sinterleme yöntemlerinden bir diğeri ise Spark Plazma Yöntemi'dir. Şekil 2.9'da verilen spark plazma şematik gösteriminde yöntemin prensibi açıklanmıştır [84]. Grafit baskı kalıpları arasına gerilim uygulandığında yoğun akımın grafit baskı kalıpları arasında atlama yaparak numune içerisinden geçmesi sağlanır. Spark plazma yönteminin sıcak pres ve sıcak izostatik pres yöntemlerine göre avantajı tozların yoğunlaşmasının kısa sürede tamamlanmasıdır [85]. Spark plazma yönteminde yoğunlaşma prosesi üç aşamada gerçekleşir [86]. Toz partiküllerinin sıkıştırılması ilk aşamadır. Difüzyona bağlı olarak taneler arasında boyun oluşumu ve tane büyümesi ikinci aşama olarak tanımlanır. Son aşama ise gözeneklerin giderilmesidir. Proses süresince uygulanan basınç ve ısıtma hızı gibi parametreler yoğunlaşmaya etki etmektedir [87]. Literatürde spark plazma yöntemi kullanılarak elde edilen diğer malzemeler: saydam alümina [88], YAG [89, 90], Y_2O_3 [91], ZrO_2 [92], Lu_2O_3 [93], müllit [94], MgO [95], AlN [96], saydam hidroksiapatit (HAp) [97]. Bunlarla beraber spark plazma yöntemi lantanyum dope edilmiş kurşun zirkonat stanat titanat (PLZSnT) [98] gibi antiferroelektrik seramiklere, $PbZrO_3$ - $PbTiO_3$ - $Pb(Zn_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ [99] gibi ferroelektrik seramiklere ve lantanyum dope edilmiş kurşun zirkonat titanat (PLZT) gibi [100] piezoelektrik seramiklere uygulanabilmektedir.



Şekil 2.9: Spark plazma yönteminin şematik gösterimi [84].

Chaim ve diğ. [90] nano kristal YAG tozlarına spark plazma yöntemini (SPS) 100 MPa basınç altında 1375 °C sıcaklıkta 3 dakika süreyle uygulayarak teorik yoğunlukta polikristal YAG seramiklerini elde etmeyi başarmışlardır. Nano kristal YAG tozları 12 mm çapındaki grafit kalıba doldurulmuştur. Isıtma başlamadan önce kalıp içerisindeki tozlara 100 MPa değerinde bir ön basınç uygulanmıştır ve bu basınç ısıtma ve bekleme süreleri boyunca uygulanmaya devam edilmiştir. İlk olarak sıcaklık 3 dakika içerisinde 600 °C'ye çıkarılmış daha sonra sinterleme sıcaklığına ulaşılıncaya dek 100 °C/dk ısıtma hızında ısıtma işlemine devam edilmiştir. Elde edilen numunelerin optik geçirgenlik ölçümleri ve 100 MPa basınç altında 1400 °C sıcaklıkta 3 dakika sinterlenen bir numunenin görüntüsü Şekil 2.10'da verilmiştir.



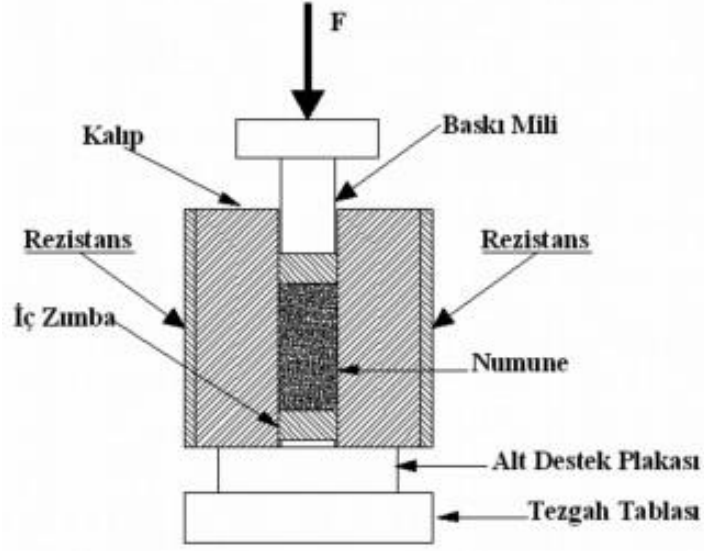
Şekil 2.10: (a) Değişik spark plazma sinterleme koşullarında YAG numunelerinin görünür ışık dalga boylarındaki geçirgenlik değerleri. (b) Spark plazma yöntemi ile üretilen numunenin görünümü [90].

Mikrodalga sinterleme yöntemini kullanarak saydam seramik üretmeye yönelik ilk çalışmalar 1995-1996 yılları arasında Fang ve diğ. [101] tarafından yürütülmüştür. Daha sonra saydam Al_2O_3 , ALON ve alüminyum magnezyum spinel ve yarı saydam AlN malzemeleri mikrodalga sinterleme yöntemi kullanılarak başarıyla üretilmiştir [102].

Mikrodalga sinterleme yönteminde de malzemenin mikrodalgayı absorbe etme özelliğinden yararlanılmaktadır. Mikrodalga sinterleme prosesinde ısıtma işlemi elektromanyetik dalganın absorbe edilerek ısı enerjisine dönüştürülmesi ile gerçekleştirilir. Bu proseste malzeme, yüzeyden ısıtma yapılan geleneksel yöntemin aksine içerden ısınmaktadır. Mikrodalga yöntemiyle ısıtma işlemi geleneksel yöntemde enerji transferi işlemine göre çok hızlı gerçekleşmektedir [103].

Esposito ve diğ. [104] mikrodalga sinterleme yöntemi kullanılarak Yb:YAG seramiklerinin üretimini gerçekleştirmiştir. Al_2O_3 , Y_2O_3 ve Yb_2O_3 tozları kullanılarak hazırlanan numuneler mikrodalga gücü 0.05 kW'tan 6 kW'a yavaşça çıkartılarak sinterlenmiştir. Mikrodalga sinterleme yöntemi ile üretilen numuneler, vakum altında katı hal reaksiyonu yöntemi ile üretilen aynı miktarda iterbiyum dope edilmiş YAG numuneleri ile mikroyapısal ve optik geçirgenlik özellikleri açısından karşılaştırılmıştır.

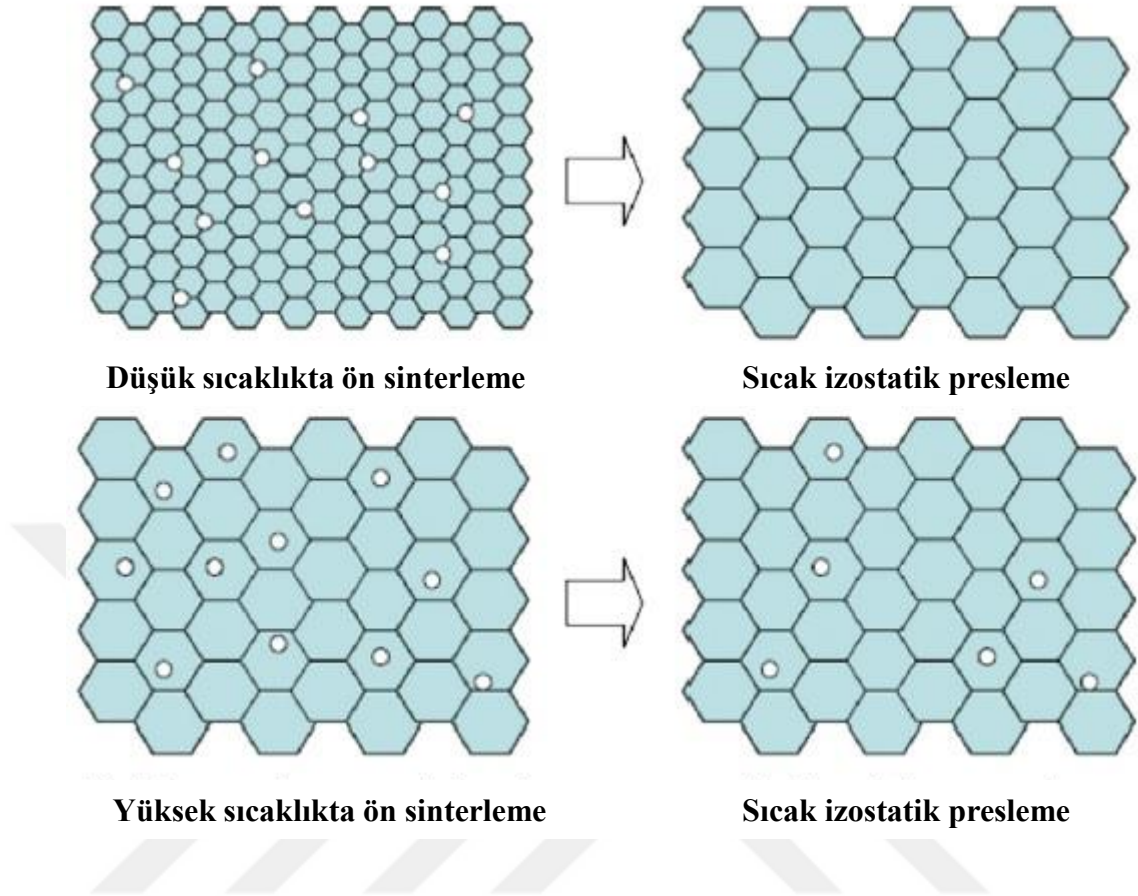
Sıcak pres, ısı ve tek eksenli basıncın aynı anda uygulanarak tozların şekillendirildiği bir toz metalürjisi yöntemidir. Şekil 2.11'de yöntemin prensibi verilmiştir [105]. Streck ve diğ. [106] sıcak presleme tekniğini kullanarak neodimyum dope edilmiş YAG seramiklerini üretmişlerdir. Cook ve diğ. [107] sıcak pres yöntemini kullanılarak saydam $MgAl_2O_4$ seramiklerini üretilmişlerdir. Zych ve Brecher [108], Y_2O_3 ve Al_2O_3 tozlarını kullanarak 1750 °C'de 4 saat süreyle 300 atm basınç altında sıcak pres yöntemi ile saydam YAG seramiklerini üretmişlerdir. Liu ve diğ. [109] tarafından saydam YAG seramikleri, birlikte çöktürme kimyasal sentez yöntemi kullanılarak hazırlanan YAG tozunun 450 °C sıcaklık ve 5 GPa basınç koşulları altında yarım saat süreyle sinterlemesi işleminin ardından üretilmiştir. Fedyk ve diğ. [110] tarafından elde edilen neodimyum dope edilmiş YAG seramiklerinin üretiminde sıcak pres sinterleme tekniği kullanılmıştır.



Şekil 2.11: Sıcak pres yönteminin şematik gösterimi [105].

Sıcak izostatik presleme, metal ve seramik malzemelerin yapısındaki gözenekleri en aza indirmek ve bu malzemelerin yoğunluklarını mümkün olan en yüksek seviyeye çıkarmak için kullanılır [6]. Sıcak izostatik pres cihazında ısı ve izostatik pres basıncı eş zamanlı olarak uygulanmaktadır. Cihazda, kapalı kaptaki gazın üzerine uygulanan basıncı kabın her noktasına eşit olarak iletmesi prensibinden yararlanılmaktadır. Cihazın haznesi içerisindeki gaz basıncı, içeriye gaz pompalanması ile artırılmaktadır. Bununla beraber sıcaklık arttıkça ısınan gazın genişmesi prensibine göre hazne içerisindeki sıcaklık arttıkça da gaz basıncı artmaktadır.

Sıcak izostatik presleme yöntemi yüksek maliyetli bir yöntem olduğu için genellikle proseslerin son aşamasını teşkil eder. Saydam seramik proseslerinde yapı içerisindeki ışık saçılma noktaları olan gözenekleri gidermek ve malzemenin teorik yoğunluğuna ulaşarak daha yüksek optik geçirgenlik elde etmek amacıyla kullanılmaktadır. Şekil 2.12’de açıklanan modele göre sıcak izostatik pres işlemi düşük sıcaklıkta ön sinterlenen ve yapıda gözenek içeren numunelere uygulandığında işlem sonucunda mikroyapıdaki gözeneklerin giderildiğini göstermektedir. Yüksek sıcaklıkta ön sinterlenen numunelerde ise sıcak izostatik presleme sonrasında dahi yapıda bir miktar gözenek kaldığı görülmektedir.



Şekil 2.12: Sıcak izostatik pres yöntemi ile gözenek giderme işleminin mikroyapı modeli [111].

Sıcak izostatik presleme yöntemi saydam Al_2O_3 [112] ve spinel MgAl_2O_4 [113] gibi zırh seramiklerinin üretiminde kullanılmaktadır. Bununla beraber Y_2O_3 [114], Sc_2O_3 [115] ve Lu_2O_3 [116] gibi seskioksitlerin üretiminde, saydam $\alpha\text{-SiAlON}$ [117], saydam MgO [118], saydam $\text{La}_2\text{Hf}_2\text{O}_7$ (LHO) [119] seramiklerinin üretiminde kullanılır.

Zhang ve diğ. [120] vakum sinterleme tekniğini kullanarak ürettikleri YAG seramiklerinin optik özelliklerini iyileştirmek için yaptıkları çalışmada sıcak izostatik pres cihazını kullanmışlardır. Bu çalışmada vakum sinterleme ile elde edilen numuneler 1700°C sıcaklıkta ve 200 MPa basınç altında 2 saat süreyle sıcak izostatik pres yöntemiyle sinterlenmiştir. Suarez ve diğ. [121] kimyasal yöntemle sentezledikleri neodimyum dope edilmiş YAG tozunu 1650°C ve 1680°C sıcaklıklarda sinterledikten sonra elde ettikleri numunelere sıcak izostatik pres cihazında $1650\text{-}1700^\circ\text{C}$ sıcaklıklarında 200 MPa basınç altında sinterleme işlemi uygulamışlardır.

İki aşamalı sinterleme tekniği ilk olarak Wei ve Wang [122] tarafından kullanılmıştır. Yöntem, numunenin ilk olarak yüksek bir sıcaklığa ısıtılması ardından daha düşük bir sıcaklığa soğutularak bu sıcaklıkta beklenmesi prensibine dayanmaktadır. Chen ve diğ. [123] iki aşamalı sinterleme yöntemini YAG seramiklerinin üretiminde kullanan ilk araştırma grubudur. Chen ve diğ. [123] tarafından birlikte çöktürme yöntemi ile üretilen YAG tozlarından hazırlanan numuneler ilk olarak 1800 °C'ye kadar ısıtılmış daha sonra maksimum sıcaklıkta bekleme yapılmadan 1550 °C'ye soğutularak bu sıcaklıkta 10 saat süreyle bekleme yapılmıştır. Yapılan çalışma sonucunda %43'e varan optik geçirgenlik değerine sahip saydam YAG seramikleri üretilmiştir. Li ve diğ. [124] iki aşamalı sinterleme yöntemini kullanarak neodimyum dope edilmiş YAG seramiklerini üretmişlerdir. Bilyeli öğütme, kurutma, hidrolik presleme, soğuk izostatik presleme kademelerinden sonra elde edilen numuneler vakum sinterleme yöntemiyle 1.0×10^{-3} Pa vakum altında 1800 °C'ye çıkartıldıktan sonra 1550-1750 °C'lerdeki farklı ikinci bekleme sıcaklıklarına soğutularak 1 ila 8 saat süreyle sinterlenmişlerdir. 1800-1680 °C'de 8 saat süreyle sinterlenen numunenin yoğun ve gözeneksiz yapıda olduğu rapor edilmiştir. Literatürde iki aşamalı sinterleme yöntemi kullanılarak üretilen diğer numunelere saydam Sc_2O_3 [115], saydam Y_2O_3 [125, 126], saydam Al_2O_3 [127] örnek olarak verilebilir.

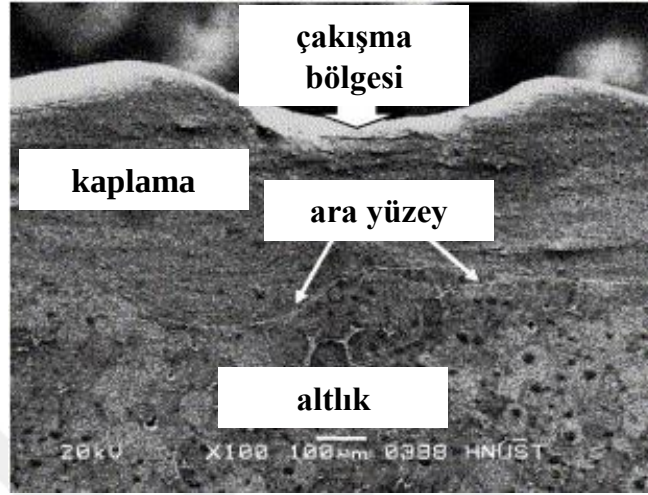
2.3. UYGULAMA ALANLARI

YAG, sahip olduğu düşük sürünme hızı, yüksek sıcaklık dayanımı ve yüksek kimyasal direncinden dolayı yüksek sıcaklık dayanımına sahip yapısal malzeme gerektiren uygulamalarda, elektronik cihazlar için refrakter kaplamalarda ve değişik uygulamalar için ışık kaynağı olarak kullanım alanı bulmaktadır [8].

2.3.1. Kaplama Uygulamaları

Wang ve diğ. [128] uçak, otomotiv ve elektronik endüstrilerinde düşük yoğunluk, yüksek rijitlik ve iyi işlenebilirlik gibi özelliklerinden dolayı sıklıkla kullanılan magnezyum alaşımlarının kaplanmasında YAG kullanılmıştır. Dökümü yapılan magnezyum alaşımlı parçaların yapısında gözenekler ve kusurlar oluşabilmektedir. Bu hatalar parçanın dayanımı ve ömrünü azaltmaktadır. Aynı zamanda magnezyum alaşımlı parçalar kolaylıkla çizilebilmekte ve düşük dayanımlarından dolayı hasar

görebilmektedir. Bu durumun önüne geçebilmek adına magnezyum alaşımlı parçaların üzerine yüksek dayanıma sahip YAG seramik kaplaması uygulanmaktadır. Magnezyum alaşımı üzerine lazer kaplama yöntemi ile yapılan kaplama Şekil 2.13'te gösterilmiştir.



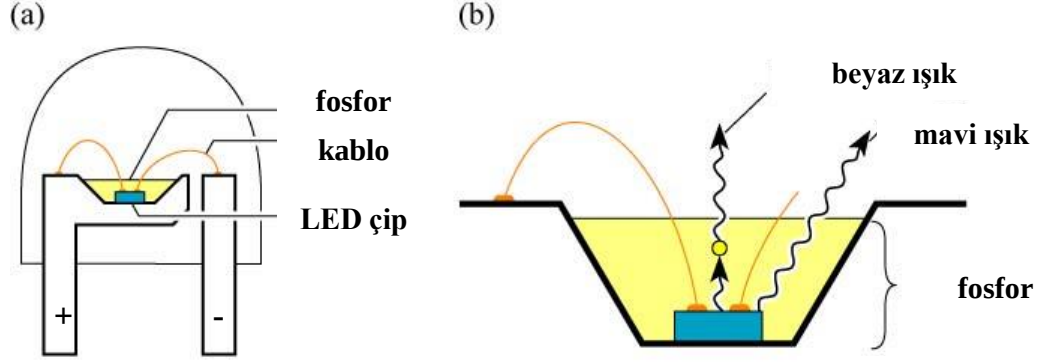
Şekil 2.13: Magnezyum üzerinde YAG seramik kaplama kesit görüntüsü [128].

Termal bariyer kaplamalar, 1970'ten günümüze gaz türbin parçalarını korumak amacıyla kullanılmaktadır. İttriya ile Stabilize Edilmiş Zirkonya termal bariyer kaplama uygulamalarında en yaygın olarak kullanılan malzemedir. Bu kaplamalar, altlarındaki malzemeye ısı transfer olmasını engellemek amacıyla kullanılmaktadır. İlk olarak Padture ve Klemens [129], YAG'ın termal bariyer kaplama olarak kullanılabileceğini göstermiştir. Su ve diğ. [130] tarafından yapılan çalışmada ise çok katmanlı YAG/YSZ termal bariyer kaplama uygulaması yapılmıştır.

2.3.2. Işık Yayan Diyot (LED) Uygulamaları

Fosfor, ultraviyole ışık ya da elektron demeti gibi bir radyasyona maruz kaldığında ışık saçan madde olarak tanımlanmaktadır. YAG'ın ışık yayan diyot (LED) uygulamalarında kullanılabilmesi için genellikle nadir toprak elementleri başta olmak üzere farklı elementlerle doplanmış olması gerekmektedir [6]. Seryum dope edilmiş YAG, ticari beyaz ışık yayan diyot (WLED) uygulamalarında en yaygın olarak kullanılan maddedir [131]. Beyaz ışık yayan diyotun çalışma prensibi Şekil 2.14'te gösterilmiştir. GaN ve InGaN gibi nitrür esaslı yarı iletkenin yaydığı mavi ışık fosforun uyarılarak sarı ışık

yaymasını sağlar. İnsan gözü sarı ve mavi ışığın karışımını beyaz ışık olarak algılamaktadır [132].



Şekil 2.14: (a) LED yapısı. (b) mavi LED çipinin ve fosforun yaptığı ışımaya [133].

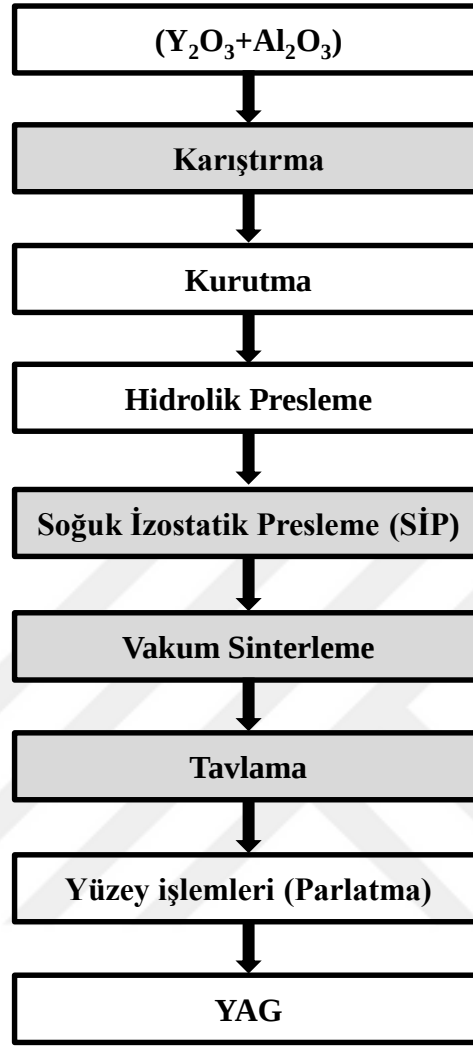
3. MALZEME VE YÖNTEM

3.1. KULLANILAN MADDELER

Deneysel çalışmalarda Skyspring firmasından satın alınan % 99,99 saflıktaki Y_2O_3 ve % 99,99 saflıktaki Al_2O_3 tozları kullanılmıştır. Y_2O_3 ve Al_2O_3 tozlarının faz analizleri ve tane boyut analizleri yapılmıştır. Sigma-Aldrich firmasından satın alınan % 99,8 saflıktaki etil alkol, tozların öğütme-karıştırma kademesinde kullanılmıştır.

3.2. YÖNTEM

Çok kristalli saydam İtiryum Alüminyum Garnet (YAG) seramiklerinin üretimi için toz presleme ve sinterleme teknikleri kullanılmıştır. **Şekil 3.1** mevcut tez çalışmasında kullanılan proses akış şemasını göstermektedir. Akış şeması esas itibarıyla sinter öncesi işlemler, sinterleme, sinter sonrası işlemler ve karakterizasyon adımlarından oluşmaktadır. **Şekil 3.1**'de verilen proses akış şemasında koyu renkle belirtilen “Karıştırma”, “Soğuk İzostatik Presleme”, “Sinterleme” ve “Tavlama” adımlarının optimizasyon çalışmaları yapılmıştır. Gerçekleştirilen deneysel çalışmaların planları bir sonraki başlık olan “Deney Planları” altında açıklanmıştır. Çalışmalarda kullanılan cihazlar ve ekipmanlar da yine bu başlık altında tanıtılmıştır. Karakterizasyon çalışmalarında kullanılan cihazlar “Karakterizasyon Teknikleri” başlığı altında verilmiştir.



Şekil 3.1: YAG üretimi için proses akış şeması.

3.3. DENEYSEL PLANLAMA

3.3.1. Tozların Karıştırılması

Tüm toz karışımları için, reaksiyon 3.1'e göre Y_2O_3 ve Al_2O_3 tozları molce 3:5 oranında $Y_3Al_5O_{12}$ fazını oluşturacak stokiyometride tartılmıştır.



Oksit tozlarının (toplam ağırlık 40 g) karıştırma işlemleri Retsch marka PM 100 model gezegen tipi bilyeli öğütücü cihazında gerçekleştirilmiştir. Karıştırma işlemi bilyeli öğütücü cihazının zirkonya kaplı kavanozu içerisinde zirkonya bilyeler kullanılarak uygulanmıştır. Kavanozun içerisine, tartılan tozlar, zirkonya bilyeler ve saf etil alkol

konulduktan sonra kavanoz cihaza yerleştirilmiş ve 100 rpm'de karıştırma işlemi yapılmıştır. Kavanoz içerisinde toz, etil alkol ve zirkonya bilye oranı 1:3:2 şeklindedir. Bazı toz karışımlarda SiO_2 sinter katkısı olarak kullanılmıştır.

3.3.2. Toz Karıştırma Süresinin Etkisi

YAG fazı, sinterleme sırasında Al_2O_3 ve Y_2O_3 tozları arasında gerçekleşen katı hal reaksiyonu sonucunda elde edileceğinden tozların homojen karıştırılması önemlidir. Tozların karıştırma süresinin sinterleme sonrasında nihai ürün özelliklerine etkisini incelemek amacıyla **Tablo 3.1**'de verilen deney planı yapılmıştır.

Oksit toz karışımının karıştırma işlemleri Retsch bilyeli karıştırıcı için Bölüm 3.3.1.'de verilen koşullar altında yapılmıştır. Karıştırma tekniğinin ürün özelliklerine etkisini incelemek amacıyla da Turbula marka farklı bir karıştırıcı kullanılmıştır. Turbulada karıştırma işlemi ise tozların, etil alkolün ve bilyelerin polietilen kaba konulmasıyla gerçekleştirilmiştir. Toz karışımı ile etil alkolün oranı 1:2'dir. Polietilen kap içerisine topaklanmayı önlemek amacıyla üç adet bilye atılmıştır.

Her iki karıştırma tekniği için karıştırma süresinin etkisini incelemek amacıyla diğer parametreler sabit tutulmuştur. Bu parametreler **Tablo 3.1**'de verilmiştir. Karıştırma işlemi sonunda kavanoz içerisindeki oksit toz karışımı ve etil alkolden oluşan süspansiyon behere alınarak etüve konulmuştur. Etüvde etil alkolün kaynama noktasından daha düşük bir sıcaklık olan 75 °C sıcaklık seçilerek süspansiyondan etil alkol uçurulmuştur. Kurutma işleminin ardından toz karışımı hidrolik preste 150 MPa basınç altında preslenerek elde edilen ham peletlere 300 MPa'da soğuk izostatik presleme yapılmıştır. Ham peletler 1700 °C'de 5 saat süreyle sinterlenmiştir.

Tablo 3.1: Karıştırma süresi deney planı.

Karıştırma Türü ve Süresi (sa)		Sabit Deney Parametreleri
Bilyalı değirmen	Turbula	
0,5	0,5	
4	4	Hidrolik pres : 150 MPa
8	8	SİP : 300 MPa
16	-	Sinterleme : 1700°C, 5 sa
24	24	Tavlama : 1375°C, 10 sa

3.3.3. Soğuk İzostatik Presleme Basıncının Etkisi

Soğuk izostatik presleme (SİP) basıncının sinter yoğunluğuna etkisini incelemek ve optimum basıncı tespit etmek amacıyla **Tablo 3.2**'deki deney planı oluşturulmuştur. Bu plana göre 150 MPa basınç altında hidrolik presle elde edilen ham peletler 200 MPa, 300 MPa ve 400 MPa SİP basınçlarında preslenmiştir. Soğuk izostatik presleme için Quintus marka cihaz kullanılmıştır.

SİP basıncının etkisinin sinter yoğunluğuna etkisini incelerken sabit tutulan deney parametreleri **Tablo 3.2**'de verilmiştir. Çalışmanın bu kısmında oksit tozlarına sinter katkısı eklenmiştir. Karıştırma ve karıştırma sonrası kurutma işlemleri daha önce verilen koşullar altında yapılmıştır. Kurutulan toz karışımı 800 °C'de 1 saat süreyle kalsinasyon işlemine tabi tutulmuştur. Elde edilen ham peletler (5 g) 1700 °C'de 5 saat sinterlenmiştir.

Tablo 3.2: SİP basıncı deney planı.

SİP Basıncı (MPa)	Sabit Deney Parametreleri
200	Karıştırma : 8 sa, 100 rpm Hidrolik pres : 150 MPa
300	Sinterleme : 1700°C, 5 sa Tavlama : 1375°C, 10 sa
400	

3.3.4. Sinterleme Sıcaklığının Etkisi

Sinterleme sıcaklığının sinter katkılı ve katkısız nihai ürünlerin yoğunluk, optik geçirgenlik, tane boyutu gibi özelliklerine ve yapıdaki gözenek miktarına etkisini incelemek amacıyla oluşturulan deney planı ve sabit tutulan deney parametreleri **Tablo 3.3**'te verilmiştir. Bu plana göre, numuneler seçilen üç farklı sıcaklıkta sinterlenmiş ve sinterleme işlemi sonrasında yoğunluk ölçümleri, faz analizleri, SEM analizleri ve optik

geçirgenlik ölçümleri yapılmıştır. Toz karışımların hazırlama işlemleri yukarıda verilen şartlarda yapılmıştır.

Tablo 3.3: Sinterleme sıcaklığı deney planı.

Sinterleme Sıcaklığı (°C)		Sabit Deney Parametreleri	
Katkısız	Katkılı		
1500	1500	Karıştırma	: 8 sa, 100 rpm
		Hidrolik pres	: 150 MPa
1600	1600	SİP	: 300 MPa
		Sinter Süresi	: 5 sa
1700	1700	Tavlama	: 1375°C, 10 sa

3.3.5. Sinterleme Süresinin Etkisi

Sinterleme süresinin nihai ürünün özelliklerine etkisini incelemek amacıyla **Tablo 3.4**'de verilen deney planı oluşturulmuştur. Sinter katkılı ve sinter katkısı içermeyen numuneler aynı anda sinterlenmiştir. Böylece sinter katkısının artan sinterleme süresiyle mikroyapıya ve numune geçirgenliğine etkileri görülmek istenmiş aynı zamanda eşit süre sinterlenen sinter katkılı ve katkısız numuneler arasındaki farkın incelenmesi amaçlanmıştır. Toz karışımların hazırlama işlemleri Bölüm 3.3.1.'de verilen şartlarda yapılmıştır. Ham peletler belirlenen sürelerde 1700 °C sıcaklıkta sinterlenmiştir.

Tablo 3.4: Sinterleme süresi deney planı.

Sinterleme Süresi (sa)	Sabit Deney Parametreleri	
1		
3	Karıştırma	: 8 sa, 100 rpm
	Hidrolik pres	: 150 MPa
5	SİP	: 300 MPa
10	Sinter Sıc.	: 1700°C
17	Tavlama	: 1375°C, 10 sa

3.3.6. Tavlama Sıcaklığının Etkisi

Ham peletlerin vakum ortamında sinterlenmesinin ardından tavlama işlemi uygulanmıştır. Tavlama işlemi, 1375-1600 °C sıcaklık aralığında tavlama süresi sabit tutularak yapılmıştır. Sinter katkılı toz karışımları Bölüm 3.3.1.'de verilen şartlara göre hazırlanmıştır. Ham numuneler 1700 °C'de 20 saat sinterlenmiştir. Numuneler sinterlendikten sonra **Tablo 3.5**'te belirtilen farklı sıcaklıklarda açık atmosferde 10 saat süreyle tavlanaştır.

Tablo 3.5: Tavlama sıcaklığı deney planı.

Tavlama Sıcaklığı (°C)	Sabit Deney Parametreleri
1375	Karıştırma : 8 sa, 100 rpm
1450	Hidrolik pres : 150 MPa
1525	SİP : 300 MPa
1600	Sinterleme : 1700°C, 20 sa
	Tavlama Süresi : 10 sa

3.4. KARAKTERİZASYON TEKNİKLERİ

3.4.1. Partikül Boyutu Analizleri

Toz hammaddelerde partikül boyutu analizleri Malvern Zetasizer – Nano ZS marka cihaz kullanılarak gerçekleştirilmiştir.

3.4.2. XRD Analizleri

XRD analizleri Shimadzu marka, XRD-6000 model cihazda yapılmıştır. Analiz, 2-70 ° arasında 2 °/dk hızında, 0.154051 nm dalga boyuna sahip Cu-K α radyasyonu kullanılarak gerçekleştirilmiştir.

3.4.3. Taramalı Elektron Mikroskobu Analizleri

Tozların partikül boyutlarını, sinterlenen numunelerin mikroyapılarını (tane boyutu, şekil, gözenek) incelemek amacıyla JEOL marka JSM-6335F model taramalı elektron mikroskobu kullanılmıştır. Numuneler taramalı elektron mikroskobuna yerleştirilmeden önce kesitlerinden parlatma işlemine tabii tutulmuş ardından tane sınırlarını açığa

çıkarmak amacıyla 1450 °C’de 1 saat süreyle termal olarak dağlanmıştır. Son olarak numuneler % 80 altın - % 20 paladyum ile kaplandıktan sonra incelenmek üzere cihaza yerleştirilmiştir.

Numunelerde tane boyut analizleri kesme metoduyla yapılmıştır. Eşit uzunlukta düz çizgiler taneleri gösteren mikroyapı üzerinde çizilmiştir. Her çizgiyi tam olarak kesen toplam tane sayısı çizgi sayısına bölünerek ortalama tane sayısı bulunmuştur. Çizgi uzunluğu ortalama tane sayısına bölünerek ortalama tane büyüklüğü bulunmuştur. Gerçek ortalama tane büyüklüğü elde edilen ortalama tane büyüklüğü değerinin mikroyapıdaki lineer büyötmeye bölünmesiyle hesaplanmıştır.

3.4.4. Yoğunluk Ölçümleri

Ham pelet yoğunlukları numunelerin boyutları ve ağırlıkları ölçölerek hesaplanmıştır. Sinterlenmiş numunelerin yoğunluk ölçümleri Precisa marka, XB 220A model 4 dijital hassas terazi cihazında Arşimet Prensibine göre destile su kullanılarak oda sıcaklığında yapılmıştır. Aynı şartlarda hazırlanmış iki numune için ölçümler üç kere yapılmış, hesaplamalarda bu ölçümlerin ortalama değerleri kullanılmıştır. Arşimet Prensibine göre yoğunluk Bağıntı 3.2’ye göre hesaplanmıştır.

$$\rho = \frac{m_{kuru}}{(m_{kuru} - m_{su})} \rho_{su} \quad (3.2)$$

ρ : Yoğunluk

ρ_{su} : Suyun yoğunluğu

m_{kuru} : Numunenin kuru ağırlığı

m_{su} : Numunenin sudaki ağırlığı

3.4.5. Parlatma İşlemi

Parlatma işlemleri ATM marka, SAPHIR 550 model parlatma cihazında gerçekleştirilmiştir. İşlem, zımparalama ve parlatma olmak üzere iki kademedey uygulanmıştır. Zımparalama kademesinde 20 N yük altında sırasıyla 125, 74, 40 µm’lik zımparalama diskleri kullanılmıştır. Daha sonra 30 ve 10 µm’lik diskler kullanılarak parlatma işlemi bitirilmiştir.

3.4.6. Sertlik Ölçümleri

Sertlik ölçümleri Qness marka Q10 A+ model mikrosertlik cihazı kullanılarak yapılmıştır. 136 °'lik elmas piramitin 1 kg'lık test yükü altında numunede bıraktığı izin köşegen uzunlukları ölçülerek Bağıntı 3.3 ile Vickers sertlikleri (VS) hesaplanmıştır. Her bir numune için üçer ölçüm alınarak bu ölçümlerin aritmetik ortalama değerleri sertlik değeri olarak kaydedilmiştir.

$$VS = \frac{1,854P}{d^2} \quad (3.3)$$

P : yük

d : köşegen uzunluklarının aritmetik ortalaması

3.4.7. Optik Geçirgenlik Ölçümleri

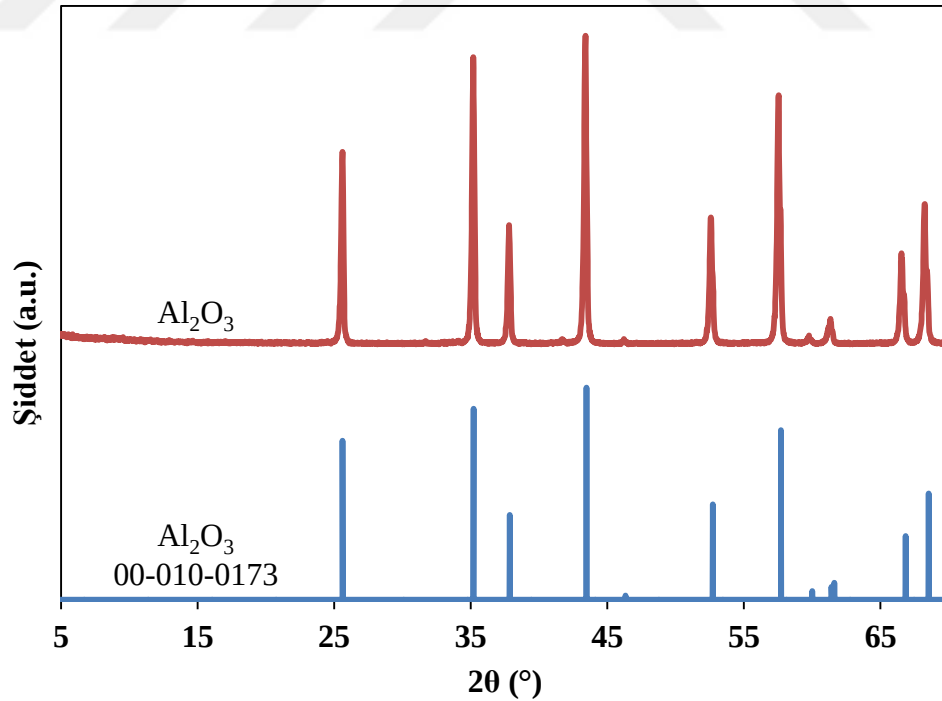
Optik geçirgenlik analizleri Perkin Elmer marka Lambda 750S model UV-Visible spektrometre cihazında yapılmıştır. Ölçümler 200-1100 nm dalgaboyu aralığında, iki yüzeyinden parlatılmış numuneler üzerinde gerçekleştirilmiştir.

4. BULGULAR

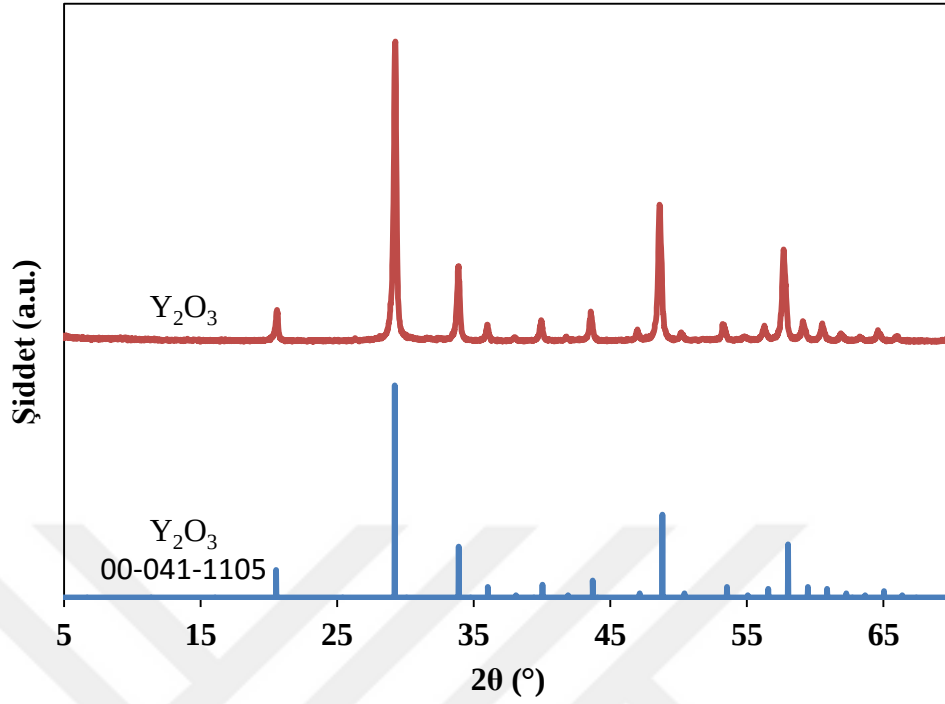
4.1. HAMMADDELERİN KARAKTERİZASYONU

4.1.1. Faz Analizleri

Bu çalışmada kullanılan Y_2O_3 ve Al_2O_3 tozlarına ait XRD analiz sonuçları **Şekil 4.1** ve **Şekil 4.2**'de verilmiştir. Bahsi geçen tozların XRD paternlerinin α - Al_2O_3 (00-010-0173) ve Y_2O_3 'e (00-041-1105) ait standart paternlerde verilen difraksiyon açıları ve pik şiddetleriyle uyum içinde olduğu gözlenmiştir. Her iki tozda herhangi bir ikincil faz gözlenmemiştir. Y_2O_3 tozuna ait yüksek açılı piklerde $CuK\alpha_1$ - $CuK\alpha_2$ pikleri ayrı ayrı görülmemekte olup bu durum küçük partikül boyutundan kaynaklanmaktadır. Al_2O_3 tozuna ait pik genişliklerinin daha düşük olduğu gözlenmiştir. Bundan dolayı alümina partiküllerinin daha kaba olduğu sonucuna varılmıştır.



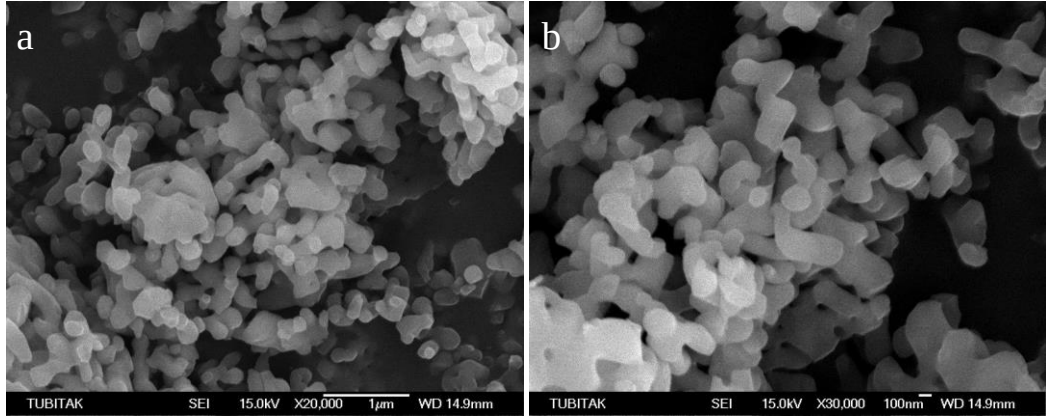
Şekil 4.1: Al_2O_3 tozuna ait XRD paterni.



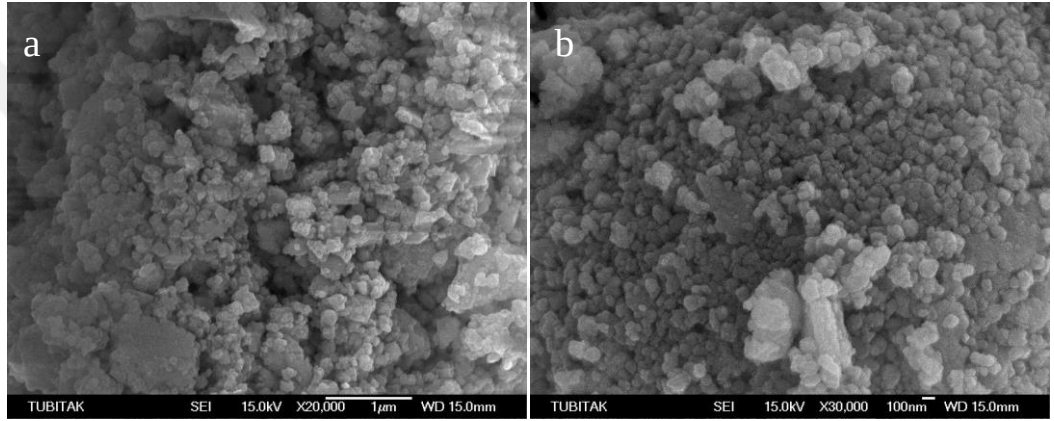
Şekil 4.2: Y_2O_3 tozuna ait XRD paterni.

4.1.2. Morfoloji Analizleri

Şekil 4.3 ve Şekil 4.4'te düşük ve yüksek büyütmelemlerde elde edilmiş sırasıyla $\alpha-Al_2O_3$ ve Y_2O_3 tozlarına ait SEM görüntüleri verilmiştir. Şekil 4.3'ten görüldüğü üzere $\alpha-Al_2O_3$ esas olarak ince partiküllerden (200 nm civarında) oluşmaktadır. Partiküller arasında az sayıda boyutu 1 μm üzerinde olan tozların üretim prosesinden kaynaklanan sinterlenmiş kaba partiküllerde görülmektedir. Y_2O_3 tozuna ait görüntü (Şekil 4.4) ise $\alpha-Al_2O_3$ 'e kıyasla daha küçük partikülleri göstermektedir. Şekil 4.4 b'nin alt orta kısmında görüldüğü gibi küçük partiküllerin bir arada olduğu az sayıda kümeleşmeler de mevcuttur.



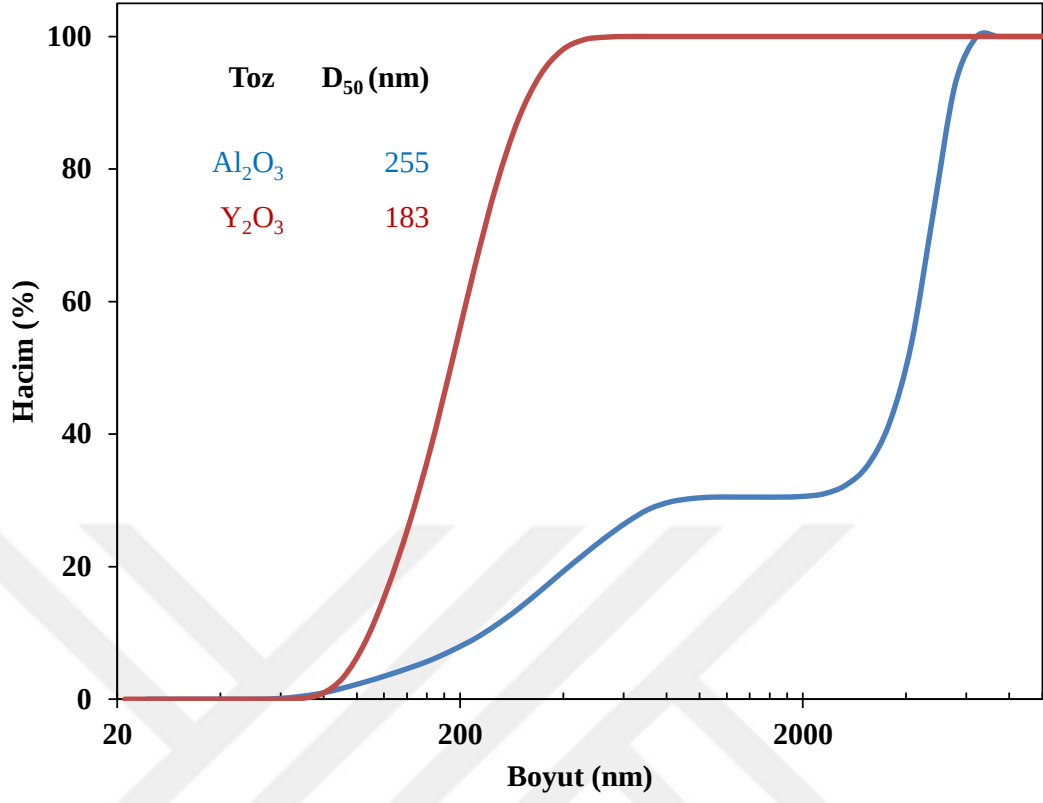
Şekil 4.3: Al_2O_3 tozuna ait SEM görüntüleri.



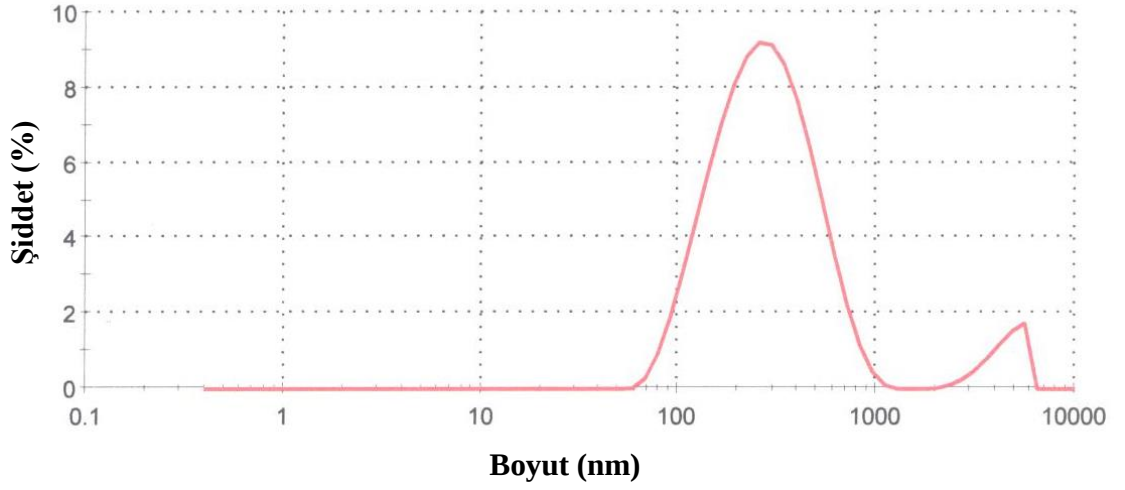
Şekil 4.4: Y_2O_3 tozuna ait SEM görüntüleri.

4.1.3. Partikül Boyutu Analizleri

Şekil 4.5’de $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ ve Y_2O_3 tozlarına ait partikül boyut dağılım eğrileri (hacim – boyut diyagramları) görülmektedir. $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ tozuna ait partikül boyut dağılım eğrisi bimodal karakter göstermektedir. Ortalama partikül boyutları 255 nm ölçülmüştür. Ancak az sayıda 1 μm ’den büyük partiküllerin tozda mevcut olduğu şiddet-boyut dağılımı eğrisinden anlaşılmıştır (Şekil 4.6). Y_2O_3 tozuna ait ortalama partikül boyutunun 180 nm, partikül boyut dağılımının ise 70-600 nm aralığında olduğu görülmektedir. Her iki toza ait partikül boyut analiz sonuçlarının SEM sonuçlarıyla uyum içinde olduğu ifade edilebilir.



Şekil 4.5: Y_2O_3 ve Al_2O_3 tozlarında hacim-partikül boyut dağılımı eğrileri.

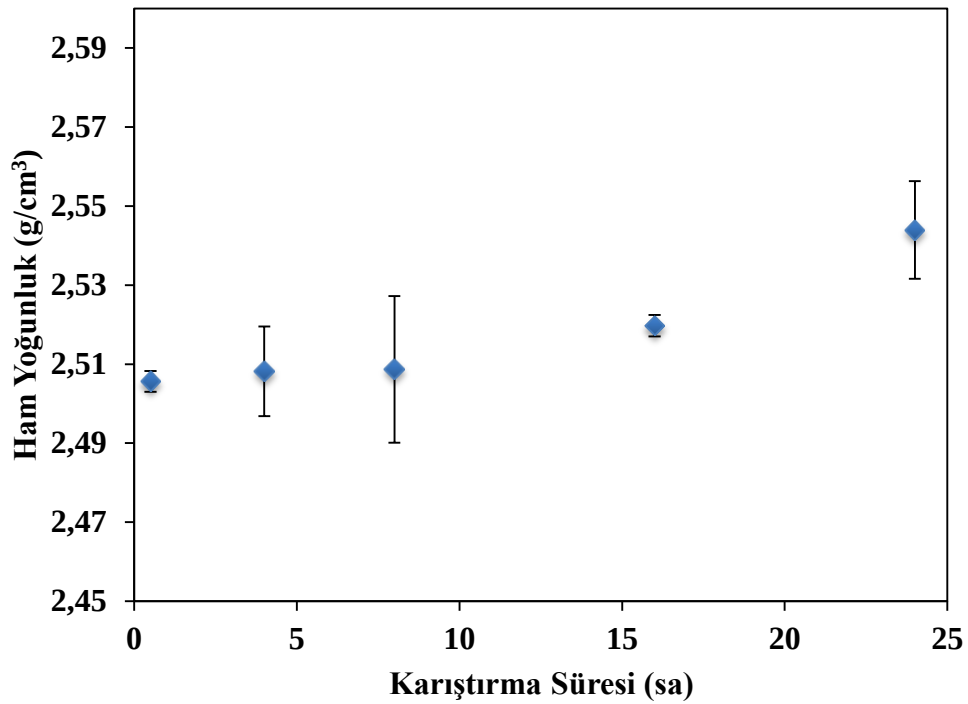


Şekil 4.6: Al_2O_3 tozunun şiddet-partikül boyutu dağılım grafiği.

4.2. KARIŞTIRMA SÜRESİNİN VE KARIŞTIRMA TEKNİĞİNİN SİNERLEMEYE ETKİSİ

4.2.1. Yoğunluk Ölçümleri

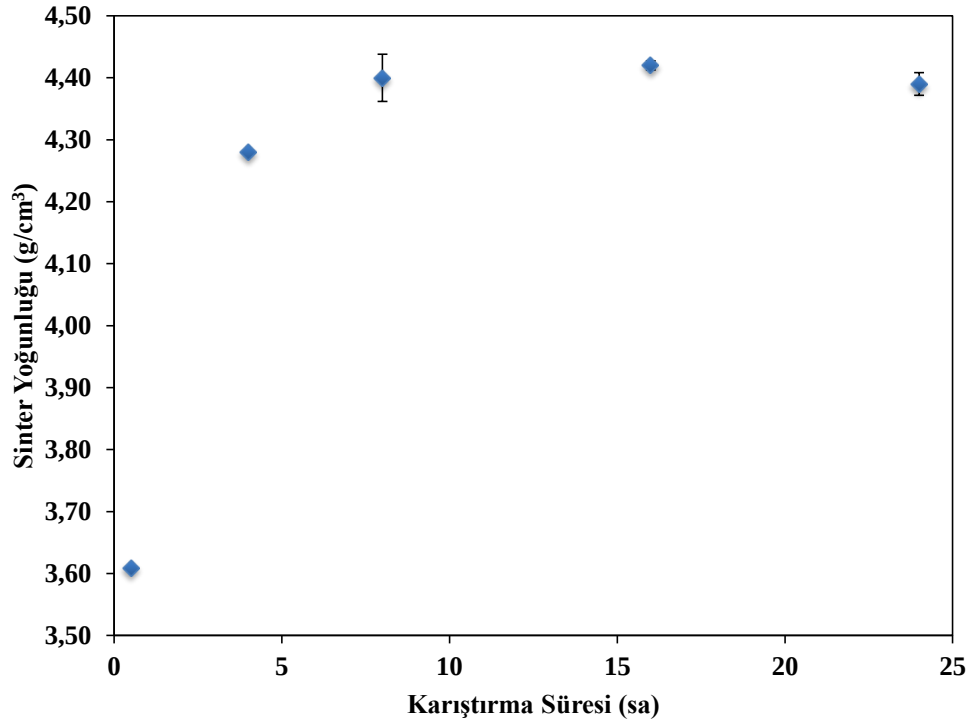
Değişik sürelerde bilyeli değirmende karıştırılan Al_2O_3 ve Y_2O_3 tozlarının presleme sonrası ham yoğunluk değerleri **Şekil 4.7**'de gösterilmiştir. Şekilde görüldüğü üzere ham yoğunluk karıştırma süresi arttıkça başlangıçtan 8 saate kadar zamanla biraz artmakta iken 8 saatten sonra ise artış belirgin hale gelmektedir. 0,5 saat karıştırılan tozlar ile hazırlanan peletlerin ham yoğunluk değerleri ortalama $2,50 \text{ g/cm}^3$ iken 24 saat karıştırılan tozlar ile hazırlanan peletlerin ham yoğunluk değerleri ortalama $2,54 \text{ g/cm}^3$ 'tür.



Şekil 4.7: Ham yoğunluğun karıştırma süresi ile değişimi.

Şekil 4.8, $1700 \text{ }^\circ\text{C}$ 'de 1 saat sinterlenen numunelerin yoğunluğuna karıştırma süresinin etkisini göstermektedir. Şekilden sinter yoğunluğunun başlangıçta karıştırma süresi arttıkça hızla arttığı, 8 saat karıştırma süresinden sonra yoğunlaşmanın sabit kaldığı ve 24 saatlik karıştırma süresi için sinter sonrası yoğunlukta biraz azalma olduğu

görülmektedir. 0,5 saat karıştırılan numunenin sinter yoğunluğu $3,6 \text{ g/cm}^3$ iken 8 saat ve daha fazla karıştırılan numunelerin sinter yoğunluklarının $4,4 \text{ g/cm}^3$ civarında olduğu tespit edilmiştir.

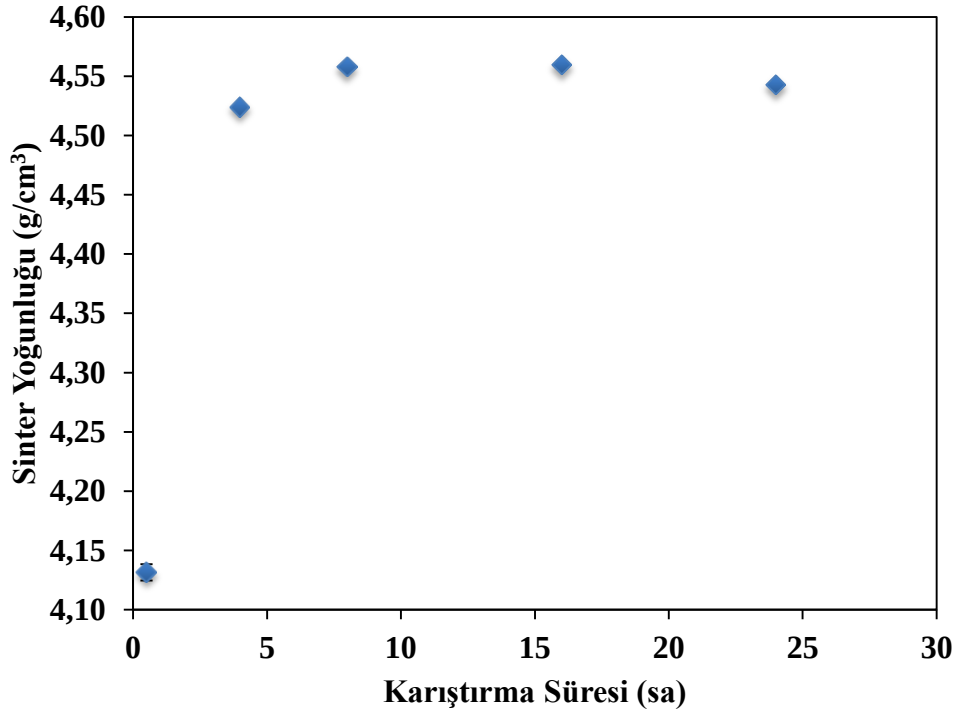


Şekil 4.8: 1700 °C’de 1 saat sinterlenen numunelerin yoğunluğuna karıştırma süresinin etkisi.

5 saat sinterlenen numunelerin sinter yoğunlukları **Şekil 4.9**’daki grafikte verilmiştir. Grafiğe bakıldığında 0,5 saat karıştırılan numunelerin sinter yoğunluğu ortalama $4,13 \text{ g/cm}^3$ iken 8 saat ve daha fazla karıştırılan numunelerin sinter yoğunluklarının YAG fazının teorik yoğunluğu olan $4,56 \text{ g/cm}^3$ mertebesine ulaştığı görülmektedir. Sinter yoğunluğuna karıştırma süresinin etkisi 1 saatlik numunelerde olduğu gibi benzer bulunmuştur. Fakat 1700 °C’de 5 saatlik sinterleme sonucunda elde edilen numunelerin yoğunlukları 1 saatlik sinterleme ile elde edilen numunelere kıyasla tüm çalışılan karıştırma süreleri için daha yüksektir.

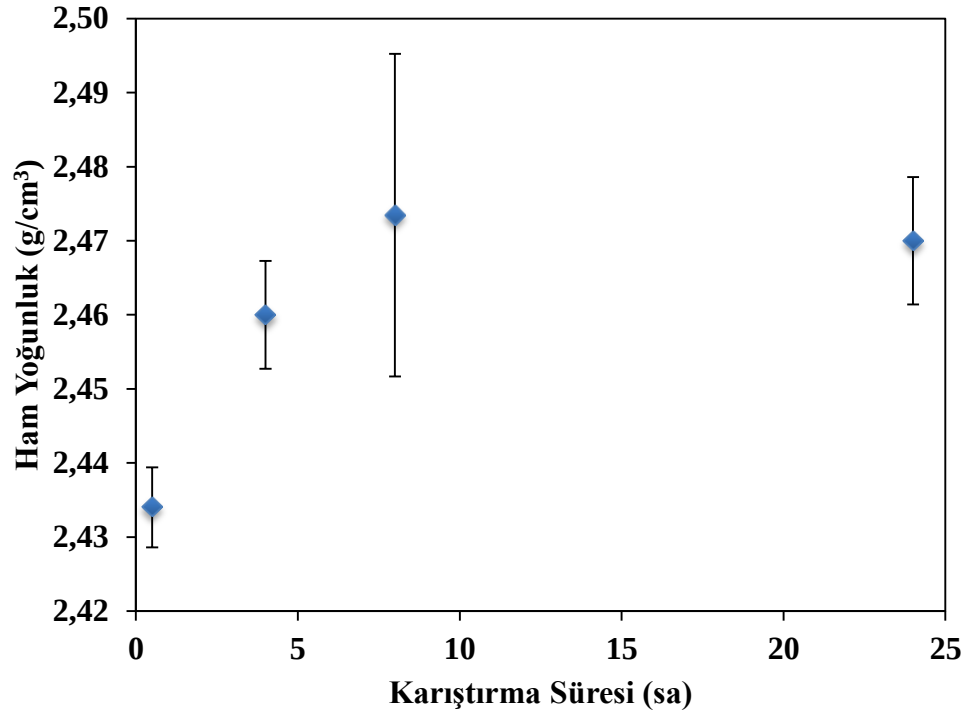
Yukarıda 1700 °C’de yapılan sinterleme çalışmaları 8 saatlik karıştırma süresinin optimum karıştırma süresi olduğunu göstermektedir. Çünkü 8 saate kadar yoğunluk artmakta sonrasında fazla değişmemekte ve 5 saatlik sinterleme sonunda YAG’ın teorik

yoğunluğuna ($4,56 \text{ g/cm}^3$) ulaşılmaktadır. Bu bakımdan bundan sonraki çalışmalarda Al_2O_3 ve Y_2O_3 tozlarının karıştırma işlemi 8 saat süreyle yapılmıştır.

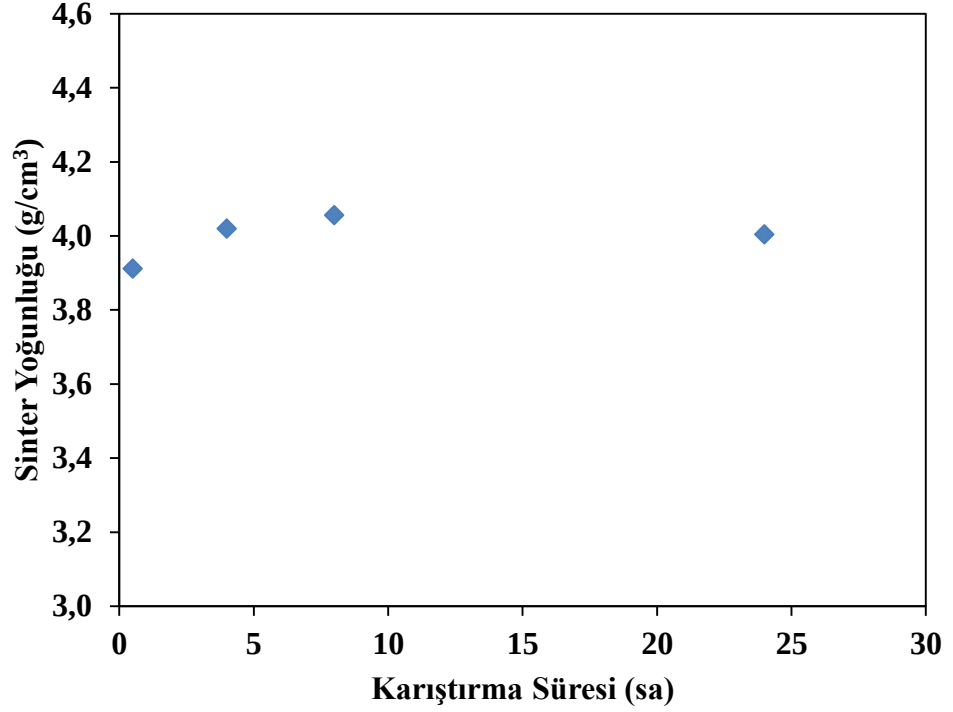


Şekil 4.9: 1700 °C’de 5 saat sinterlenen numunelerin yoğunluğuna karıştırma süresinin etkisi.

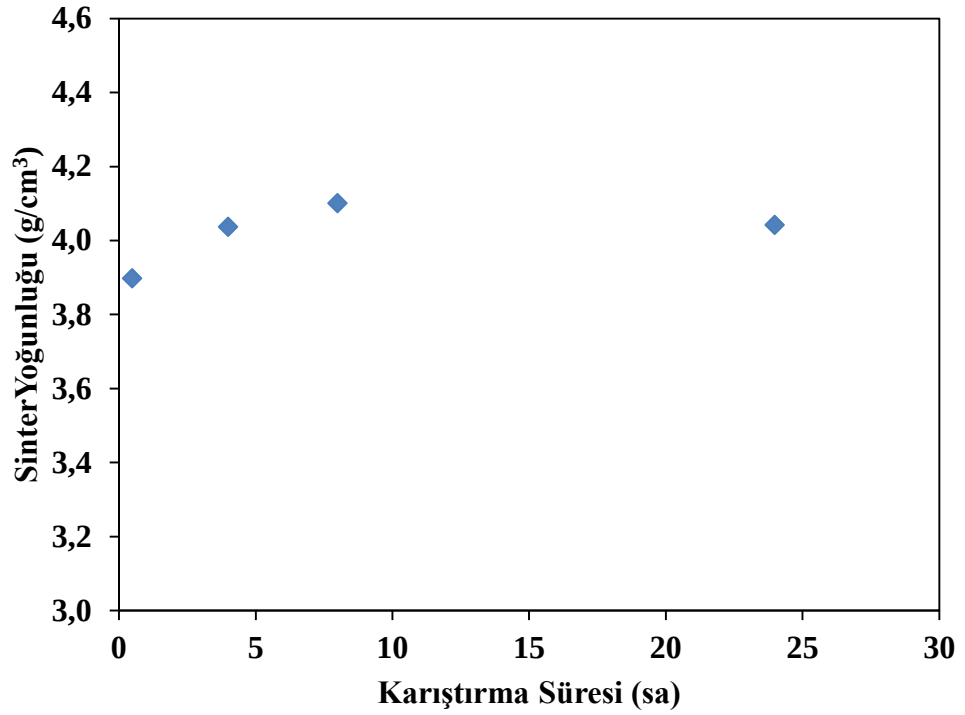
Turbula karıştırıcı kullanılan deneylerde toz karıştırma süresinin ham yoğunluğa etkisi **Şekil 4.10**’da verilmiştir. Şekilden görüldüğü üzere ham yoğunluk karıştırma süresi 0,5 saatten 8 saate artırıldığında $2,43 \text{ g/cm}^3$ ’ten $2,47 \text{ g/cm}^3$ ’e biraz artmakta, 8 saat sonrasında ise değişmemektedir. Turbula karıştırıcıdan elde edilen ham peletlerin sinter sonrası yoğunlukları karıştırma süresine bağlı olarak **Şekil 4.11**’de gösterilmiştir. Karıştırma süresi arttıkça sinter sonrası yoğunluk önce biraz artmakta, sonra hemen hemen sabit kalmaktadır. Yoğunluk değerleri 4 g/cm^3 civarında olup teorik yoğunluğun ($4,56 \text{ g/cm}^3$) çok altında kalmıştır. Sinter süresi 20 saat olduğu durumda ise benzer eğilim görülmüştür. Yoğunluk 5 saat sinterlenen numunelere kıyasla biraz artmıştır fakat teorik yoğunluğun çok altında yoğunlaşma olduğu **Şekil 4.12**’den görülmüştür.



Şekil 4.10: Turbula ile karıştırılan tozlarda ham pelet yoğunluğuna karıştırma süresinin etkisi.



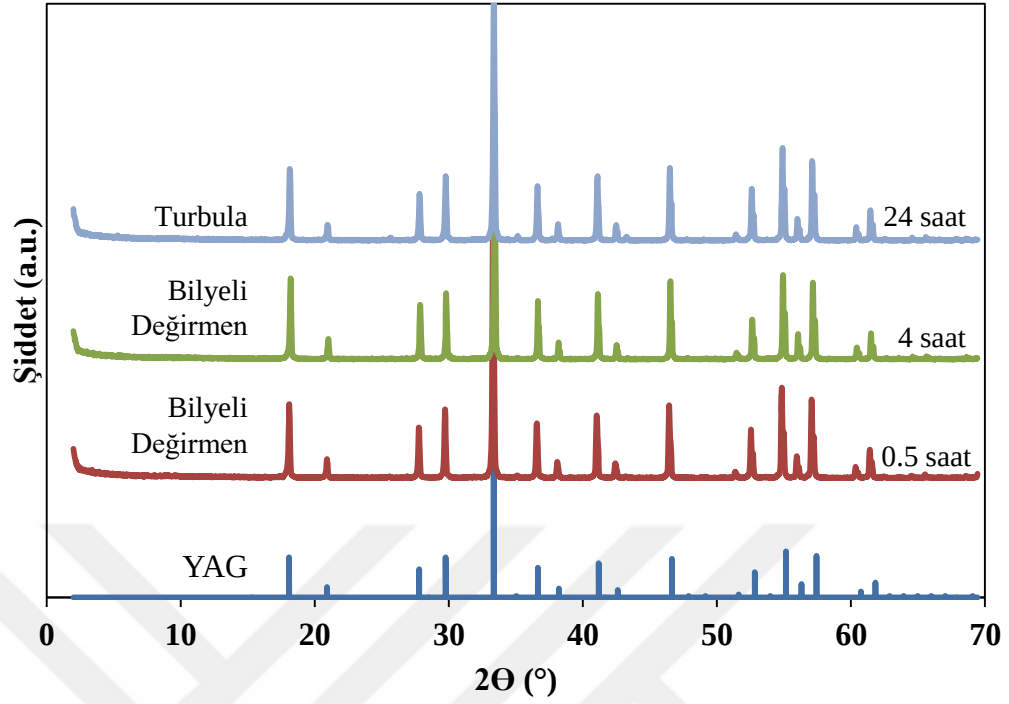
Şekil 4.11: Turbula karıştırıcıda farklı sürelerde karıştırılarak elde edilen ham peletlerin 5 saat sinterlenmesinin ardından karıştırma süresinin sinter sonrası yoğunluğa etkisi.



Şekil 4.12: Turbula karıştırıcıda farklı sürelerde karıştırılarak elde edilen ham peletlerin 20 saat sinterlenmesinin ardından karıştırma süresinin sinter sonrası yoğunluğa etkisi.

4.2.2. Faz Analizleri

Şekil 4.13, farklı sürelerde değirmende ve Turbula’da 24 saat karıştırılan numunelere ait X-ışınları difraksiyon paternlerini göstermektedir. Şekilden 0,5 ve 4 saat değirmende karıştırılan ve 1700 °C’de 5 saat sinterlendikten sonra elde edilen numunelere ait difraksiyon paternlerinin 00-033-0040 no’lu standart YAG’ın difraksiyon açıları ve pik şiddetleriyle uyum içerisinde olduğu görülmekte olup ikincil fazlara ait pikler tespit edilmemiştir. Bu da bahsi geçen numunelerin sadece YAG fazından oluştuğunu göstermektedir. Turbula ile karıştırıldıktan sonra sinterlenen numunede de sadece YAG fazı gözlemlenmiştir.

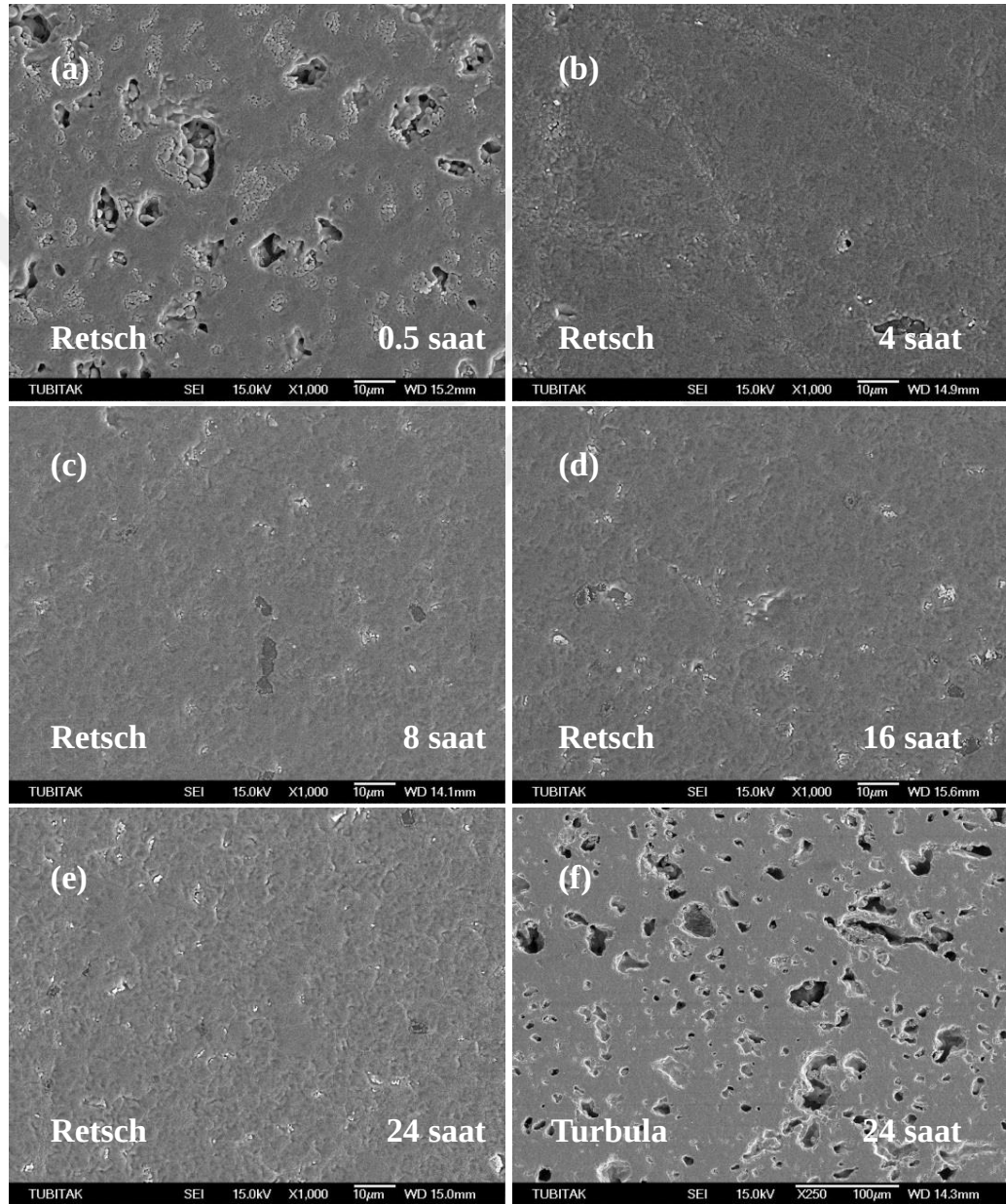


Şekil 4.13: Değişik karıştırma sürelerinde elde edilen sinterlenmiş ürünlere ait XRD paternleri.

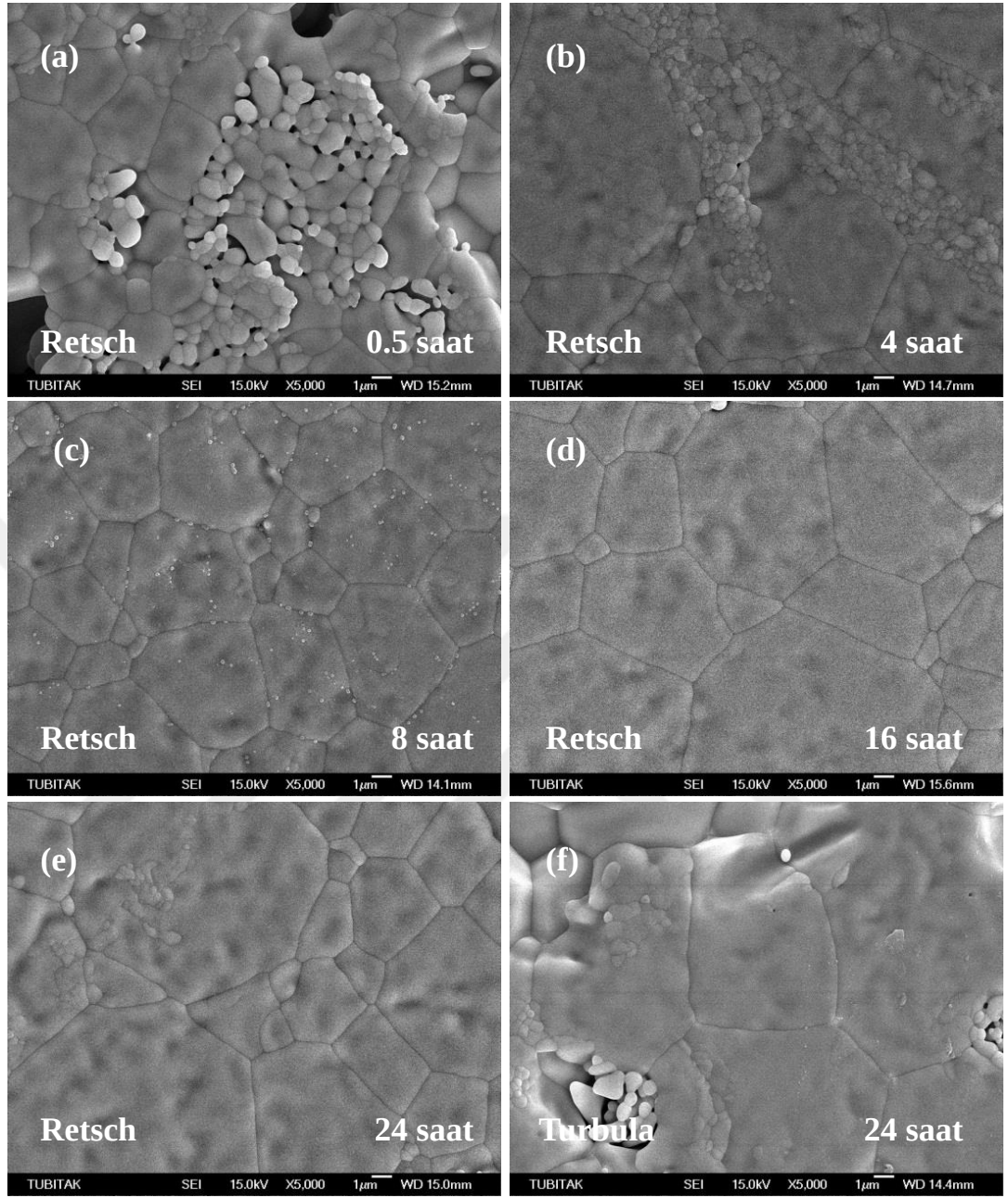
4.2.3. Mikroyapı Analizleri

Oksit tozlarının karıştırma süresinin nihai ürünün morfolojik yapısına etkisi **Şekil 4.14**'te görülmektedir. Şekil incelendiğinde karıştırma süresi 0,5 saat olan numunenin büyük gözenekler (ortalama 4 μ m) ihtiva ettiği görülmektedir. 4 ve 8 saat karıştırma sonucunda hazırlanarak elde edilen numunelerin SEM görüntülerine bakıldığında yapıdaki gözeneklerin oldukça azalmış olduğu görülmektedir. Karıştırma süresinin 16 ve 24 saat olarak uygulandığı numuneye bakıldığında ise bu numunelerin 4 ve 8 saat karıştırılan numunelere göre bir miktar daha fazla boşluk içerdiği gözlemlenmiştir. Bunun yanında oksit toz karışımının Turbula ile 24 saat süreyle karıştırılmasıyla elde edilen numunenin SEM görüntüsü Retsch ile karıştırılarak elde edilen numunenin görüntüsü ile karşılaştırıldığında bu numunenin yapısındaki büyük gözenekler (ortalama 17 μ m) açıkça görülmektedir. **Şekil 4.15**'te görülen daha yüksek büyütmelemlerde elde edilen SEM görüntüleri numunelerde ısıtma sonucu ortaya çıkarılmış taneleri göstermektedir. Şekilden görüldüğü üzere değirmende 0,5 - 4 saat karıştırılan ve Turbula'da 24 saat karıştırılan numunelerde iri taneler (3 μ m civarı) yanı sıra sub-

mikron taneler de görülmektedir. Değirmende 8 saat ve daha uzun süre karıştırılan numuneler ise daha homojen tane boyut dağılımı göstermiştir. Ortalama tane boyutu 8 saat karıştırılan numune için ortalama 6 μm , 16 ve 24 saat karıştırılan numuneler için ise ortalama 6-7 μm civarındadır. Yine bu şekilden de 0,5 saat Retsch ve 24 saat Turbula ile karıştırılarak hazırlanan numunelerin tane sınırlarında içerdiği gözenekler görülmektedir.



Şekil 4.14: Karıştırma süresinin ve türünün numunenin mikroyapısına etkisi. a) 0,5 b) 4 c) 8 d) 16 e) 24 saat Retsch marka bilyeli değirmende f) 24 saat Turbula’da karıştırılan numunelere ait SEM görüntüleri

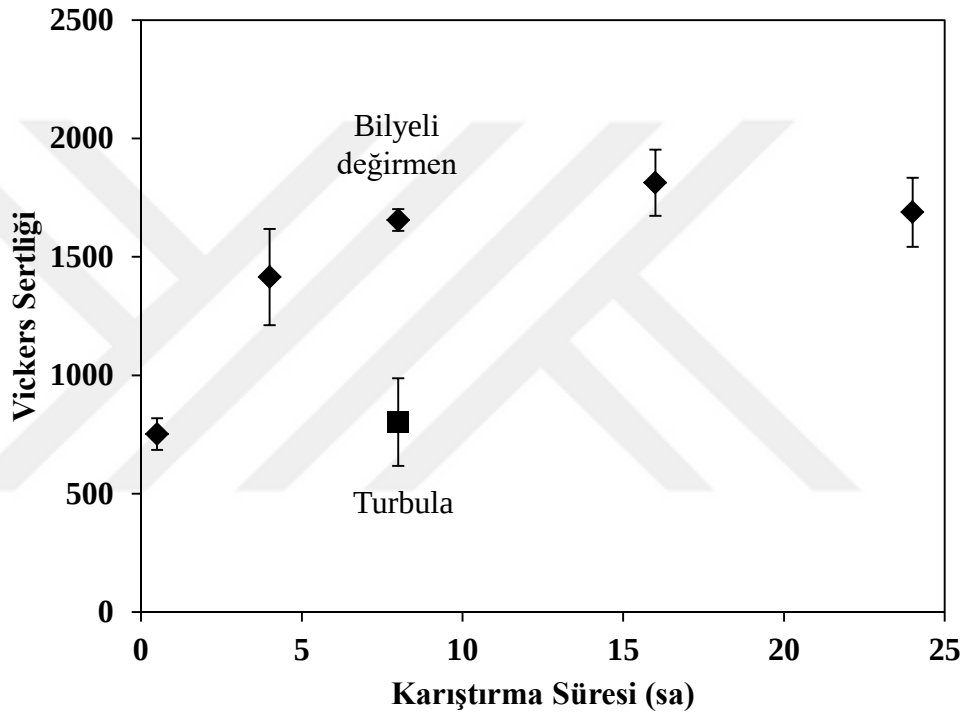


Şekil 4.15: Karıştırma süresinin ve türünün numunenin mikroyapısına etkisi. a) 0,5 b) 4 c) 8 d) 16 e) 24 saat Retsch marka bilyeli değirmende f) 24 saat Turbula’da karıştırılan numunelere ait SEM görüntüleri

4.2.4. Sertlik İncelemeleri

Karıştırma süresi ve tekniğinin sinterlenen numunelerin sertliğine etkileri **Şekil 4.16**’da gösterilmiştir. Üstteki veriler Retsch marka bilyeli değirmende 0,5, 4, 8, 16 ve 24 saat sürelerde karıştırılarak elde edilen numuneleri, alttaki veri ise Turbula cihazında 8 saat

kariřtırılarak elde edilen numuneyi (kare iřaretli) temsil etmektedir. **řekil 4.16**'dan g r ld đ   zere artan kariřtırma s resi ile numunelerin Vickers sertliđi 16 saate kadar artmakta, 24 saat kariřtırılan numunede ise sertlikte biraz d ř ř g zlenmektedir. Vickers sertliđi, 0,5 saatlik numunede 752 iken, 16 saatlik numunede ise 1813 deđerine  ıkmaktadır. 24 saat kariřtırılan numunede ise sertlik 1688'dir. Turbula ile 8 saat kariřtırılan numunede sertlik deđerı hemen hemen Retsch ile 0,5 saat kariřtırılan numunenin sertlik deđerine yakın olduđu řekilden g r lmektedir.



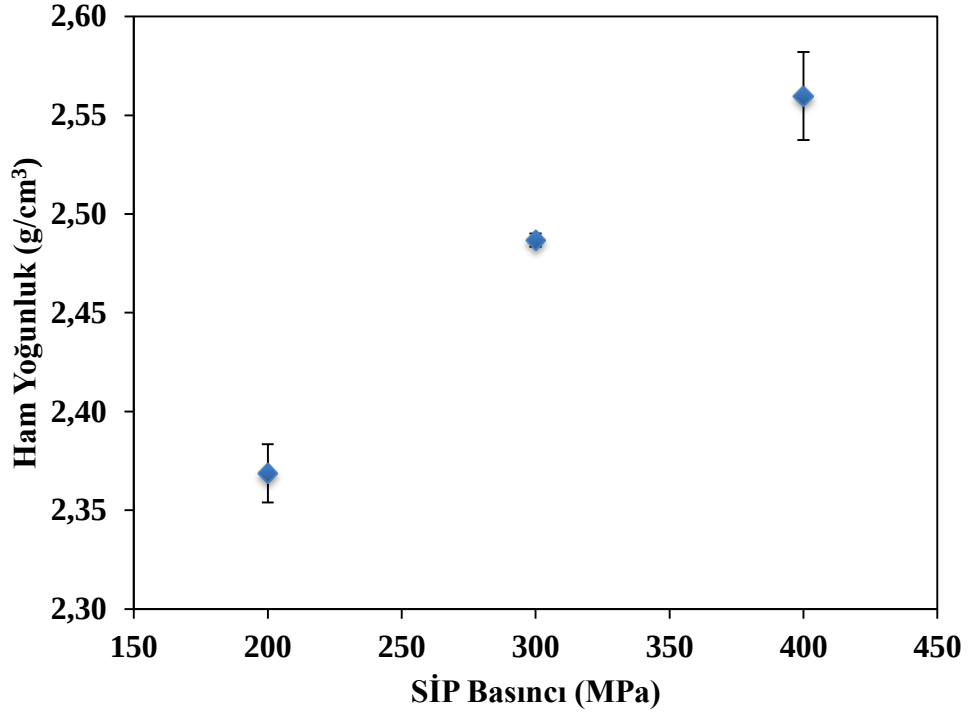
řekil 4.16: Oksit tozlarının kariřtırma s resinin sinterlenen numunelerin sertliklerine etkisi.

4.3. PRES BASINCININ HAM YOđUNLUđa VE SİTER SONRASI YOđUNLUđa ETKİřİ

4.3.1. Yođunluk  l  mleri

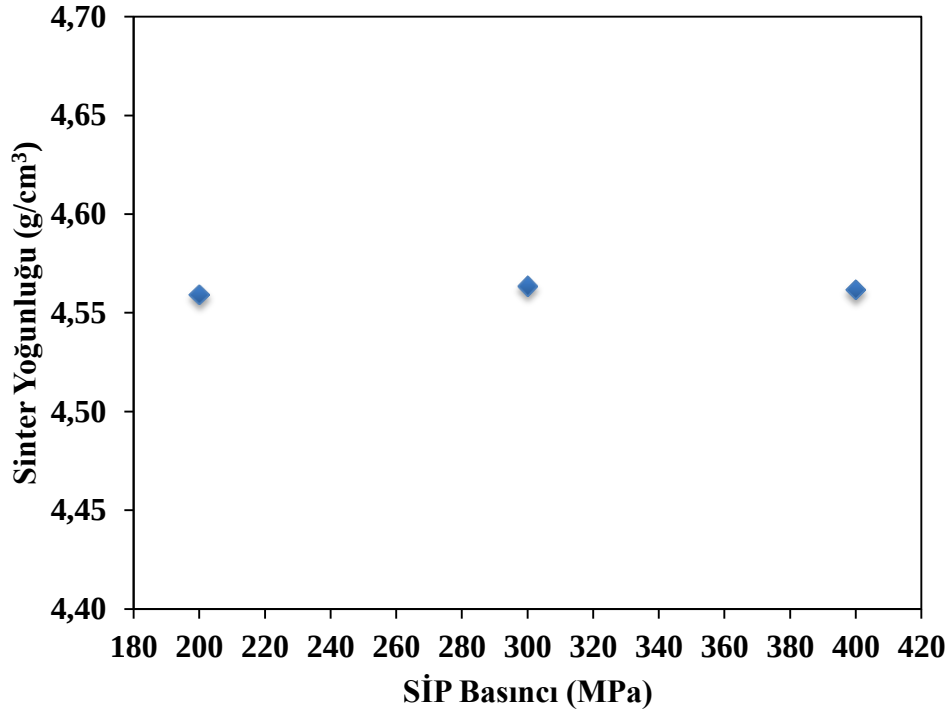
Kariřtırma s resi 8 saat olan ve sinter katkısı i eren toz kariřımından hidrolik preste 30 bar basınca preslenerek hazırlanan ham peletlerin 200, 300 ve 400 MPa basın  altında sođuk izostatik preslenmesi ile oluřturulan ham yođunluk – S P basıncı grafiđi **řekil**

4.17’de verilmiştir. Şekil, pres basıncı arttıkça ham yoğunluğun arttığını göstermektedir. En düşük ham yoğunluk 200 MPa basınçta preslenen numuneler için ortalama $2,37 \text{ g/cm}^3$, en yüksek ham yoğunluk ise 400 MPa basınçta ortalama $2,56 \text{ g/cm}^3$ ’tür. 300 MPa basınçta preslenen numunelerin ham yoğunluğunun ortalama $2,48 \text{ g/cm}^3$ olduğu ölçülmüştür.



Şekil 4.17: SİP basıncının ham pelet yoğunluğuna etkisi.

Şekil 4.18, 200, 300 ve 400 MPa basınç altında preslenmiş numunelerin $1700 \text{ }^{\circ}\text{C}$ ’de 5 saat sinterleme sonrası yoğunluk değerlerini sergilemektedir. Şekilden görüldüğü üzere sinter yoğunluğu 200-400 MPa basınç aralığında SİP basıncından etkilenmemektedir.

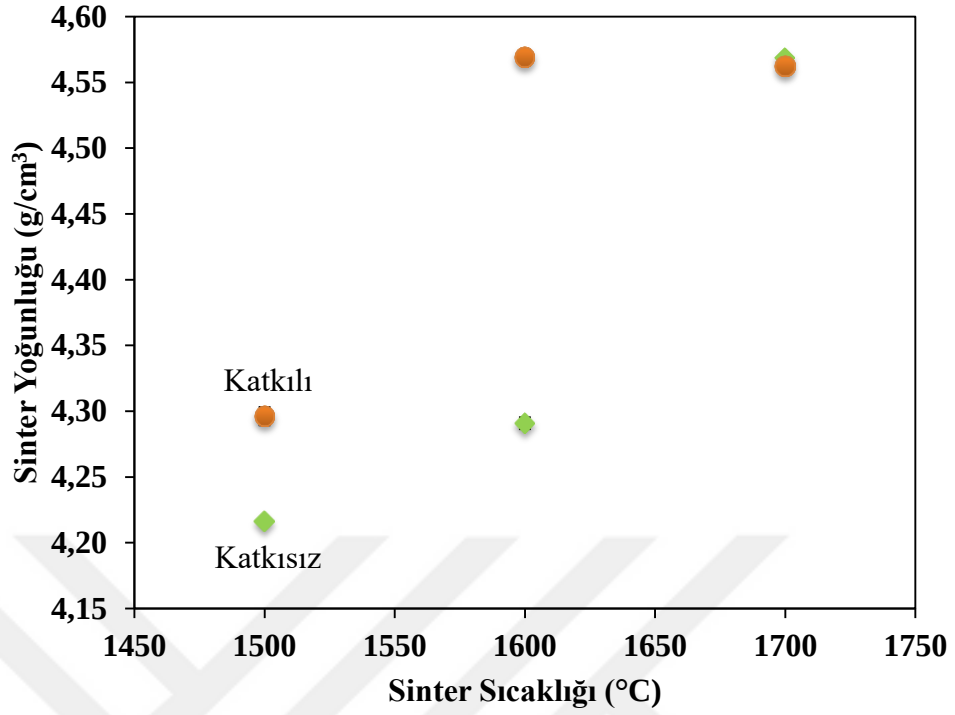


Şekil 4.18: SİP basıncının 1700 °C’de 5 saat sinterleme sonrası pelet yoğunluğuna etkisi.

4.4. SİTERLEME SICAKLIĞININ ETKİSİ

4.4.1. Yoğunluk Ölçümleri

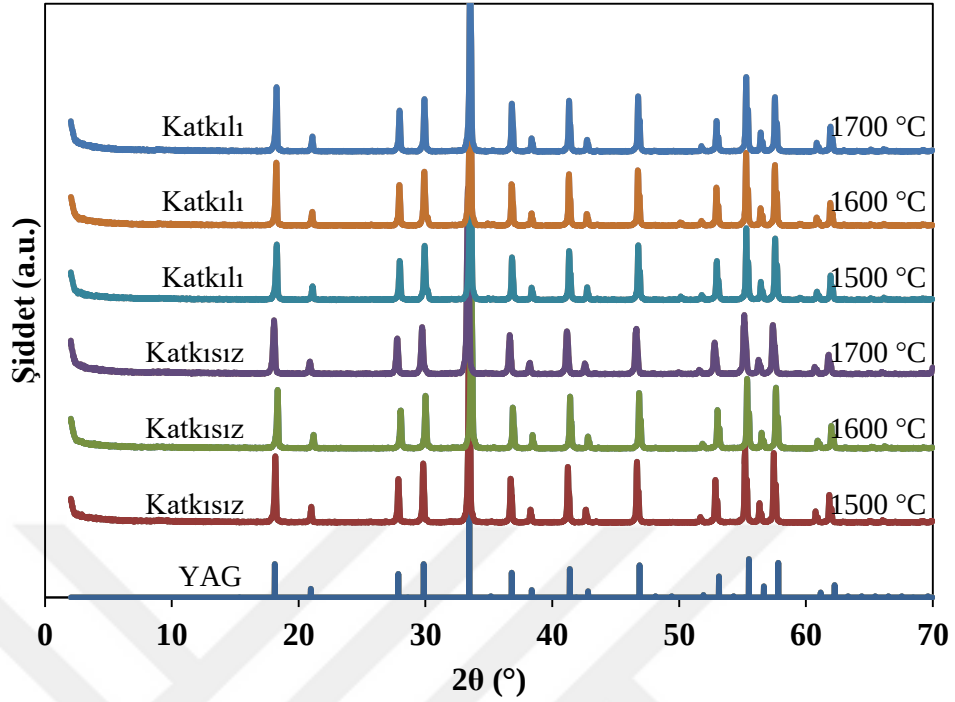
Al_2O_3 ve Y_2O_3 oksit toz karışımından hazırlanan sinter katkısı içeren ve içermeyen 300 MPa basınç altında preslenmiş karışımlar 1500-1700 °C sıcaklık aralığında 5 saat süreyle sinterlenmiştir. Bu çalışmada amaç sinter katkısının ve sinterleme sıcaklığının numune yoğunluğuna etkilerini incelemektir. Bu kapsamda elde edilen veriler yoğunluk-sinter sıcaklığı şeklinde Şekil 4.19’da verilmiştir. Şekilden görüldüğü üzere katkı içermeyen numunelerde sıcaklık arttıkça sinter yoğunluğu artmaktadır. Numune yoğunluğu 1500 °C’de 4,22 g/cm³ iken 1700 °C’de ise teorik yoğunluk (4,56 g/cm³) değerindedir. Sinter katkısı ile yoğunlukta artış gözlenmiş olup 1600 °C’de teorik yoğunluğa erişilmiştir. Sonuç olarak sinter katkısının yoğunluğu arttırdığı, sinterleme sıcaklığını düşürdüğü tespit edilmiştir.



Şekil 4.19: Al_2O_3 ve Y_2O_3 toz karışımının sinter yoğunluğuna sıcaklığın etkisi.

4.4.2. Faz Analizleri

Değişik sıcaklıklarda sinterlenen numunelere ait XRD paternleri Şekil 4.20’de gösterilmektedir. Şekilde sinter katkısız ve katkılı numunelerin paternleri verilmiştir. Şekilden görüldüğü üzere çalışılan tüm sıcaklıklarda sinterlenen numunelerde YAG fazı elde edilmiştir. Başka bir faza ait pike rastlanmamıştır.

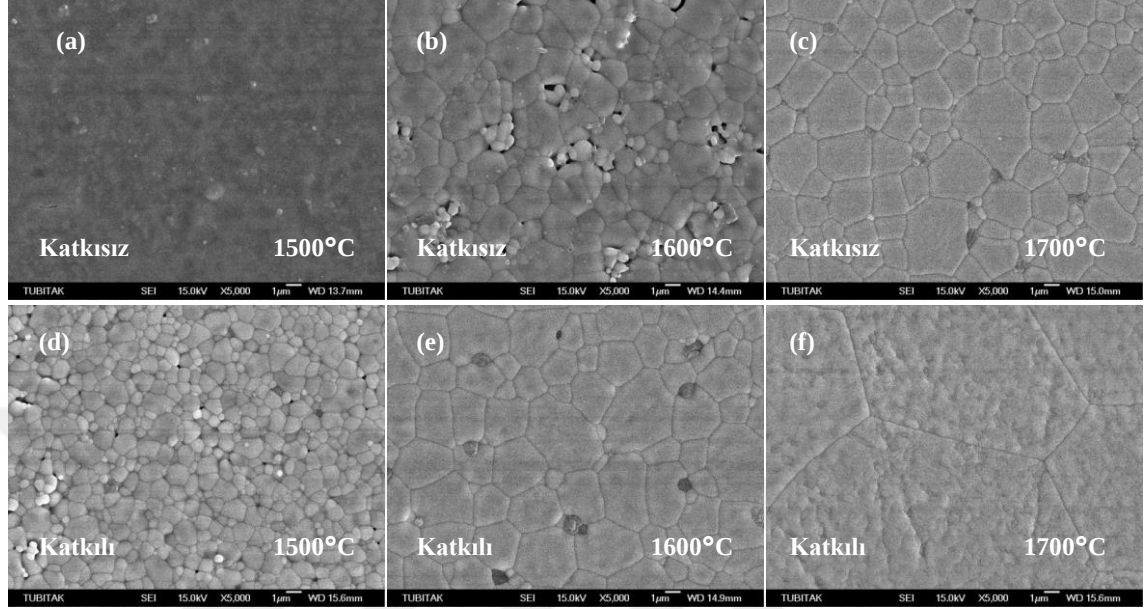


Şekil 4.20: Farklı sıcaklıklarda sinterlenen sinter katkılı ve katkısız numunelere ait XRD paternleri.

4.4.3. Mikroyapı Analizleri

Şekil 4.21’de üst kısımda sinter katkısı içermeyen, alt kısımda sinter katkısı içeren 1500-1700 °C sıcaklık aralığında sinterlenmiş numunelere ait SEM görüntüleri verilmiştir. SEM görüntüleri analiz edilerek sinter sıcaklığı ve sinter katkısının mikroyapıya etkileri incelenmiştir. 1500 °C’deki katkısız numuneye ait SEM görüntüsüne bakılırsa, sinterleşmenin tam olarak gerçekleşmediği (tozumsu yapının korunduğu) görülmektedir. 1500 °C’deki sinter katkısı içeren numunede ise taneler ve tane sınırları açıkça görülmektedir. Bu numune küçük taneler ve tane sınırlarında gözenekler ihtiva etmektedir. Katkılı numunenin 1600 ve 1700 °C’lerdeki SEM görüntüleri incelendiğinde sıcaklık arttıkça tane boyutunun arttığı gözlenmiştir. 1700 °C’de sinter katkısı içermeyen ve içeren numuneler arasında tane boyutu farkı oldukça fazladır. Sinter katkısı içermeyen numunede tane boyutu ortalama 2 μm civarında iken sinter katkılı numunede boyutun 11 μm olduğu tespit edilmiştir. Katkısız numunelerde 1600 °C’de tane sınırlarında boşluklar varken (0,5-1 μm boyut aralığında) 1700 °C’de ise boşluksuz yapının olduğu SEM resimlerinden görülmektedir. Mikroyapılar arasında

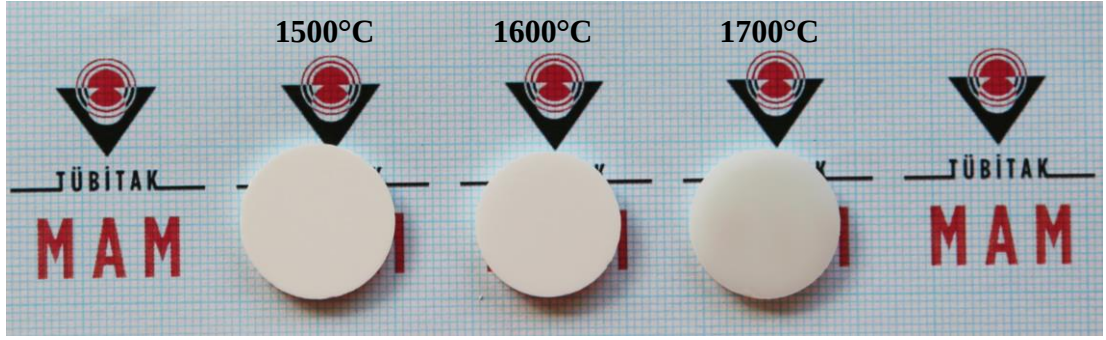
yapılan karşılaştırmayla, sinter katkısı ve artan sinter sıcaklığıyla yoğunluğun arttığı teyit edilmiştir.



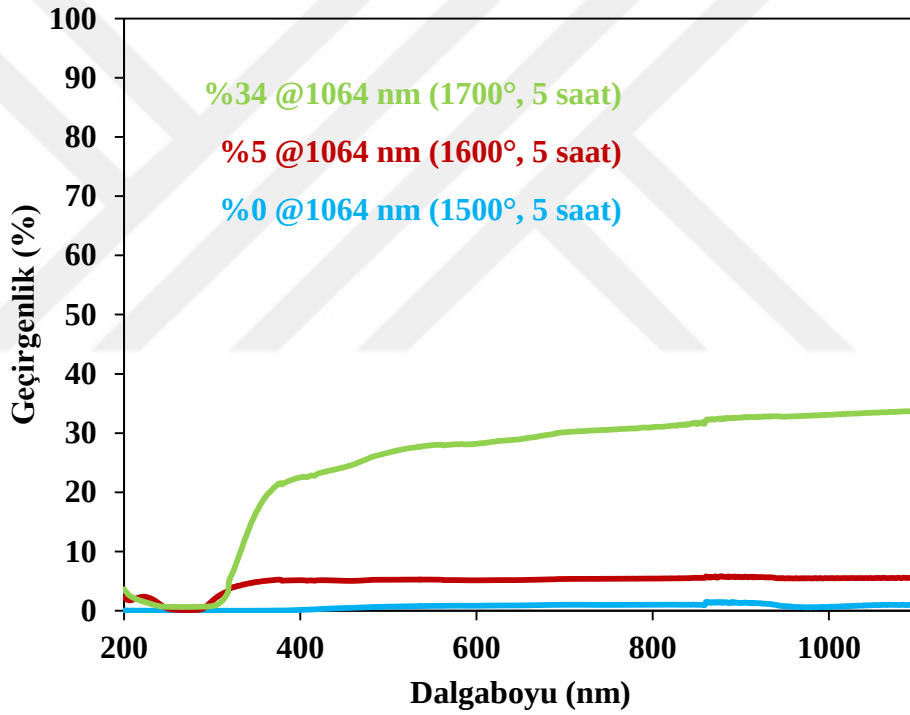
Şekil 4.21: Sinterleme sıcaklığının ve sinter katkısının numunenin mikroyapısına etkisi. a) 1500 b) 1600 c) 1700 °C’de sinterlenen katkısız numunelere, d) 1500 e) 1600 f) 1700 °C’de sinterlenen katkılı numunelere ait SEM görüntüleri.

4.4.4. Optik Geçirgenlik Ölçümleri

Şekil 4.22, farklı sıcaklıklarda sinterlenen katkı içermeyen numunelerin tavlama işlemi sonrası fotoğraflarını göstermektedir. Şekilden görüldüğü üzere çıplak gözle bakıldığında numuneler saydamlık sergilememektedir. Bu numunelere ait optik geçirgenlik ölçüm sonuçları **Şekil 4.23**’te verilmiştir. Analiz sonuçlarına göre numunelerin optik geçirgenliklerinin artan sinterleme sıcaklığı ile arttığı görülmekte fakat sinter katkısı içermeyen 1700 °C’de 5 saat süreyle sinterlenen numunede geçirgenlik % 34 seviyesinde kalmaktadır.



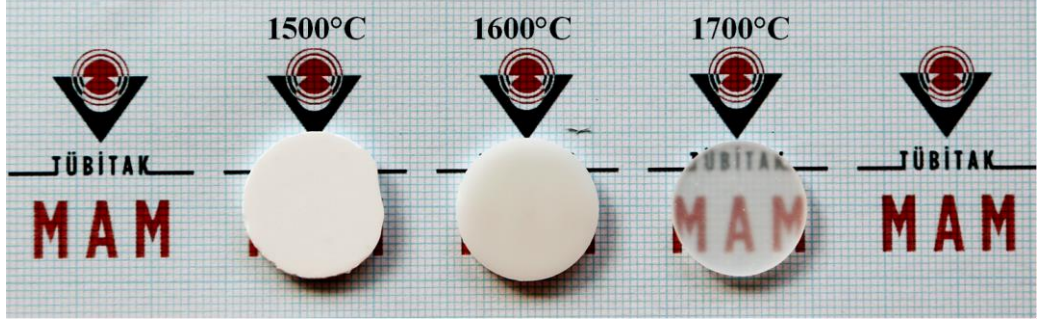
Şekil 4.22: 1500, 1600 ve 1700°C sıcaklıkta 5 saat süreyle sinterlenen ve sinter katkısı içermeyen 2,3 mm kalınlığındaki numunelerin görüntüsü.



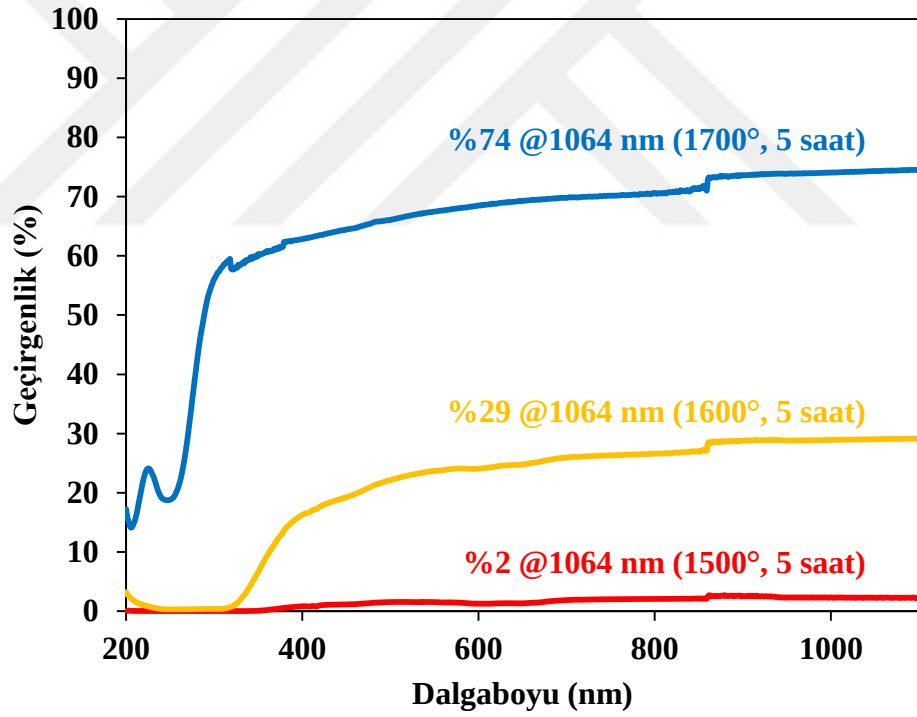
Şekil 4.23: 1500, 1600, 1700 °C sıcaklıkta 5 saat süre ile sinterlenen ve sinter katkısı içermeyen numunelerin geçirgenliğinin dalgaboyu ile değişimi.

Farklı sıcaklıklarda sinterlenen, sinter katkısı içeren numunelerin görüntüleri Şekil 4.24'te verilmiştir. Bu numuneler arasında çıplak gözle şeffaflık 1700 °C'de 5 saat sinterlenen numunede görülmektedir. Şekil 4.25'teki optik geçirgenlik eğrilerine göre optik geçirgenliğin sinterleme sıcaklığı arttıkça arttığı görülmektedir. 1500 °C'de 5 saat

sinterlenen numunede geçirgenlik % 2 seviyesinde iken sıcaklık 1700 °C olduğunda bu değer % 74'e varmaktadır.



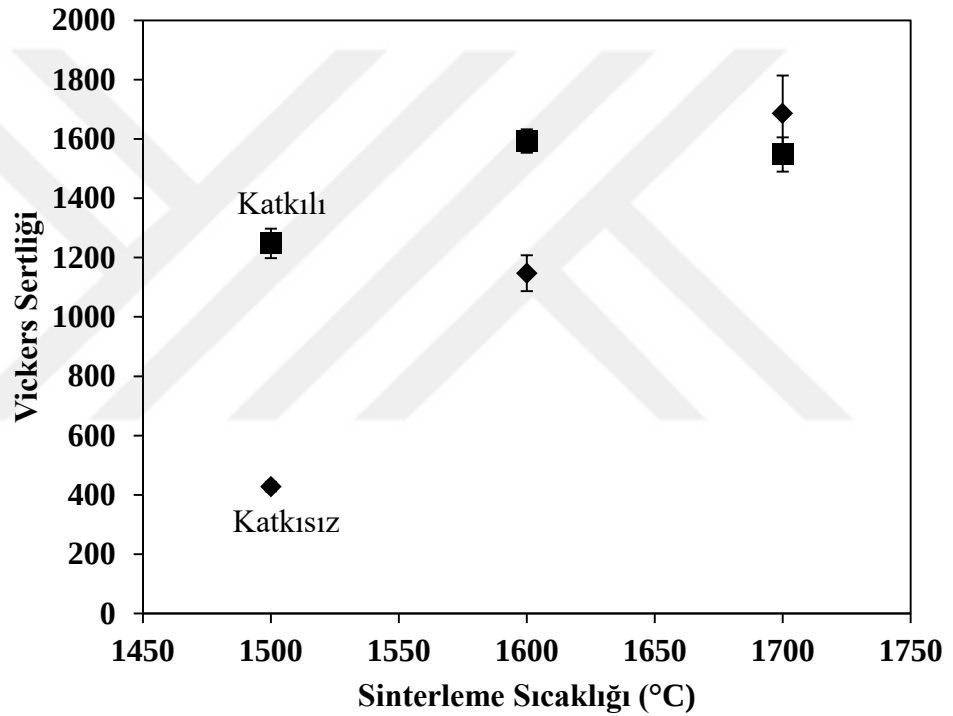
Şekil 4.24: 1500, 1600 ve 1700°C sıcaklıkta 5 saat süreyle sinterlenen ve sinter katkısı içeren 2 mm kalınlığındaki numunelerin görüntüsü.



Şekil 4.25: 1500, 1600, 1700 °C sıcaklıkta 5 saat süre ile sinterlenen ve sinter katkısı içeren numunelerin geçirgenliğinin dalga boyu ile değişimi.

4.4.5. Sertlik Ölçümleri

Şekil 4.26’da farklı sıcaklıklarda sinterlenen sinter katkılı ve katkısız numunelere tavlama ve parlatma işlemlerinden sonra uygulanan Vickers sertlik analizinin sonuçları grafik halinde verilmiştir. Grafikten hem katkılı hem de katkısız numunelerde artan sinterleme sıcaklığı ile sertliğin arttığı görülmektedir. Ayrıca 1500 ve 1600 °C’de sinterlenen katkılı numunelerin Vickers sertliklerinin katkısız numunelere kıyasla daha fazla olduğu görülmektedir. 1700 °C’de ise katkısız numunenin Vickers sertliğinin (1686) katkılı numuneninkinden (1547) biraz daha yüksek olduğu anlaşılmaktadır.

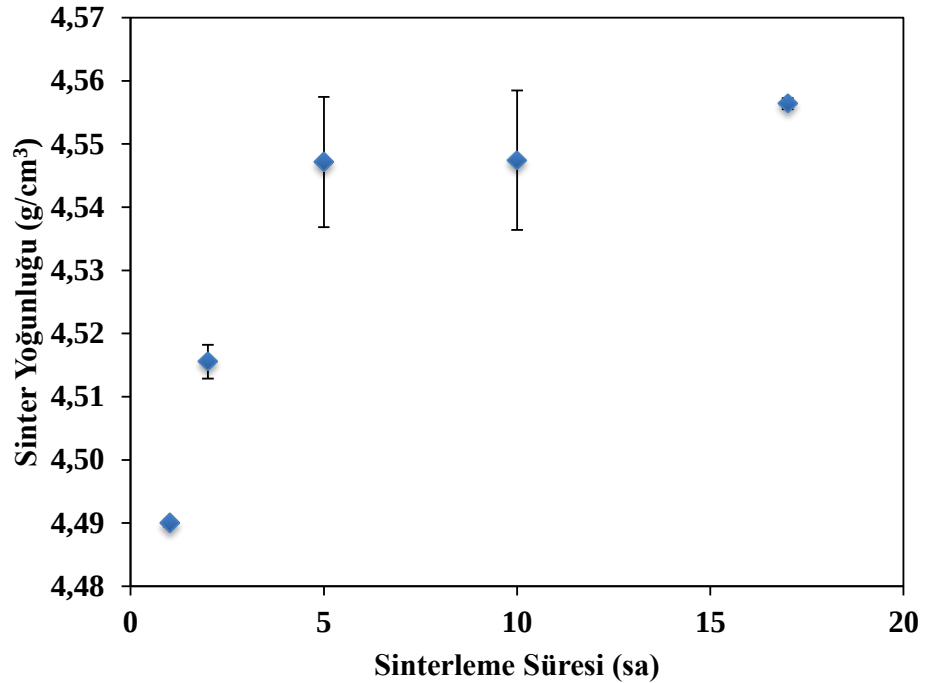


Şekil 4.26: Sinter katkısı içeren ve içermeyen numunelerde sinterleme sıcaklığının numunenin Vickers sertliğine etkisi.

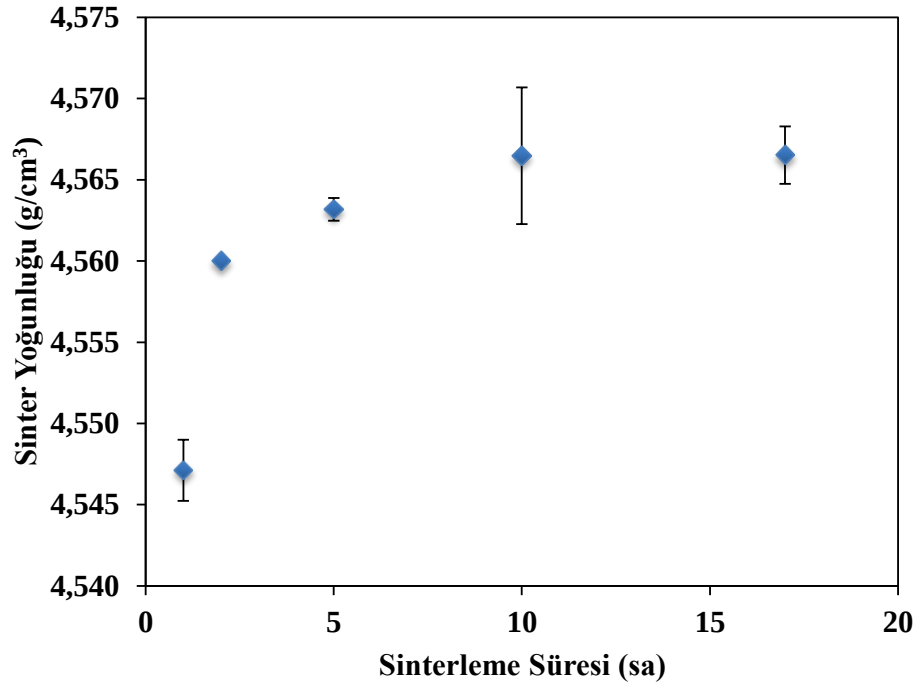
4.5. SİNERLEME SÜRESİNİN ETKİSİ

4.5.1. Yoğunluk Ölçümleri

1700 °C’de sinterleme süresinin sinterleşmeye etkisini incelemek için sinter katkısı içermeyen ve içeren toz karışımlardan optimum şartlarda (8 saat değirmende karıştırma ve 300 MPa SİP Basıncı) hazırlanan peletler değişik sürelerde sinterlenmiştir. Katkısız numunelere ait sonuçları gösteren **Şekil 4.27**’den, sinter süresi 1 saatten 5 saate çıkarıldığında sinter yoğunluğu belirgin bir şekilde 4,49 g/cm³’den 4,55 g/cm³’e arttığı anlaşılmaktadır. 5 saatten sonra ise yoğunluk 4,56 g/cm³’e doğru biraz yükselmektedir. Katkılı numunelerde de benzer eğilim görülmektedir. **Şekil 4.28**’den görüldüğü üzere sinterleme süresi 1 saatten 5 saate arttıkça yoğunluk 4,55 g/cm³’den 4,56 g/cm³’e çıkmaktadır. 5 saatten sonra yoğunluk 4,57 g/cm³ değerine ulaşmaktadır. Elde edilen grafikler sinter katkısı ile yoğunlaşmanın daha kısa sinterleme süresinde gerçekleştiğini ortaya koymaktadır. Örneğin sinter katkısı içermeyen numunelere bakıldığında 4,54 g/cm³ yoğunluk değerine 5 saat sonunda ulaşılırken, katkılı numuneler için bu süre yaklaşık aynı yoğunluk için 1 saate düşmektedir.



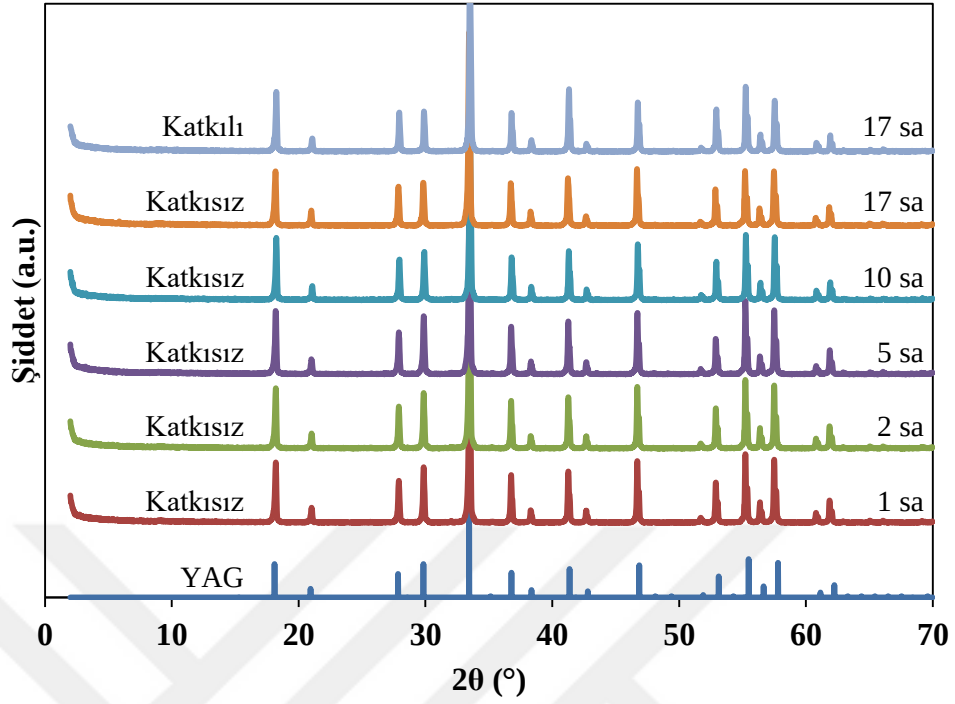
Şekil 4.27: Sinter katkısı içermeyen ham peletlerin sinter yoğunluğuna 1700 °C’deki sinterleme süresinin etkisi.



Şekil 4.28: Sinter katkısı içeren numunelerin 1700 °C’de sinter yoğunluklarına sinterleme süresinin etkisi.

4.5.2. Faz Analizleri

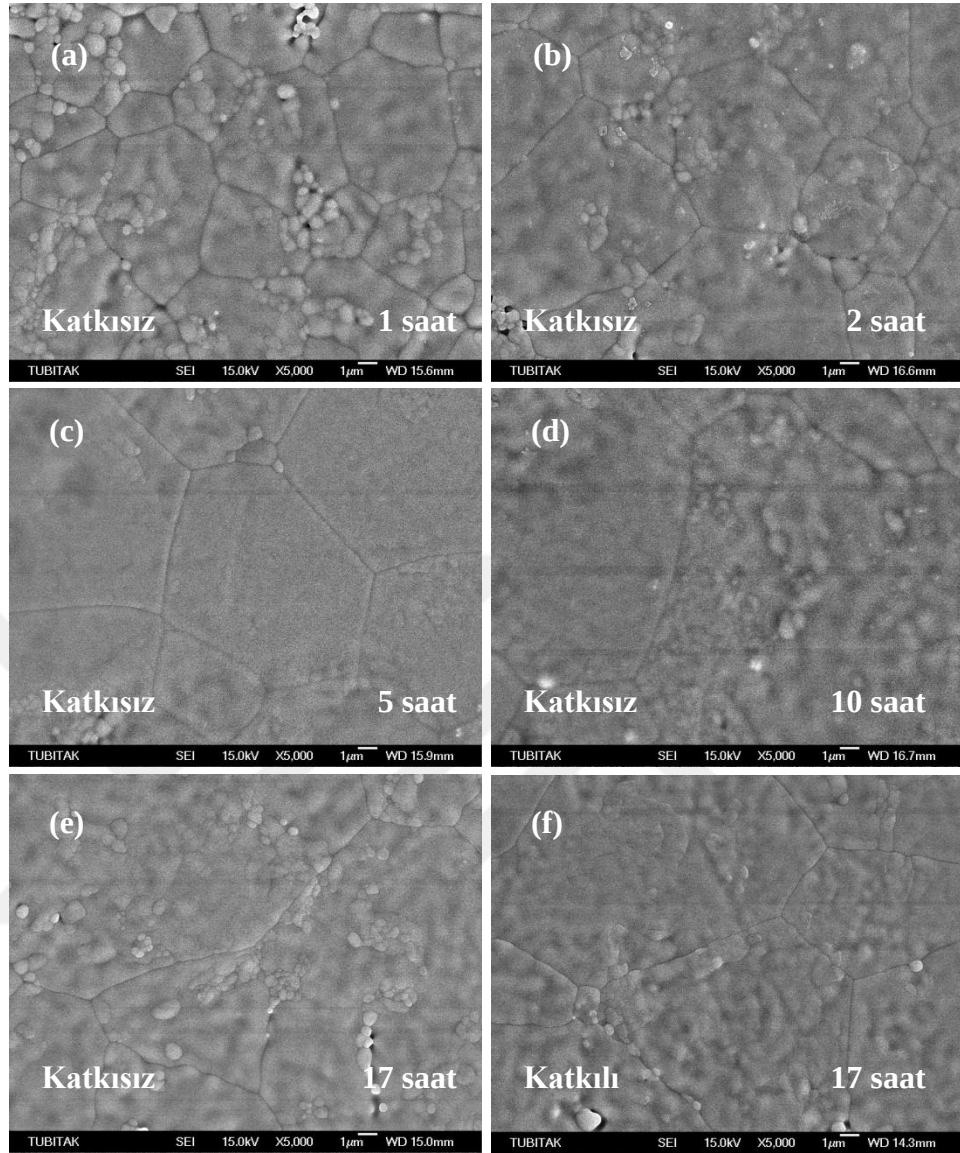
1700 °C sıcaklıkta farklı süreler sinterlenen ardından 1375 °C’de tavlanan, sinter katkılı ve katkısız numunelere ait XRD paternleri **Şekil 4.29**’da verilmiştir. Analiz sonucuna göre tüm numunelerde tek faz olarak YAG elde edilmiştir. Her sinterleme süresi için elde edilen difraksiyon açıları ve pik şiddetleri 00-033-0040 no’lu standart YAG değerleriyle uyumaktadır. Paternlerde başka faza ait piklere rastlanmamıştır.



Şekil 4.29: Farklı sürelerde sinterlenen numunelerin XRD paternleri.

4.5.3. Mikroyapı Analizleri

Değişik sürelerde sinterlenen katkısız ve 17 saat sinterlenen katkılı numunelerin SEM görüntüleri **Şekil 4.30**'da verilmiştir. Görüntüler, sinter süresi arttıkça gözenek içeriğinin azaldığını, tane boyutunun arttığını göstermektedir. 1 saat sinterlenen numunenin ortalama tane boyutu 3 μm iken 2 saat sinterlenen numunede bu değer 7 μm 'ye, 5 saat sinterlenen numunede 12 μm 'ye çıkmaktadır. 5 saatten sonra artan sinterleme süresi ile numunelerin tane boyutlarında aşırı büyüme gözlenmiştir. 10 ve 17 saat sinterlenen numunelerde ortalama tane boyutu 20 μm mertebesine erişmektedir. 17 saat sinterlenen katkısız numunede de mikroyapının kaba tanelerden oluştuğu görülmüştür.

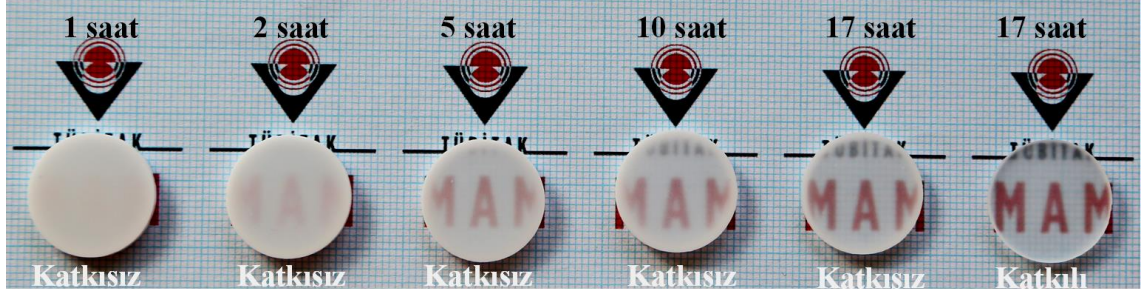


Şekil 4.30: Sinterleme süresinin ve sinter katkısının numunenin mikroyapısına etkisi. a) 1 b) 2 c) 5 d) 10 e) 17 saat süre ile sinterlenen katkısız numunelere, f) 17 saat süre ile sinterlenen numuneye ait SEM görüntüleri.

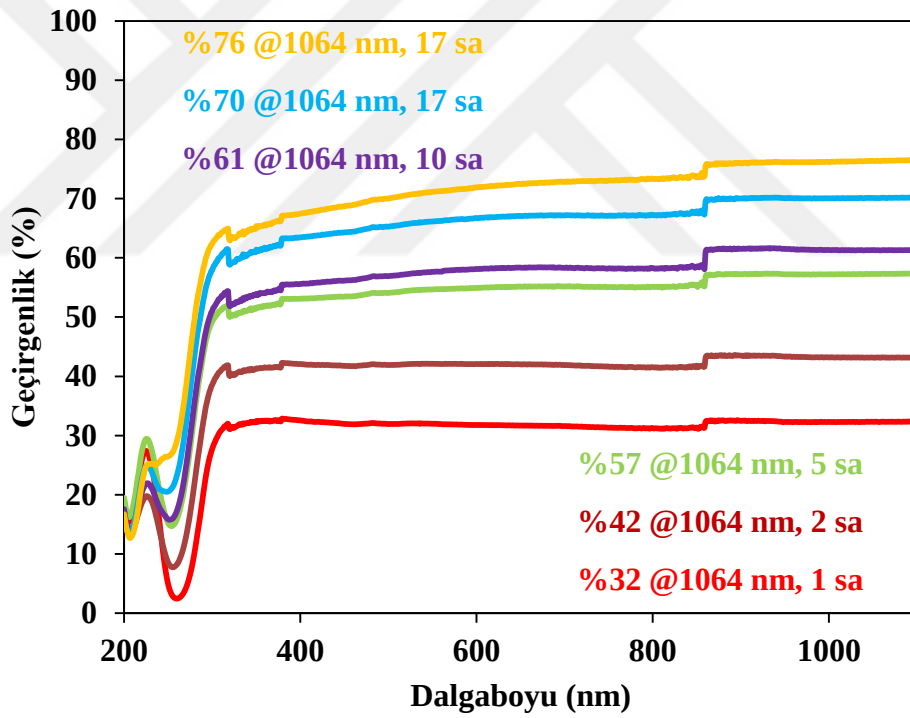
4.5.4. Optik Geçirgenlik Ölçümleri

1700 °C’de farklı sürelerde sinterlenen katkısız numunelerin ve 1700 °C’de 17 saat sinterlenen katkılı numunenin tavlama ve parlatma işlemlerinden sonraki fotoğrafları **Şekil 4.31**’de verilmiştir. Katkısız numunelerde artan sinterleme süresi ile optik geçirgenliğin arttığı fotoğraflardan açıkça görülmektedir. Bu durum, **Şekil 4.32**’de verilen optik geçirgenlik analizi sonucu ile de doğrulanmaktadır. Şekilden görüldüğü üzere 1 saat sinterlenen katkısız numunenin optik geçirgenliği % 32 iken 17 saat

sinterlenen katkısız numunede geçirgenlik değeri % 70'tir. 17 saat sinterlenen katkılı numunede ise geçirgenlik değerinin % 76 olduğu görülmektedir.



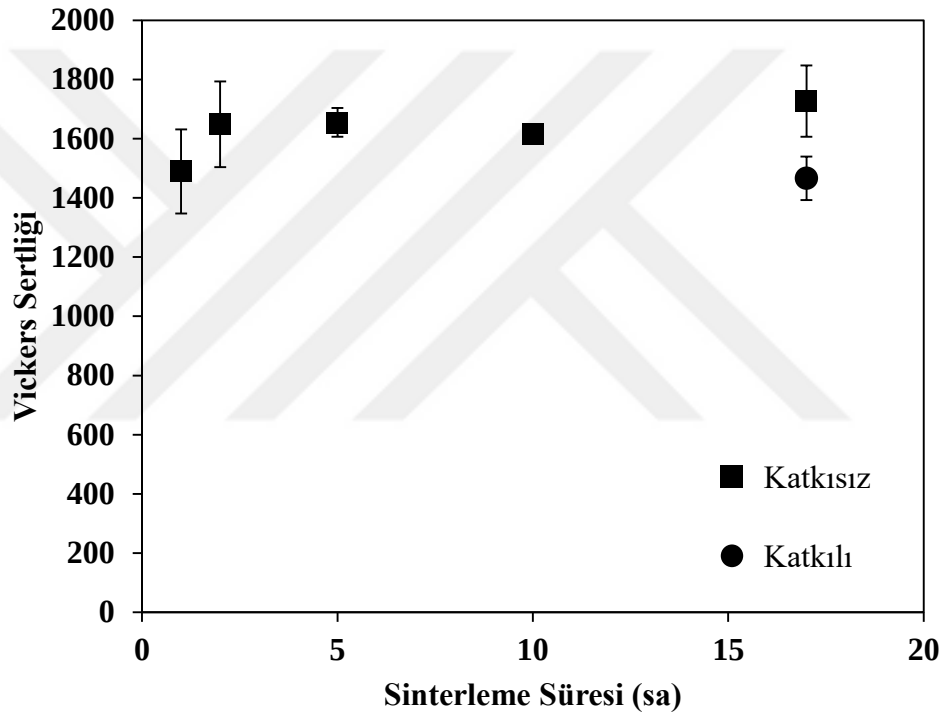
Şekil 4.31: 1700 °C sıcaklıkta farklı sürelerde sinterlenen numunelerin görüntüsü. (1, 2, 5 ve 10 saat sinterlenen numuneler 2,4 mm, 17 saat sinterlenenler ise 2 mm kalınlıktadır.)



Şekil 4.32: 1700 °C'de farklı sürelerde sinterlenen numunelerin geçirgenliğinin dalgaboyu ile değişimi. (Sarı renkli eğri katkılı numuneye aittir.)

4.5.5. Sertlik Ölçümleri

1700 °C’de farklı sürelerde sinterlenen katkısız numuneler ve 1700 °C’de 17 saat sinterlenen katkılı numuneye ait Vickers sertlik ölçümleri **Şekil 4.33**’te verilmiştir. **Şekil 4.33**’den görüldüğü üzere katkısız numunelerde sinterleme süresi 1 saatten 2 saate çıktığında sertlik değeri 1479’dan 1649 Vickers değerine ulaşmaktadır. Sertlik değeri 5 saat ve 10 saat sinterlenen numuneler için de 1650 Vickers dolaylarında iken 17 saat sinterlenen numunede sertlik değeri 1727 Vickers değerine yükselmiştir. 17 saat sinterlenen katkılı numunenin sertlik değeri ortalama 1466 Vickers olarak okunmuştur.



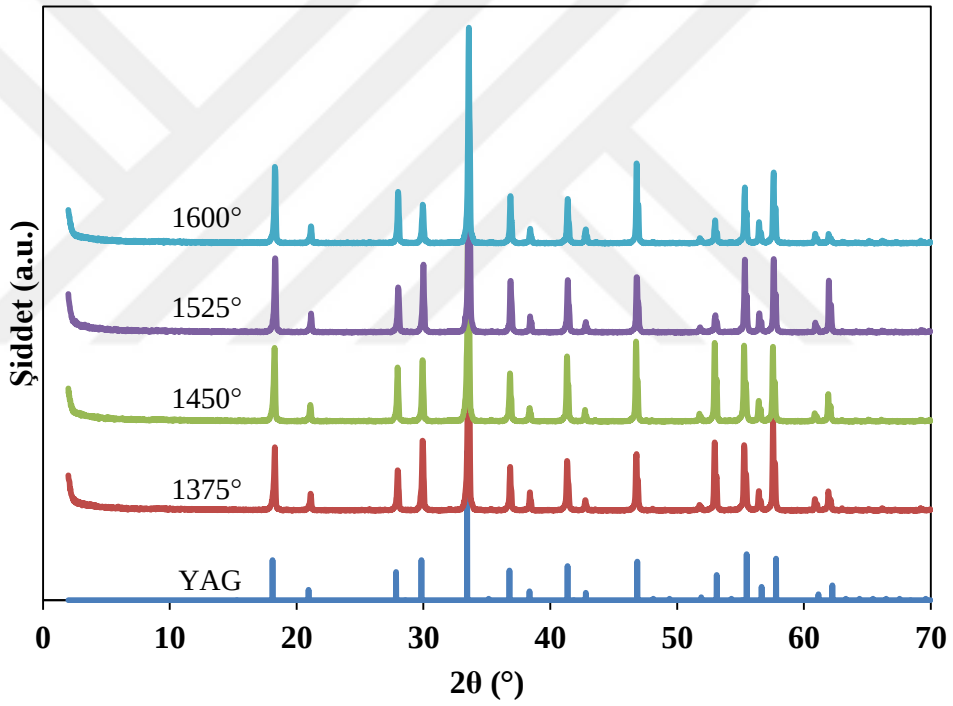
Şekil 4.33: 1700°C’de elde edilen numunelerde sinterleme süresine bağlı olarak numunelerin Vickers sertliğinin değişimi.

4.6. TAVLAMA SICAKLIĞININ ETKİSİ

1700 °C’de 20 saat sinterlenen katkılı numunelere değişik sıcaklıklarda tavlama işlemi uygulanmıştır.

4.6.1. Faz Analizleri

Şekil 4.34’te tavlama işlemi 4 farklı sıcaklıkta gerçekleştirilen numunelere ait XRD paternleri verilmiştir. Tüm paternler, grafiğin en atında verilen 00-033-0040 no’lu standart YAG paterni ile uyum içerisinde. Tüm numunelerde sadece YAG fazi görülmüş olup herhangi bir ikinci faza ait difraksiyon pikleri tespit edilmemiştir.

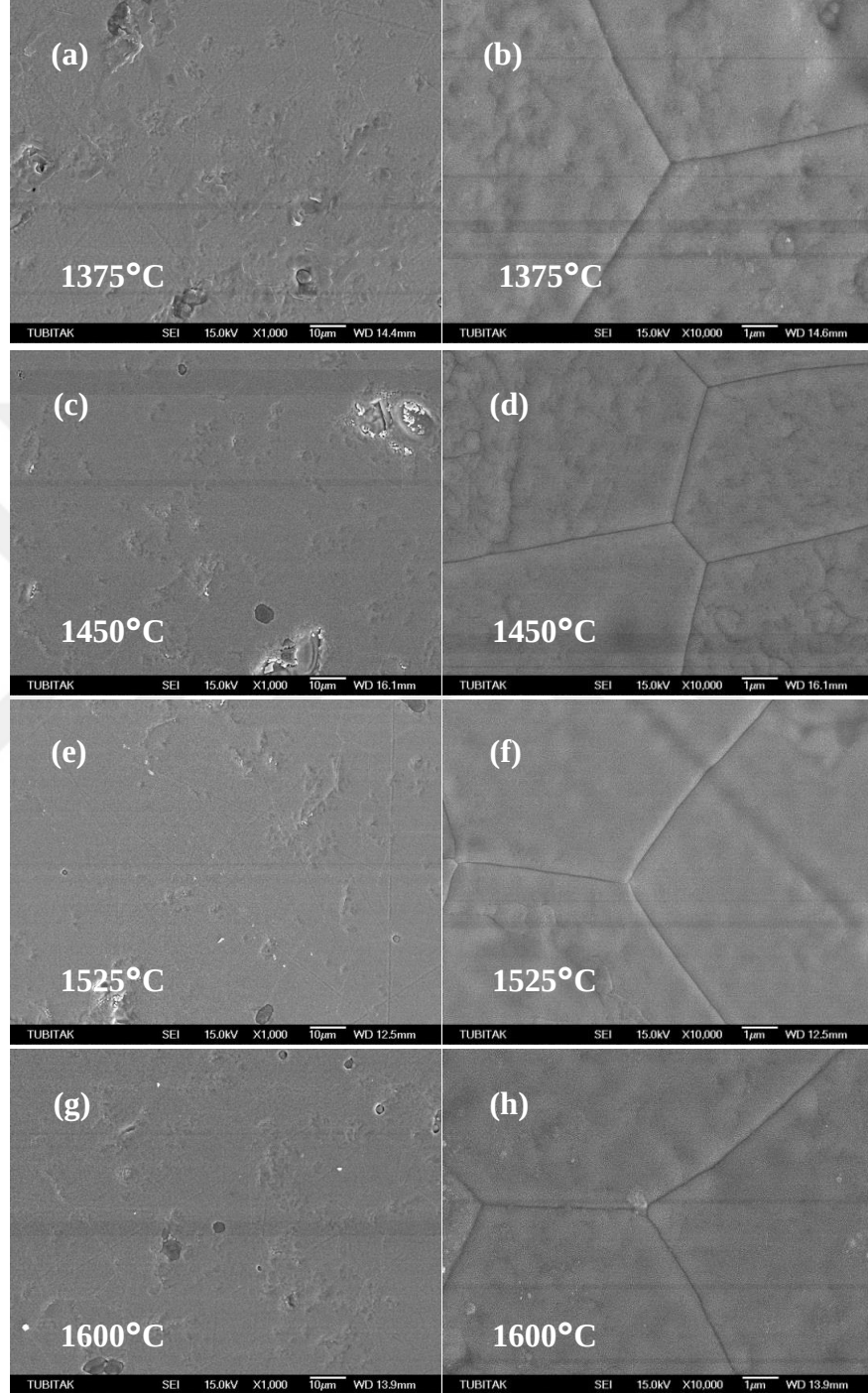


Şekil 4.34: Farklı sıcaklıklarda 10 saat tavlanan numunelere ait XRD paternleri.

4.6.2. Mikroyapı Analizleri

1375-1600 °C arasında 10 saat süreyle tavllanmış numunelerin mikroyapıları Şekil 4.35’te verilmiştir. Soldaki ve sağdaki görüntüler sırasıyla düşük ve yüksek büyütme ölçeklerinde elde edilen SEM görüntülerini göstermektedir. Şekilden artan tavlama sıcaklığının tane boyutunda belirgin değişime neden olmadığı görülmektedir.

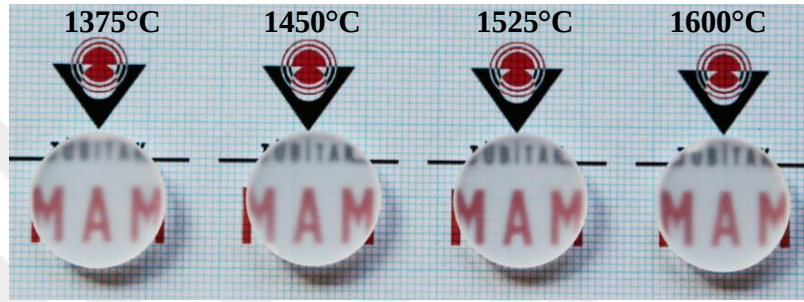
Numunelerin mikroyapıları benzer olup tane boyutlarının yaklaşık 25 μm civarında olduğu tespit edilmiştir.



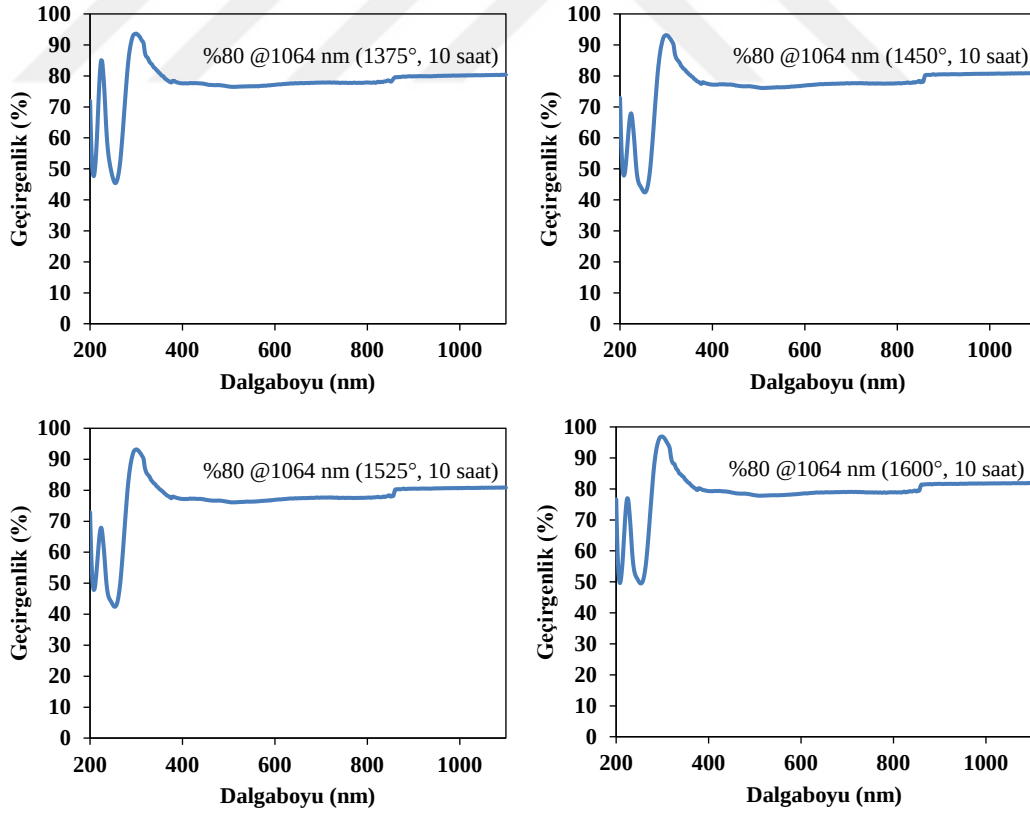
Şekil 4.35: Değişik sıcaklıklarda 10 saat süre ile tavlanmış numunelerin mikroyapı görüntüleri. (a-b) 1375, (c-d) 1450, (e-f) 1525, (g-h) 1600 °C’de tavlanan numunelere ait SEM görüntüleri. (Soldaki görüntüler düşük büyütmede, sağdakiler yüksek büyütmede çekilmiştir.)

4.6.3. Optik Geçirgenlik Ölçümleri

Farklı sıcaklıklarda tavlanan numunelerin parlatma işleminden sonraki fotoğrafları Şekil 4.36’da verilmiştir. Numunelerin optik geçirgenliklerinde gözle görülür bir farklılık gözlenmemiştir. Şekil 4.37’de verilen optik geçirgenlik analizi sonuçları değerlendirildiğinde tavlama sıcaklığının optik geçirgenlik üzerinde bir etkisinin olmadığı sonucuna varılmaktadır. Tüm numunelerin optik geçirgenlikleri 1064 nm dalgaboyunda % 80 civarındadır.



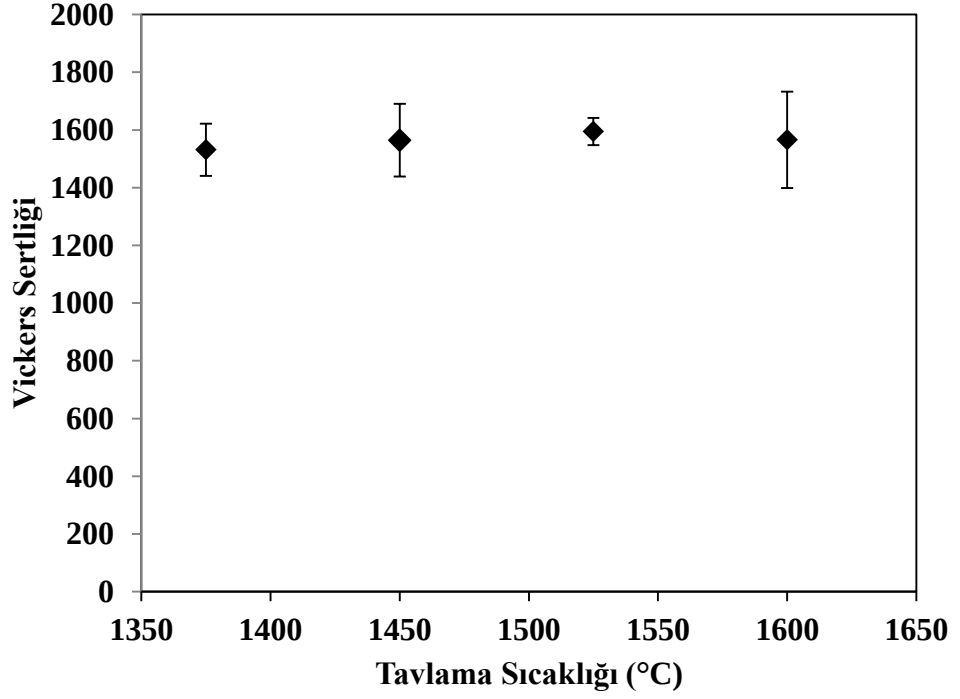
Şekil 4.36: Değişik sıcaklıklarda tavlanan 2,6 mm kalınlığındaki numunelerin görüntüsü.



Şekil 4.37: Değişik sıcaklıklarda tavllanmış numunelerin geçirgenliğinin dalgaboyu ile değişimi.

4.6.4. Sertlik Ölçümleri

Şekil 4.38, 1375, 1450, 1525 ve 1600°C’de tavllanmış numunelerin Vickers sertliğini göstermektedir. Şekil 4.38’den artan tavlama sıcaklığının Vickers sertliği üzerine belirgin bir etkisi bulunmadığı anlaşılmaktadır. Tavllanmış numunelerin sertliklerinin 1550-1600 Vickers aralığında olduğu tespit edilmiştir.



Şekil 4.38: Tavlama sıcaklığının Vickers sertliğine etkisi.

5. TARTIŞMA VE SONUÇ

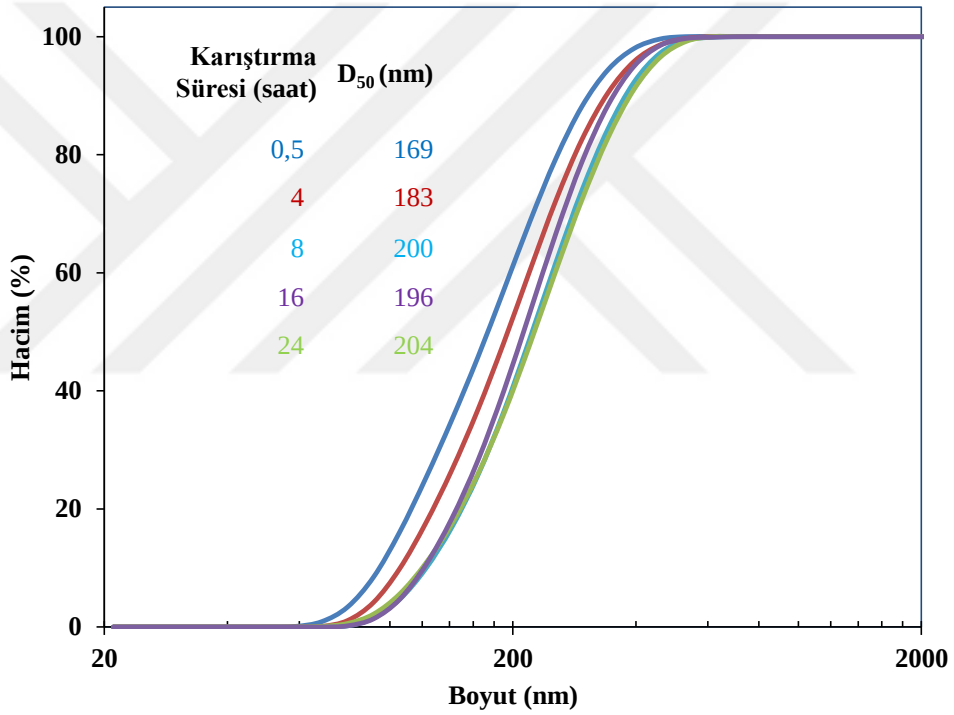
5.1. SİNERLEŞME DAVRANIŞI

5.1.1. Karıştırma Süresinin ve Karıştırma Tekniğinin Sinterleşmeye Etkileri

1700 °C’de hem 1 saat hem de 5 saat süreyle sinterlenen numunelerde elde edilen deneysel bulgular, bilyeli değirmende toz karıştırma süresi arttıkça yoğunlaşmanın 8 saatlik karıştırma süresine kadar arttığını daha sonra esas itibarıyla değişmediğini göstermektedir. Bu durum Al_2O_3 - Y_2O_3 faz diyagramına ve katı-katı reaksiyonların tabiatına bakılarak açıklanabilir. Katı-katı reaksiyonları bileşenlere ait partiküllerin temas noktalarından başlar ve ilerler. İlgili faz diyagramına bakıldığında saf Al_2O_3 ’ün ($T_e=2072$ °C) ve saf Y_2O_3 ’ün ($T_e=2425$ °C) ergime noktaları ulaşılması istenen YAG fazına kıyasla çok daha yüksektir. YAG fazı oluşması durumunda aynı sıcaklıkta ve aynı sürede YAG partikülleri arasında katı faz sinterleşmesinin saf fazlara kıyasla daha hızlı olacağı YAG’ın erime sıcaklığının daha düşük olmasından dolayı beklenmektedir. Mevcut tez çalışmasında başlangıç tozu olarak saf Al_2O_3 ve saf Y_2O_3 oksit toz karışımlarından başlanıldığı için her iki bileşen arasındaki reaksiyon partiküller arası temasın olduğu yerlerden başlar. Eğer karışım homojen olmazsa Al_2O_3 - Al_2O_3 ve Y_2O_3 - Y_2O_3 partikülleri arasında temas fazla olduğundan sinterleşme derecesi ve YAG’a dönüşüm miktarı nispeten daha az olur. Oysa homojen karışım sağlandığında Al_2O_3 - Y_2O_3 partikülleri arasında temas alanı daha fazla olduğundan reaksiyon daha etkin gerçekleşir (daha fazla YAG fazı oluşur) ve böylece yoğunlaşma artar. Nitekim mevcut tez çalışmasında karıştırma süresi arttıkça homojenlik arttığından sinterleşme derecesinin (yoğunluğun) arttığı deneysel olarak tespit edilmiştir.

Turbula karıştırıcıda elde edilen karışımlarda % 100 YAG fazı elde edilmesine rağmen sinter sonrası yoğunluklar bilyalı değirmende elde edilen numunelere kıyasla çok daha düşük kalmıştır. % 100 YAG fazının oluşumu Turbula’da karışımın homojen olduğuna işaret etmektedir. Bilyeli değirmende elde edilen numunelerin yoğunluğunun nispeten yüksek olması tane boyutunda azalma ve mekanik işlemin partiküllerde oluşturduğu hataların getirdiği iç enerjideki artışla açıklanabilir. Bilyeli değirmende değişik

sürelerde karıştırılan tozlarda partikül boyut analizleri yapılmıştır. Partikül boyut dağılım eğrileri **Şekil 5.1**'de verilmiştir. Şekilden görüldüğü üzere ortalama partikül boyutları ve boyut dağılımında önemli bir değişiklik gözlenmemiştir. Bu bakımdan etanol içeren bilyeli değirmende tozlarda etkin öğütme olmamıştır. Fakat, agregaların parçalandığı ve bilyeli değirmende partiküllerin iç enerjisinin bilyelerin partiküllere çarpması neticesinde arttığı ifade edilebilir. İç enerjideki artış partikül yüzeylerinde mikro çatlaklar, mikro gerilmeler gibi etkenler sayesinde oluşabilmektedir. Değirmende elde edilen tozlardaki enerji artışı ve agregaların parçalanması sinterleme için itici güç oluşturmakta ve yoğunluğun artmasına neden olmaktadır.



Şekil 5.1: Bilyeli değirmende değişik süreler karıştırılan tozların partikül boyut dağılım eğrileri.

5.1.2. Pres Basıncının Yoğunluğa Etkisi

Pres basıncı arttıkça ham yoğunluğun artmasının nedeni aşağıdaki şekilde açıklanabilir. Artan pres basıncı ile partiküller arası boşluklar, sıkıştırmanın etkisiyle partiküllerin hareketi neticesinde azalmaktadır. Bu da ham yoğunluğun artmasına neden olmaktadır. Fakat 200-400 MPa aralığında sinter sonrası elde edilen yoğunluklarda pres basıncının etkisi görülmemiştir. Toz karışımına ilave edilen sinter katkısıyla, ham yoğunlukları

fark olan numunelerin sinterleme sonrasında yoğunluklarında farklılık görülmemiştir. Sinter katkısının sinterlemeye etkisi sonraki bölümde tartışılacaktır. 400 MPa presin üst çalışma sınırına yakın olduğu için, 200 MPa ise sinter katkısı içermeyen numuneler için düşük bulunduğundan optimum pres basıncı 300 MPa olarak seçilmiştir.

5.1.3. Sıcaklığın, Sürenin ve Sinter Katkısının Yoğunlaşmaya Etkileri

Sinterleme sıcaklığı arttıkça ilk aşamada partiküller arasında boyun oluşumu ve büyümesi olmaktadır. Boyun oluşumu sırasında Al_2O_3 ve Y_2O_3 partikülleri arasında katı-katı reaksiyonu sonucu YAG fazı oluşmaya başlamaktadır. Sinter sıcaklığı arttığında boyun oluşumu ve büyümesi daha kısa sürelerde gerçekleşmektedir. Boyun oluşumuyla beraber gözeneklerin boyutu ve şekli değişmektedir. Sıcaklık arttıkça gözeneklerin atmosferle bağlantısı artan yoğunlaşma neticesinde azalmakta ve yoğunlaşma devam ettikçe yuvarlak, kapalı boşluklar ortaya çıkmakta, sıcaklık ve süre yeterli ise bu boşluklar kaybolmaktadır. Bahsedilen tüm bu olaylar ancak atomların veya iyonların difüzyonu neticesinde gerçekleşmektedir. Malzeme taşınımı tane içinde, partikül yüzeyinde ve tane sınırlarında olmaktadır. 1500-1700 °C’de yapılan 5 saat sinterleme deneylerinde sıcaklık arttıkça difüzyon hızlandığından (malzeme taşınımı arttığından) hem sinter katkılı hem de sinter katkısız numunelerde teorik yoğunluğa ulaşılmıştır.

1700 °C’de 5 saat sinterlenen numunelerde sinter katkısının etkisi görülmemiştir. Ancak düşük sıcaklıklarda sinter katkısının yoğunlaşmayı arttırdığı ve tam yoğunlaşmanın olduğu sıcaklığı düşürdüğü tespit edilmiştir. Sinter katkısının yoğunlaşmayı olumlu etkilediği yapılan bu çalışmalardan anlaşılmıştır. Sinter katkısıyla sinterleme sırasında malzeme içinde oluşan az miktarda sıvı faz sayesinde malzeme taşınımı nispeten daha kolay olduğundan boşluklar azalmakta ve daha düşük sıcaklıkta (1600 °C) 5 saat içinde % 100 yoğunluğa erişilmektedir. 1700 °C’de sinter katkısı etkisinin görülmemesinin nedeni sıcaklığın çok yüksek olması ve katkısız da olsa % 100 yoğunlukta numunelerin elde edilmesidir.

Hem katkılı hem de katkısız numunelerde 1700 °C’de yapılan sinterleme çalışmaları sinter süresi arttıkça yoğunluğun arttığını göstermiştir. Sinter süresi arttıkça difüzyon yoluyla taşınan malzeme miktarı arttığından yoğunlaşma da artmaktadır. Sinter

katkısıyla oluşan sıvı faz nedeniyle sinterleşme daha hızlı gerçekleşmekte ve katkısız numunelere kıyasla daha kısa sürelerde yüksek yoğunluklara erişilmektedir.

5.2. SERTLİK VE MİKROYAPI

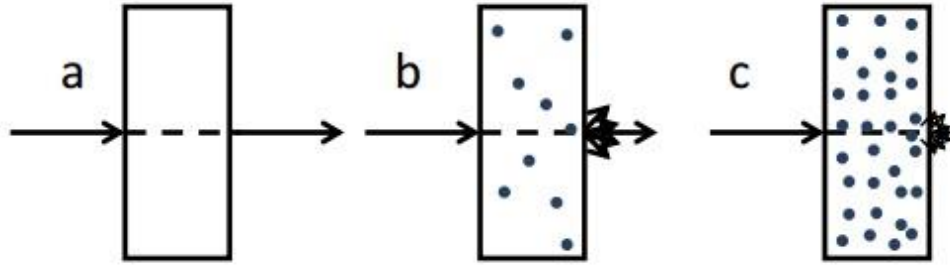
Sinterlenen numunelerde sertlik ve mikroyapı (gözenek, tane boyutu) ilişkileri aşağıdaki şekilde özetlenebilir. Sinter katkısı içermeyen numunelerde sıcaklık ve süreyle yoğunlaşma arttığı (gözenek azalmakta) için sertlikte artış (maks. 1686 ± 127 HV) olmaktadır. Benzer eğilim sinter katkısı içeren numunelerde de görülmektedir. % 100 yoğunluk değerlerine ulaşıldıktan sonra taneler kabalaştığından dolayı sertlikte az da olsa düşüş gözlenmiştir. 1700°C 'de sinter katkısı içeren (tane boyutu yaklaşık $11\ \mu\text{m}$) ve içermeyen (tane boyutu yaklaşık $2\ \mu\text{m}$) teorik yoğunluktaki numuneler kıyaslanırsa, katkılı numunenin sertliğinin (1547 ± 40 HV) katkısız numunenin sertliğinden (1686 ± 127 HV) daha düşük olduğu görülmektedir. Aynı sıcaklık ve sürede sinterlenen numuneler için ise tozların karıştırma süresi arttıkça numunelerin sinter sonrası yoğunlukları artmakta dolayısı ile sertlik değerleri de yükselmektedir. Turbula ile karıştırılan numuneler sinter sonrası fazla boşluk ihtiva ettiğinden sertlik değerleri (802 ± 185 HV) düşük çıkmıştır.

5.3. OPTİK GEÇİRGENLİK (SAYDAMLIK)

Saydamlık, malzemelerin içlerinden ışığın geçmesine imkan verme yeteneği olarak tanımlanabilir (Şekil 5.2 a). Malzemeler içlerinde, gelen ışığın dağılmasına, saçılmasına veya kırılmasına neden olan ışık saçılma kaynakları ihtiva ederler. Malzeme içerisinde ışık saçılma noktaları olmasına ve gelen ışık ışınlarının malzeme içerisinde kırılmasına rağmen bir kısmı malzeme içerisinden geçebiliyorsa malzeme yarı saydam olarak adlandırılır (Şekil 5.2 b). Malzeme içerisinde ve yüzeylerinde ışık saçılma noktalarının yoğunluğunun çok fazla olması durumunda gelen ışık ışınının tamamının saçılmasına neden olan malzemeler ise opak malzemeler olarak adlandırılmaktadır (Şekil 5.2 c) [134].

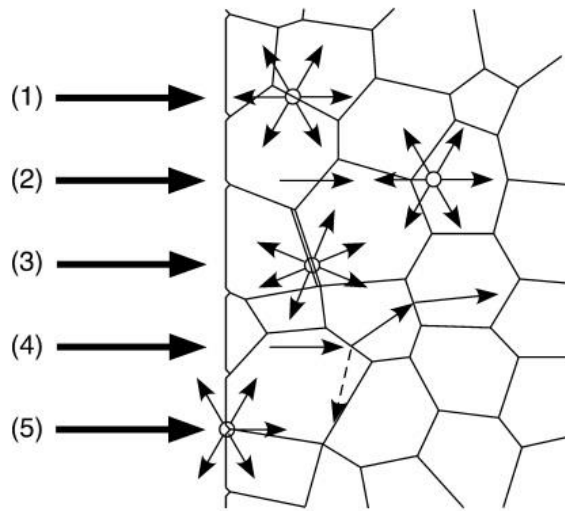
Bu tez çalışmasında geçirgenlik ölçümleri ve gözle yapılan muayeneler opak, yarı saydam ve saydam nitelikte numuneler elde edildiğini göstermiştir. Sinter sonrası yoğunluk arttıkça optik geçirgenlikte artış olduğu ortaya konulmuştur. Yoğunluğun

artan sinter sıcaklığı ve süreyle arttığı dolayısıyla saydamlığın da arttığı tespit edilmiştir. Ayrıca Turbula karıştırıcı yerine bilyeli değirmen kullanmanın, tez çalışmasında kullanılan tozlar için, optik geçirgenlik açısından gerekli olduğu kanaatine varılmıştır. Benzer şekilde sinter katkısının da optik geçirgenliği, yoğunluğu artırdığından dolayı, artırdığı ortaya konulmuştur.



Şekil 5.2: (a) saydam, (b) yarı saydam, (c) opak malzemedeki ışık yayılımı [134].

Çok kristalli saydam seramik malzeme üretmek için, malzeme içerisindeki kusurların en aza indirilmesi gerekmektedir. Aksi takdirde bu kusurlar malzemenin kalitesini ve optik geçirgenliğini düşürmektedir. Çok kristalli seramiklerde **Şekil 5.3**'te gösterildiği üzere ışık saçılma kaynakları şu şekildedir: 1) tane sınırları, 2) kalıntı gözenekler, 3) ikincil fazlar, 4) çift kırınım, 5) yüzey pürüzlülüğü [135].



Şekil 5.3: Çok kristalli seramiklerde ışık saçılma kaynakları [135].

Al_2O_3 ve Y_2O_3 'ün reaksiyonundan YAG fazının katı-katı reaksiyonu neticesinde tam dönüşümle oluşması ve numunenin sadece kübik kristal yapıya sahip YAG fazından oluşması saydamlık için gereklidir. Bu bakımdan numune içerisinde ikincil fazların oluşumunun ya da Al_2O_3 veya Y_2O_3 'ün reaksiyona girmeden yapıda kalmasının önüne geçmek için stokiometrik tartımların çok hassas yapılması gerekmektedir [136]. Bu tez çalışmasında elde edilen numunelerin tamamında YAG fazı elde edilmiştir. Fakat sonuçların gösterdiği gibi tek YAG fazlı numuneler elde etmek saydamlık için tek başına yeterli değildir. Tek faz YAG oluşumunun yanı sıra numune gözeneksiz yapıda elde edilmelidir. Tane içerisindeki ya da tane sınırlarındaki gözenekler, gelen ışığın dağılmadan malzeme içerisinden geçmesi önündeki en büyük engellerden biridir. Bu nedenle malzeme içerisindeki kalıntı boşlukların 150 ppm'den az olması gerekir [137]. Kalıntı gözeneklerin en büyük sebepleri sinter sıcaklığı ve süresinin yetersiz olmasıdır. Ancak, sinterleme süresi ve sıcaklığı yüksek olsa bile karıştırmanın iyi olmaması, Turbula karıştırıcı durumunda olduğu gibi, nedeniyle saydam numuneler elde edilememektedir. Diğer yandan nanometre boyutlarındaki tozlar kolaylıkla topaklanabilmektedir. Bu durum, tozların şekillendirilmesi sırasında homojensizliklere hatta sinterleme sırasında kalıntı gözeneklerin oluşmasına neden olmaktadır [138]. Deneysel bulgular, az miktarda öğütmenin, topak gidermenin ve karıştırmanın nispeten iyi olduğu bilyeli değirmende, 1700 °C'de 17 saat sinterlemeyle katkısız karışımlardan optik geçirgenliği iyi (% 70), saydam numunelerin elde edilebileceğini göstermiştir. Sinter katkısıyla saydamlığın daha da arttığı (geçirgenlik değerinin % 80 seviyelerine ulaştığı) bu tez kapsamında yapılan çalışmalarla ortaya konulmuştur.

5.4. GENEL SONUÇLAR

- Çalışılan tüm şartlarda stokiometrik oranda karıştırılan Al_2O_3 ve Y_2O_3 toz karışımlarda sinterleme sonucu sadece YAG fazı elde edilmiştir.
- Bilyeli değirmende karıştırma süresi arttıkça sinter yoğunluğu artmış ve teorik yoğunluğa erişilmiştir. Turbula karıştırıcıdan elde edilen toz karışımlar kullanıldığında ise sinter sonrası yoğunluklar nispeten teorik yoğunluğun altında düşük seviyelerde kalmıştır. Aradaki farkın, bilyeli değirmende agregaların etkin bir şekilde giderilmesi ve bilyelerin partiküllere çarpması sonucu tozun iç enerjisinin artması neticesinde ortaya çıktığı sonucuna varılmıştır.
- Sinter sıcaklığı arttıkça yoğunluk artmış, sinter katkısız numunelerde 1700 °C'de 5 saat içinde teorik yoğunluğa erişilmiştir. Sinter katkılı numunelerde sinterleme sırasında oluşan sıvı faz içinde malzeme taşınımı arttığından dolayı, daha düşük sıcaklıkta (1600 °C) 5 saat içinde teorik yoğunluğa erişilmiştir.
- Sinter süresi arttıkça yoğunluk artmıştır. Katkısız numunelerde 1700 °C'de 5 saat içinde katkılı numunelerde ise 2 saat içinde teorik yoğunluğa ulaşılmıştır.
- Sinter yoğunluğu arttıkça tane boyutu artmıştır. Numune içindeki gözenekler azaldığından dolayı malzemenin sertliğinde artış gözlenmiştir. Ancak teorik yoğunluğa erişildikten sonra sinterleme sıcaklığı ve süre arttırıldığında tane büyümesi olduğundan dolayı malzemenin sertliğinde biraz düşüş gözlenmiştir. Benzer şekilde sinter katkısı tane büyümesine neden olduğu için katkısız numuneye kıyasla katkılı numunenin Vickers sertlik değerinde düşüş olmuştur.
- Turbula karıştırıcıda elde edilen numuneler yetersiz yoğunlaşmadan dolayı opak (ışık geçirmez) görünüm sergilemiştir.
- Bilyeli değirmenden elde edilen karışımlar sinter sıcaklığı ve süresi arttıkça gözenekler azaldığı için optik geçirgenlik artmıştır. Teorik yoğunluğa sahip numuneler tam saydam görünüm (optik geçirgenlik maksimum % 80) göstermiştir.

KAYNAKLAR

- [1]. Nassau, K. and L.G. Van Uitert, *Preparation of Large Calcium-Tungstate Crystals Containing Paramagnetic Ions for Maser Applications*. Journal of Applied Physics, 1960. **31**(8): p. 1508-1508.
- [2]. W. Bardsley, B.C., J. Phys. Chem. Sol, 1967: p. 109.
- [3]. Ikesue, A., I. Furusato, and K. Kamata, *Fabrication of Polycrystal line, Transparent YAG Ceramics by a Solid-State Reaction Method*. Journal of the American Ceramic Society, 1995. **78**(1): p. 225-228.
- [4]. Lu, J., et al., *Production of Yttrium Aluminum Garnet Fine Powder*. 1998.
- [5]. Kravchenko, V.B., Y.L. Kopylov, and V.A. Kotel'nikov, 3 - *Oxide laser ceramics A2 - Denker, B*, in *Handbook of Solid-State Lasers*, E. Shklovsky, Editor. 2013, Woodhead Publishing. p. 54-81.
- [6]. Wang, S.F., et al., *Transparent ceramics: Processing, materials and applications*. Progress in Solid State Chemistry, 2013. **41**(1–2): p. 20-54.
- [7]. Esposito, L., et al., *Experimental features affecting the transparency of YAG ceramics*. Optical Materials, 2011. **33**(5): p. 713-721.
- [8]. Li, C.-q., et al., *Fabrication of transparent YAG ceramics by traditional solid-state-reaction method*. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2007. **17**(1): p. 148-153.
- [9]. Ikesue, A., *Polycrystalline Nd:YAG ceramics lasers*. Optical Materials, 2002. **19**(1): p. 183-187.
- [10]. Walsh, B.M., et al., *Spectroscopic characterization of Nd:Y₂O₃: application toward a differential absorption lidar system for remote sensing of ozone*. Journal of the Optical Society of America B, 2002. **19**(12): p. 2893-2903.
- [11]. Xu, G., et al., *Preparation of highly dispersed YAG nano-sized powder by co-precipitation method*. Materials Letters, 2006. **60**(7): p. 962-965.
- [12]. Menzer, G., *Die Kristallstruktur von Granat*. Z. Kristallogr., 1926. **63**: p. 157-58.
- [13]. Hurrell, J.P., et al., *Optical Phonons of Yttrium Aluminum Garnet*. Physical Review, 1968. **173**(3): p. 851-856.

- [14]. Huang, Z., J. Feng, and W. Pan, *Elastic properties of YAG: First-principles calculation and experimental investigation*. Solid State Sciences, 2012. **14**(9): p. 1327-1332.
- [15]. Abell, J.S., et al., *An investigation of phase stability in the Y_2O_3 - Al_2O_3 system*. Journal of Materials Science, 1974. **9**(4): p. 527-537.
- [16]. Warshaw, I. and R. Roy, *Stable and Metastable Equilibria in the Systems Y_2O_3 - Al_2O_3 , and Gd_2O_3 - Fe_2O_3* . Journal of the American Ceramic Society, 1959. **42**(9): p. 434-438.
- [17]. Taparov, N.A., *Izv. Akad. Nauk. SSSR. Ser. Khim.*, 1969. **7**: p. 1158.
- [18]. Noguchi, M.M.a.T., *Rep. Gov. Ind. Res. Inst. of Nagoya*, 1967. **16**: p. 171.
- [19]. Caslavsky, J. and D. Viechnicki, *Melting behaviour and metastability of yttrium aluminium garnet (YAG) and $YAlO_3$ determined by optical differential thermal analysis*. Journal of Materials Science, 1980. **15**(7): p. 1709-1718.
- [20]. Yagi, H., et al., *The physical properties of transparent $Y_3Al_5O_{12}$: Elastic modulus at high temperature and thermal conductivity at low temperature*. Ceramics International, 2007. **33**(5): p. 711-714.
- [21]. Kong, L.B., et al., *Transparent Ceramics*. Transparent Ceramic Materials: p. 29-91.
- [22]. Wells, A.F., *Structural inorganic chemistry*. 2012: Oxford University Press.
- [23]. Kinsman, K.M., et al., *Phase Development and Luminescence in Chromium-Doped Yttrium Aluminum Garnet (YAG:Cr) Phosphors*. Journal of the American Ceramic Society, 1994. **77**(11): p. 2866-2872.
- [24]. Liu, Q., et al., *Solid-state reactive sintering of YAG transparent ceramics for optical applications*. Journal of Alloys and Compounds, 2014. **616**: p. 81-88.
- [25]. Ikesue, A., Y.L. Aung, and V. Lupei, *Ceramic Lasers*. 2013: Cambridge University Press.
- [26]. Pamplin, B.R., *Crystal Growth*. 1980: Pergamon Press.
- [27]. Czochralski, J., *Z. Phys. Chem.*, 1918. **92**: p. 219.
- [28]. Cochet-Muchy, D., *Growth of piezoelectric crystals by Czochralski method*. Le Journal de Physique IV, 1994. **4**(C2): p. C2-33-C2-45.
- [29]. Li, B., *Solidification processing of materials in magnetic fields*. JOM-e, 1998. **50**(2): p. 1-10.

- [30]. Greskovich, C. and K.N. Woods, *Fabrication of Transparent ThO₂-Doped Y₂O₃*. Ceramic Bulletin, 1973. **52**(5): p. 473-478.
- [31]. de With, G. and H.J.A. van Dijk, *Translucent Y₃Al₅O₁₂ ceramics*. Materials Research Bulletin, 1984. **19**(12): p. 1669-1674.
- [32]. Mulder, C.A.M. and G. de With, *Translucent Y₃Al₅O₁₂ ceramics: Electron microscopy characterization*. Solid State Ionics, 1985. **16**: p. 81-86.
- [33]. Ikesue, A., et al., *Fabrication and Optical Properties of High-Performance Polycrystalline Nd:YAG Ceramics for Solid-State Lasers*. Journal of the American Ceramic Society, 1995. **78**(4): p. 1033-1040.
- [34]. Pereira, P.F.S., et al., *Microwave synthesis of YAG:Eu by sol-gel methodology*. Journal of Luminescence, 2007. **126**(2): p. 378-382.
- [35]. Fujioka, K., et al., *Luminescence properties of highly Cr co-doped Nd:YAG powder produced by sol-gel method*. Journal of Luminescence, 2010. **130**(3): p. 455-459.
- [36]. Hassanzadeh-Tabrizi, S.A., *Low temperature synthesis and luminescence properties of YAG: Eu nanopowders prepared by modified sol-gel method*. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2011. **21**(11): p. 2443-2447.
- [37]. Su, J., et al., *Phase transition, structure and luminescence of Eu:YAG nanophosphors by co-precipitation method*. Journal of Alloys and Compounds, 2009. **470**(1-2): p. 306-310.
- [38]. Li, X., et al., *Synthesis of Nd³⁺ doped nano-crystalline yttrium aluminum garnet (YAG) powders leading to transparent ceramic*. Optical Materials, 2007. **29**(5): p. 528-531.
- [39]. Xia, G., et al., *Structural and optical properties of YAG:Ce³⁺ phosphors by sol-gel combustion method*. Journal of Crystal Growth, 2005. **279**(3-4): p. 357-362.
- [40]. Li, J., et al., *Synthesis of nanosized Nd:YAG powders via gel combustion*. Ceramics International, 2007. **33**(6): p. 1047-1052.
- [41]. Yang, H., et al., *Luminescent properties of YAG:Ce³⁺ phosphor powders prepared by hydrothermal-homogeneous precipitation method*. Materials Letters, 2009. **63**(27): p. 2271-2273.
- [42]. Hakuta, Y., et al., *Continuous production of phosphor YAG:Tb nanoparticles by hydrothermal synthesis in supercritical water*. Materials Research Bulletin, 2003. **38**(7): p. 1257-1265.
- [43]. Li, X., et al., *YAG:Ce nano-sized phosphor particles prepared by a solvothermal method*. Materials Research Bulletin, 2004. **39**(12): p. 1923-1930.

- [44]. Zhang, X., et al., *Synthesis of monodisperse and spherical YAG nanopowder by a mixed solvothermal method*. Journal of Alloys and Compounds, 2004. **372**(1–2): p. 300-303.
- [45]. Zhang, X., et al., *Novel synthesis of YAG by solvothermal method*. Journal of Crystal Growth, 2005. **275**(1–2): p. e1913-e1917.
- [46]. Wu, Z., et al., *Preparation of YAG:Ce spheroidal phase-pure particles by solvothermal method and their photoluminescence*. Journal of Alloys and Compounds, 2009. **468**(1–2): p. 571-574.
- [47]. Inoue, M., et al., *Synthesis of Yttrium Aluminum Garnet by the Glycothermal Method*. Journal of the American Ceramic Society, 1991. **74**(6): p. 1452-1454.
- [48]. Hassanzadeh-Tabrizi, S.A., *Synthesis and luminescence properties of YAG:Ce nanopowder prepared by the Pechini method*. Advanced Powder Technology, 2012. **23**(3): p. 324-327.
- [49]. Roy, S., et al., *Synthesis of YAG phase by a citrate–nitrate combustion technique*. Materials Letters, 1999. **39**(3): p. 138-141.
- [50]. Liu, C.-j., et al., *Crystallization, morphology and luminescent properties of YAG:Ce³⁺ phosphor powder prepared by polyacrylamide gel method*. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2007. **17**(5): p. 1093-1099.
- [51]. Zhou, Y.H., et al., *Morphology control and luminescence properties of YAG:Eu phosphors prepared by spray pyrolysis*. Materials Research Bulletin, 2003. **38**(8): p. 1289-1299.
- [52]. Kang, Y.C., et al., *YAG:Ce phosphor particles prepared by ultrasonic spray pyrolysis*. Materials Research Bulletin, 2000. **35**(5): p. 789-798.
- [53]. Fujioka, K., et al., *Pre-evaluation method for the spectroscopic properties of YAG bulk materials by sol–gel synthetic YAG powder*. Ceramics International, 2009. **35**(6): p. 2393-2399.
- [54]. Manalart, R. and M.N. Rahaman, *Sol-gel processing and sintering of yttrium aluminum garnet (YAG) powders*. Journal of Materials Science, 1996. **31**(13): p. 3453-3458.
- [55]. Li, J., et al., *Co-precipitation synthesis route to yttrium aluminum garnet (YAG) transparent ceramics*. Journal of the European Ceramic Society, 2012. **32**(11): p. 2971-2979.
- [56]. Xia, G., et al., *Sol–gel combustion synthesis and luminescent properties of nanocrystalline YAG:Eu³⁺ phosphors*. Journal of Crystal Growth, 2005. **283**(1–2): p. 257-262.

- [57]. Geçkinli, A.E., *İleri teknoloji malzemeleri*. 1991: İstanbul Teknik Üniversitesi.
- [58]. Li, J., et al., *Densification and optical properties of transparent Ho:YAG ceramics*. Optical Materials, 2013. **35**(4): p. 748-752.
- [59]. Lewis, J.A., *Colloidal Processing of Ceramics*. Journal of the American Ceramic Society, 2000. **83**(10): p. 2341-2359.
- [60]. Appiagyei, K.A., G.L. Messing, and J.Q. Dumm, *Aqueous slip casting of transparent yttrium aluminum garnet (YAG) ceramics*. Ceramics International, 2008. **34**(5): p. 1309-1313.
- [61]. Young, A.C., et al., *Gelcasting of Alumina*. Journal of the American Ceramic Society, 1991. **74**(3): p. 612-618.
- [62]. Bengisu, M. and E. Yilmaz, *Gelcasting of alumina and zirconia using chitosan gels*. Ceramics International, 2002. **28**(4): p. 431-438.
- [63]. Zhang, J., et al., *Gelcasting and pressureless sintering of silicon carbide ceramics using Al_2O_3 - Y_2O_3 as the sintering additives*. Journal of the European Ceramic Society, 2013. **33**(10): p. 1695-1699.
- [64]. Dong, M., et al., *Gelcasting of SiC using epoxy resin as gel former*. Ceramics International, 2009. **35**(4): p. 1363-1366.
- [65]. Mao, X., S. Shimai, and S. Wang, *Gelcasting of alumina foams consolidated by epoxy resin*. Journal of the European Ceramic Society, 2008. **28**(1): p. 217-222.
- [66]. Yang, J., J. Yu, and Y. Huang, *Recent developments in gelcasting of ceramics*. Journal of the European Ceramic Society, 2011. **31**(14): p. 2569-2591.
- [67]. Gilissen, R., et al., *Gelcasting, a near net shape technique*. Materials & Design, 2000. **21**(4): p. 251-257.
- [68]. Qin, X., et al., *Gelcasting of transparent YAG ceramics by a new gelling system*. Ceramics International, 2014. **40**(8, Part B): p. 12745-12750.
- [69]. Sun, Y., et al., *Gelcasting and reactive sintering of sheet-like YAG transparent ceramics*. Journal of Alloys and Compounds, 2015. **652**: p. 250-253.
- [70]. Ba, X., et al., *Comparison of aqueous- and non-aqueous-based tape casting for preparing YAG transparent ceramics*. Journal of Alloys and Compounds, 2013. **577**: p. 228-231.
- [71]. Howatt, G., R. Breckenridge, and J. Brownlow, *Fabrication of thin ceramic sheets for capacitors**. Journal of the American Ceramic Society, 1947. **30**(8): p. 237-242.

- [72]. Kim, S., et al., *Dielectric properties of ferroelectric (Ba_{0.6}Sr_{0.4})TiO₃ thick films prepared by tape-casting*. Journal of Electroceramics, 2006. **17**(2-4): p. 451-454.
- [73]. Fries, R. and A.J. Moulson, *Fabrication and properties of an anisotropic PZT/polymer 0–3 composite*. Journal of Materials Science: Materials in Electronics, 1994. **5**(4): p. 238-243.
- [74]. Wang, Z., et al., *A study of multilayer tape casting method for anode-supported planar type solid oxide fuel cells (SOFCs)*. Journal of Alloys and Compounds, 2007. **437**(1–2): p. 264-268.
- [75]. Belmonte, M., *Advanced Ceramic Materials for High Temperature Applications*. Advanced Engineering Materials, 2006. **8**(8): p. 693-703.
- [76]. Hu, X.B., B.Y. Zhao, and K.A. Hu, *A novel fabrication of doped C/C composite laminations by aqueous tape casting*. Acta Materialia, 2004. **52**(2): p. 467-473.
- [77]. Pagnoux, C., et al., *Aqueous suspensions for tape-casting based on acrylic binders*. Journal of the European Ceramic Society, 1998. **18**(3): p. 241-247.
- [78]. Moreno, R., *The role of slip additives in tape-casting technology. I: Solvents and dispersants*. American Ceramic Society Bulletin, 1992. **71**(10): p. 1521-1531.
- [79]. Moreno, R., *The role of slip additives in tape casting technology. II: Binders and plasticizers*. American Ceramic Society Bulletin, 1992. **71**(11): p. 1647-1657.
- [80]. Ba, X., et al., *Transparent Y₃Al₅O₁₂ ceramics produced by an aqueous tape casting method*. Ceramics International, 2013. **39**(4): p. 4639-4643.
- [81]. Zhou, J., et al., *Fabrication, microstructure and optical properties of polycrystalline Er³⁺:Y₃Al₅O₁₂ ceramics*. Ceramics International, 2011. **37**(1): p. 119-125.
- [82]. Kochawattana, S., et al., *Sintering and grain growth in SiO₂ doped Nd:YAG*. Journal of the European Ceramic Society, 2008. **28**(7): p. 1527-1534.
- [83]. Wang, F.F., *Ceramic Fabrication Processes: Treatise on Materials Science and Technology*. Vol. 9. 2013: Elsevier.
- [84]. Stuer, M., et al., *Transparent polycrystalline alumina using spark plasma sintering: Effect of Mg, Y and La doping*. Journal of the European Ceramic Society, 2010. **30**(6): p. 1335-1343.
- [85]. Chaim, R., R. Marder, and C. Estournès, *Optically transparent ceramics by spark plasma sintering of oxide nanoparticles*. Scripta Materialia, 2010. **63**(2): p. 211-214.

- [86]. An, L., A. Ito, and T. Goto, *Two-step pressure sintering of transparent lutetium oxide by spark plasma sintering*. Journal of the European Ceramic Society, 2011. **31**(9): p. 1597-1602.
- [87]. Kim, B.-N., et al., *Effects of heating rate on microstructure and transparency of spark-plasma-sintered alumina*. Journal of the European Ceramic Society, 2009. **29**(2): p. 323-327.
- [88]. Shen, Z., et al., *Spark Plasma Sintering of Alumina*. Journal of the American Ceramic Society, 2002. **85**(8): p. 1921-1927.
- [89]. Chaim, R., R. Marder-Jaeckel, and J.Z. Shen, *Transparent YAG ceramics by surface softening of nanoparticles in spark plasma sintering*. Materials Science and Engineering: A, 2006. **429**(1–2): p. 74-78.
- [90]. Chaim, R., M. Kalina, and J.Z. Shen, *Transparent yttrium aluminum garnet (YAG) ceramics by spark plasma sintering*. Journal of the European Ceramic Society, 2007. **27**(11): p. 3331-3337.
- [91]. Chaim, R., A. Shlayer, and C. Estournes, *Densification of nanocrystalline Y_2O_3 ceramic powder by spark plasma sintering*. Journal of the European Ceramic Society, 2009. **29**(1): p. 91-98.
- [92]. Zhang, H., et al., *Optical Properties and Microstructure of Nanocrystalline Cubic Zirconia Prepared by High-Pressure Spark Plasma Sintering*. Journal of the American Ceramic Society, 2011. **94**(9): p. 2981-2986.
- [93]. An, L., A. Ito, and T. Goto, *Fabrication of Transparent Lutetium Oxide by Spark Plasma Sintering*. Journal of the American Ceramic Society, 2011. **94**(3): p. 695-698.
- [94]. Zhang, G., et al., *Transparent mullite ceramic from single-phase gel by Spark Plasma Sintering*. Journal of the European Ceramic Society, 2009. **29**(13): p. 2705-2711.
- [95]. Chaim, R., Z. Shen, and M. Nygren, *Transparent nanocrystalline MgO by rapid and low-temperature spark plasma sintering*. Journal of materials research, 2004. **19**(09): p. 2527-2531.
- [96]. Yan, X., F. Zhengyi, and W. Yucheng, *Fabrication of transparent AlN ceramics by spark plasma sintering*. Chinese Journal of Materials Research, 2005. **19**(5): p. 555-560.
- [97]. Watanabe, Y., et al., *Fabrication of Transparent Hydroxyapatite Sintered Body with High Crystal Orientation by Pulse Electric Current Sintering*. Journal of the American Ceramic Society, 2005. **88**(1): p. 243-245.

- [98]. Zhou, L., et al., *Preparation and Properties of Lead Zirconate Stannate Titanate Sintered by Spark Plasma Sintering*. Journal of the American Ceramic Society, 2004. **87**(4): p. 606-611.
- [99]. Wu, Y.J., et al., *Spark plasma sintering of transparent $PbZrO_3$ - $PbTiO_3$ - $Pb(Zn_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ ceramics*. Japanese journal of applied physics, 2002. **41**(2B): p. L219.
- [100]. Wu, Y.J., et al., *Effects of Preparation Conditions on the Structural and Optical Properties of Spark Plasma-Sintered PLZT (8/65/35) Ceramics*. Journal of the American Ceramic Society, 2005. **88**(12): p. 3327-3331.
- [101]. Fang, Y., et al., *Fabrication of transparent hydroxyapatite ceramics by ambient-pressure sintering*. Materials Letters, 1995. **23**(1): p. 147-151.
- [102]. Cheng, J., et al., *Fabricating transparent ceramics by microwave sintering: Focus on Electronics*. American Ceramic Society Bulletin, 2000. **79**(9): p. 71-74.
- [103]. Agrawal, D., *Microwave Sintering of Ceramics, Composite, Metals, And Transparent Materials*. Journal of Materials Education, 1997. **19**(4-6).
- [104]. Esposito, L., et al., *Microwave sintering of Yb:YAG transparent laser ceramics*. Optical Materials, 2013. **35**(4): p. 761-765.
- [105]. Engin Nas, H.G., Gökhan Sur, *Sıcak Presleme Yöntemi Kullanılarak Kompozit Malzemelerin Üretilebilirliği Üzerine Bir Değerlendirme*. Karaelmas Science and Engineering Journal, 2013. **3**(2): p. 56-65.
- [106]. Streck, W., et al., *Fabrication and optical properties of transparent Nd^{3+} :YAG nanoceramics*. Journal of Luminescence, 2007. **122–123**: p. 70-73.
- [107]. Cook, R., et al. *A new powder production route for transparent spinel windows: powder synthesis and window properties*. 2005.
- [108]. Zych, E. and C. Brecher, *Temperature dependence of host-associated luminescence from YAG transparent ceramic material*. Journal of Luminescence, 2000. **90**(3–4): p. 89-99.
- [109]. Liu, K., et al., *High-pressure sintering mechanism of yttrium aluminum garnet ($Y_3Al_5O_{12}$) transparent nanoceramics*. Scripta Materialia, 2012. **66**(6): p. 319-322.
- [110]. Fedyk, R., et al., *Method of preparation and structural properties of transparent YAG nanoceramics*. Optical Materials, 2007. **29**(10): p. 1252-1257.
- [111]. Tsukuma, K., I. Yamashita, and T. Kusunose, *Transparent 8 mol% Y_2O_3 - ZrO_2 (8Y) ceramics*. Journal of the American Ceramic Society, 2008. **91**(3): p. 813-818.

- [112]. Petit, J., et al., *Sintering of α -alumina for highly transparent ceramic applications*. Journal of the European Ceramic Society, 2011. **31**(11): p. 1957-1963.
- [113]. Sutorik, A.C., et al., *Transparent Solid Solution Magnesium Aluminate Spinel Polycrystalline Ceramic with the Alumina-Rich Composition $MgO \cdot 1.2 Al_2O_3$* . Journal of the American Ceramic Society, 2012. **95**(2): p. 636-643.
- [114]. Mouzon, J., et al., *Fabrication of transparent yttria by HIP and the glass-encapsulation method*. Journal of the European Ceramic Society, 2009. **29**(2): p. 311-316.
- [115]. Serivalsatit, K. and J. Ballato, *Submicrometer Grain-Sized Transparent Erbium-Doped Scandia Ceramics*. Journal of the American Ceramic Society, 2010. **93**(11): p. 3657-3662.
- [116]. Seeley, Z., et al., *Transparent $Lu_2O_3: Eu$ ceramics by sinter and HIP optimization*. Optical Materials, 2011. **33**(11): p. 1721-1726.
- [117]. Mandal, H., *New developments in α -SiAlON ceramics*. Journal of the European Ceramic Society, 1999. **19**(13): p. 2349-2357.
- [118]. Itatani, K., T. Tsujimoto, and A. Kishimoto, *Thermal and optical properties of transparent magnesium oxide ceramics fabricated by post hot-isostatic pressing*. Journal of the European Ceramic Society, 2006. **26**(4-5): p. 639-645.
- [119]. Ji, Y., et al., *Fabrication of transparent $La_2Hf_2O_7$ ceramics from combustion synthesized powders*. Materials Research Bulletin, 2005. **40**(3): p. 553-559.
- [120]. Zhang, W., et al., *Improvement of optical properties of Nd:YAG transparent ceramics by post-annealing and post hot isostatic pressing*. Optical Materials, 2013. **35**(12): p. 2405-2410.
- [121]. Suárez, M., et al., *Hot isostatic pressing of optically active Nd:YAG powders doped by a colloidal processing route*. Journal of the European Ceramic Society, 2010. **30**(6): p. 1489-1494.
- [122]. Chen, I.W. and X.H. Wang, *Sintering dense nanocrystalline ceramics without final-stage grain growth*. Nature, 2000. **404**(6774): p. 168-171.
- [123]. Chen, Z.-h., et al., *Fabrication of YAG transparent ceramics by two-step sintering*. Ceramics International, 2008. **34**(7): p. 1709-1712.
- [124]. Li, J., et al., *Optical properties of the polycrystalline transparent Nd:YAG ceramics prepared by two-step sintering*. Ceramics International, 2012. **38**, **Supplement 1**: p. S649-S652.

- [125]. Serivalsatit, K., et al., *Synthesis, Processing, and Properties of Submicrometer-Grained Highly Transparent Yttria Ceramics*. Journal of the American Ceramic Society, 2010. **93**(5): p. 1320-1325.
- [126]. Saito, N., S.-i. Matsuda, and T. Ikegami, *Fabrication of Transparent Yttria Ceramics at Low Temperature Using Carbonate-Derived Powder*. Journal of the American Ceramic Society, 1998. **81**(8): p. 2023-2028.
- [127]. Li, J. and Y. Ye, *Densification and Grain Growth of Al_2O_3 Nanoceramics During Pressureless Sintering*. Journal of the American Ceramic Society, 2006. **89**(1): p. 139-143.
- [128]. Wang, A.H., et al., *YAG laser cladding of homogenous coating onto magnesium alloy*. Materials Letters, 2006. **60**(6): p. 850-853.
- [129]. Padture, N.P. and P.G. Klemens, *Low Thermal Conductivity in Garnets*. Journal of the American Ceramic Society, 1997. **80**(4): p. 1018-1020.
- [130]. Su, Y.J., et al., *Thermal Conductivity, Phase Stability, and Oxidation Resistance of $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (YAG)/ Y_2O_3 - ZrO_2 (YSZ) Thermal-Barrier Coatings*. Oxidation of Metals, 2004. **61**(3-4): p. 253-271.
- [131]. Pan, Y., M. Wu, and Q. Su, *Comparative investigation on synthesis and photoluminescence of YAG:Ce phosphor*. Materials Science and Engineering: B, 2004. **106**(3): p. 251-256.
- [132]. Song, Z., et al., *Synthesis of YAG phosphor particles with excellent morphology by solid state reaction*. Journal of Crystal Growth, 2013. **365**: p. 24-28.
- [133]. 中村修二, S. Pearton, and G. Fasol, *The Blue Laser Diode: The Complete Story*. 2000: Springer.
- [134]. Suárez, M., et al., *Sintering to transparency of polycrystalline ceramic materials*. 2012: INTECH Open Access Publisher.
- [135]. Taira, T., *RE^{3+} -Ion-Doped YAG Ceramic Lasers*. Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of, 2007. **13**(3): p. 798-809.
- [136]. Ikesue, A. and K. Yoshida, *Scattering in Polycrystalline Nd:YAG Lasers*. Journal of the American Ceramic Society, 1998. **81**(8): p. 2194-2196.
- [137]. Ikesue, A., et al., *Optical Scattering Centers in Polycrystalline Nd:YAG Laser*. Journal of the American Ceramic Society, 1997. **80**(6): p. 1517-1522.
- [138]. Costa, A.L., et al., *Synthesis of Nd-YAG material by citrate-nitrate sol-gel combustion route*. Advanced Engineering Materials, 2007. **9**(4): p. 307-312.

ÖZGEÇMİŞ



Kişisel Bilgiler

Adı Soyadı	Mutlucan SOZAK
Uyruğu	T.C.
Doğum tarihi, Yeri	09.07.1991 Mustafakemalpaşa/BURSA
Telefon	5313206822
E-mail	sozakm@gmail.com

Eğitim

Lisans	İstanbul Üniversitesi / Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Anabilim Dalı / Metalurji ve Malzeme Mühendisliği	2013
Lise	Mardin Anadolu Lisesi	2009