

Sol-Jel Yöntemi ile Sentezlenen La katkılı CdO Nanoparçacıkların, Yapısal Karakterizasyonu ve Dielektriksel Özelliklerinin Belirlenmesi

Ezgi GÜRGENÇ^{1*}, Aydın DİKİCİ², Fatih BİRYAN³, Fehmi ASLAN⁴, Kenan KORAN⁵

¹ Enerji Sistemleri Mühendisliği, Teknoloji Fakültesi, Fırat Üniversitesi, Elazığ, Türkiye

² Enerji Sistemleri Mühendisliği, Teknoloji Fakültesi, Fırat Üniversitesi, Elazığ, Türkiye

³ Kimya Bölümü, Fen Fakültesi, Fırat Üniversitesi, Elazığ, Türkiye

⁴ Raylı Sistemler Makine Teknolojisi, Yeşilyurt MYO, Turgut Özal Üniversitesi, Malatya, Türkiye

⁵ Kimya Bölümü, Fen Fakültesi, Fırat Üniversitesi, Elazığ, Türkiye

*¹ ezgigurgenc89@gmail.com, ² adikici1@firat.edu.tr, ³ fatihbiryana@gmail.com, ⁴ faslan558@gmail.com, ⁵ kkoran@firat.edu.tr

(Geliş/Received: 22/10/2021;

Kabul/Accepted: 12/12/2021)

Öz: Bu çalışmada, saf ve nadir toprak elementlerinden olan Lantan (La) katkılı kadmiyum oksit (CdO) nanoparçacıkları sol-jel yöntemi ile sentezlendi. Katkılama farklı mol yüzdelinde (1%, 3%, 5% ve 7%) gerçekleştirildi. Sentezlenen nanoparçacıklar FE-SEM, EDX, XRD ve FT-IR analizleri ile karakterize edildi. Farklı oranlardaki La katkılı CdO nanoparçacıkların dielektrik sabiti, dielektrik kayıp faktörü ve ac iletkenlik değerleri oda sıcaklığında frekansın bir fonksiyonu olarak empedans analizör cihazı ile belirlendi. La katkılı nanoparçacıklar sol-jel yöntemi ile başarılı bir şekilde sentezlenmiştir. Sentezlenen nanoparçacıklar küre benzeri formdadır ve La katkılı nanoparçacıkların boyutları saf CdO'ya göre daha yüksektir. Frekansın artması ile birlikte dielektrik özelliklerinde azalma olmuş ve daha yüksek frekanslarda sabit bir değere yaklaşmıştır. 1% La katkısı ile 6.87 olan dielektrik sabiti 7% La katkısı ile 28.15'e yükselmiştir. Dielektrik kayıp değerleri La katkısı ile azalma göstermiştir. 1% La katkısı ile 9.799×10^{-5} S/cm olan iletkenlik değeri 7% La katkısı ile 6.110×10^{-7} S/cm olarak ölçülmüştür.

Anahtar kelimeler: Metal Oksit Yarı İletken, Nadir Toprak Elementi, Sol-jel, Nanomalzeme, Dielektrik.

Structural Characterization and Determination of Dielectrical Properties of La-doped CdO Nanoparticles Synthesized by Sol-Gel Method

Abstract: In this study, pure cadmium oxide (CdO) and one of the rare earth elements Lanthanum (La) doped CdO nanoparticles were synthesized by sol-gel method. Doping was carried out at different mole percentages (1%, 3%, 5% and 7%). The synthesized nanoparticles were characterized by FE-SEM, EDX, XRD and FT-IR analyses. The dielectric constant, dielectric loss factor and ac conductivity values of La doped CdO nanoparticles at different ratios were determined as a function of frequency at room temperature with an impedance analyzer device. The La doped nanoparticles were successfully synthesized by the sol-gel method. The synthesized nanoparticles are in spherical form and the dimensions of the La doped nanoparticles are higher than pure CdO. With the increase in frequency, the dielectric properties decreased and approached a constant value at higher frequencies. The dielectric constant, which was 6.87 with 1% La doping, increased to 28.15 with 7% La doping. The dielectric loss values decreased with the doping of La. The conductivity value, which was 9.799×10^{-5} S/cm with 1% La doping, was measured as 6.110×10^{-7} S/cm with 7% La doping.

Key words: Metal Oxide Semiconductor, Rare Earth Element, Sol-gel, Nanomaterial, Dielectric.

1. Giriş

Nanoteknoloji, nanometre ölçeğindeki şekil ve boyutlara sahip malzemeler kullanılarak geliştirilen yapıların, sistemlerin ve cihazların üretimini, işlenmesini ve uygulamasını içeren son yıllarda oldukça popüler bir hale gelmiş bir alandır. Nanomalzemeler benzersiz ve kendilerine has fizikokimyasal ve yüzey özelliklerine sahip malzemelerdir. Ayrıca nanomalzemelerin boyutları, mekanik özellikleri, elektronik özellikleri, termal iletkenlikleri ve kimyasal reaktiflikleri oldukça üstündür [1]. Günümüz araştırmacıları son yıllarda II-VI yarı iletken malzemelerinden yararlanarak nanoteknoloji alanında oldukça ilerleme kaydetmişlerdir. Yarı iletkenler, atomların yüksek yüzey/hacim oranları ve kuantum hapsedme etkilerinden dolayı nano boyutlu aralıkta kendilerine has elektronik, elektrik, manyetik, optik ve kimyasal özelliklere sahiptirler. Bu özelliklerinden dolayı yarı

* Sorumlu yazar: ezgigurgenc89@gmail.com. Yazarların ORCID Numarası: ¹0000-0002-0653-4041, ²0000-0003-4892-2277, ³0000-0001-9198-3329, ⁴0000-0002-5304-0503, ⁵0000-0002-2218-7211

iletkenler fototransistörler, sensörler, diyotlar, düşük emisyonlu pencereler, ince film dirençleri, bellek cihazları ve süper kapasitörler gibi uygulamalarda kendilerine yer bulmaktadırlar [2]. İletkenlerden, çinko oksit (ZnO), kalay oksit (SnO₂), indiyum oksit (In₂O₃), titanyum oksit (TiO₂), nikel oksit (NiO) ve kadmiyum oksit (CdO) gibi yarı iletken metal oksit nanoparçacıklar mükemmel optik ve elektriksel özelliklere sahiptirler. Bu nedenle bu nanoparçacıklar güneş pilleri, ışık yayan diyotlar, ekranlar, fotovoltaiik hücreler, kızılötesi dedektörler, reflektörler ile optik dalga kılavuzları gibi birçok elektrik ve optoelektronik uygulamalarda kendilerine yer bulmaktadırlar [3, 4]. Bu yarı iletken metal oksit nanoparçacıkları arasında CdO kafes noktalarında yer alan Cd ve O atomları ile NaCl kristal yapısına sahip önemli bir n-tipi yarı iletkenlerdendir. CdO diğer metal oksit yarı iletkenlere göre düşük maliyeti, kimyasal kararlılığı, geniş bant aralığı, düşük elektrik direnci ve görünür bölgede yüksek iletimi gibi üstün özelliklerinden dolayı oldukça ilgi çekicidir [4-6].

Nanoparçacıkların boyutları ve özellikleri hazırlanma koşullarına ve sentezleme yöntemlerine göre değişiklik gösterebilmektedir. CdO nanoparçacıklar günümüzde, sol-jel, sprey piroliz, hidrotermal, kimyasal buhar biriktirme ve kimyasal banyo biriktirme gibi çeşitli metotlarla sentelenebilmektedir [7-9]. Sol jel kullanarak nanoparçacıklar hazırlamanın en önemli avantajları, bileşimin iyi bir kimyasal kontrolünün yapılabilmesi, düşük sıcaklıkta tavlama, nihai ürünün homojenliği, sentez parametrelerinin değiştirilerek parçacık boyutu ve morfolojisinin değiştirilebilmesidir [10, 11].

CdO nanoparçacıklara Ni, Al, Fe, Mn, Cr, La, In, Y, Tl, Sc, Sm, Dy ve Ag gibi metalik iyonlar katılarak elektriksel, optik, termal ve yapısal özellikleri büyük ölçüde değiştirilebilir [12-14]. Yarı iletkenlerin dielektrik sabitleri en önemli özelliklerinden biridir. Bunun nedeni temel ve teknolojik hususların sıcaklık ve büyüklüğe bağlı olmasıdır. Bu nedenle, pratik uygulamalarda nanomalzemenin frekansa bağlı dielektrik sabiti bilgisi oldukça önemli ve gereklidir [15].

Tripathi vd., hafif kimyasal metotla sentezledikleri CdO nanoparçacıkların dielektrik özelliklerini araştırmışlardır [15]. Mikrodalga ışınlama yöntemi ile sentezlenen CdO/SnO₂ nanoparçacıkların dielektrik, EMI ekranlama etkinliği, doğrusal ve doğrusal olmayan optik özellikleri Senthil vd. tarafından araştırılmıştır [16]. Sharmila vd., tutuklanmış çökeltme yöntemi ile sentezlenen ZnO/CdO nanoparçacıkların dielektrik ve iletkenlik özelliklerini araştırmışlardır [17]. Bir başka çalışmada kimyasal birlikte çökeltme yöntemi ile sentezlenen CdO nanoparçacıkların yapısal ve dielektrik özellikleri araştırılmıştır [18]. Bhargava vd., birlikte çökeltme yöntemi ile sentezledikleri Mn katkılı CdO nanoparçacıkların dielektrik ve optik özelliklerini araştırmışlardır [12]. Literatür çalışmaları incelendiğinde bizim fikrimize göre La katkılı CdO nanoparçacıkların sol-jel yöntemi ile sentezlenmesi ve dielektrik özelliklerinin araştırılması ile ilgili bir çalışmaya rastlanmamıştır ve bu yüzden bu çalışmanın yapılması kararlaştırılmıştır.

Bu çalışmada, farklı mol.% oranlarında La katkılanmış CdO nanoparçacıkları sol-jel yöntemi ile sentezlenmiştir. Sentezlenen nanoparçacıkların yapısal karakterizasyonları FE-SEM, EDX, XRD ve FT-IR yöntemleri kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Nanoparçacıkların dielektriksel özellikleri detaylıca incelenmiştir.

2. Materyal ve Metot

Kadmiyum (Cd) ve Lantan (La) kaynakları olarak sırasıyla Kadmiyum asetat dihidrat (C₄H₆CdO₄ · 2H₂O) ve Lantan (III) nitrat heksahidrat (La(NO₃)₃ · 6H₂O) kullanıldı. 20 ml metanole 0.5 M C₄H₆CdO₄ · 2H₂O katıldı ve manyetik karıştırıcı ile çözünene kadar karıştırıldı (birinci çözelti). Bir başka beherde 20 ml' lik metanolde 2.5 M NaOH çözüldü ve bu çözelti birinci çözültüye karıştırma devam ederken yavaşça döküldü. Elde edilen çözelti 60 °C' de 2 saat süreyle karıştırıldı ve bu süre sonunda oda sıcaklığına gelinceye kadar beklendi. Daha sonra süzgeç kâğıdıyla çöken parçacıklar süzüldü ve birkaç defa alkole yıkandı. Bu işlemden sonra saf su ile birkaç defa durulandı ve etüvde 80 °C' de kurutulduktan sonra havanda dövüldü. Elde edilen nanoparçacıklar 450 °C' de 1 saat süreyle fırında tavlandı. La katkılı nanoparçacıkların sentezi de aynı şekilde gerçekleştirildi. Tek fark olarak birinci çözültüye farklı mol.%' lerde (1%, 3%, 5% ve 7%) La(NO₃)₃ · 6H₂O katıldı. Katılama oranı seçilirken yüksek katkı oranlarının ana malzemenin yapısında değişiklikler meydana getirebileceği ve elde edilen tozların kompozit bir yapıya dönüşebileceği için katılama oranı çalışmanın amacına uygun olarak en fazla 7% olarak seçilmiştir. Sol-Jel yöntemi ile sentezlenen CdO ve La katkılı CdO nanoparçacıkların fonksiyonel gruplarının ve yapısal özelliklerinin karakterizasyonu için Fourier dönüşümü kızılötesi spektroskopisi (FT-IR) ve X-ışını kırınımı (XRD) analizleri gerçekleştirildi. FT-IR analizlerinde Thermo Scientific Nicolet IS5 FT-IR spektrometre ve XRD analizlerinde ise Rigaku D / Max 2200 difraktometre cihazları kullanıldı. FT-IR analizi 4000-550 cm⁻¹ tarama aralığında yapıldı. XRD analizi, CuK α (λ = 1.5406 Å) radyasyonunda 2θ = 20 ila 80° tarama aralığı ve 40 kV/40 mA' da gerçekleştirildi. Nanoparçacıkların kristal boyutlarını belirlemek için yüksek yoğunluklu (111) ve (200) piklerinden yararlanıldı ve Scherer denklemi yardımıyla kristal boyutları hesaplandı [4];

$$D = 0.9 \lambda / \beta \cos(\theta) \quad (1)$$

burada λ , X-ışınının nm cinsinden dalga boyudur, β radyanda yarı maksimumda tam genişliktir ve θ derece cinsinden kırınım açısıdır. Nanoparçacıkların kristal parametreleri, ($a = b = c$) için denklem (2) kullanılarak (1 1 1) pikinden hesaplanmıştır [4];

$$d_{(hkl)} = \frac{a}{\sqrt{(h^2 + k^2 + l^2)}} \quad (2)$$

burada d iki bitişik düzlem arası uzaklıktır ve h, k ve l ise Miller indisleridir. Birim hücrelerin hacimleri ise (V) aşağıdaki ilişkidendir hesaplanmıştır [4];

$$V = a^3 \quad (3)$$

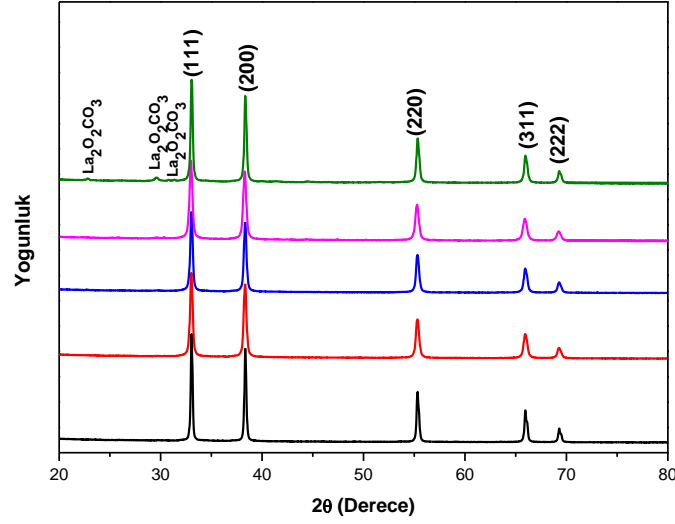
Sentezlenen saf ve La katkılı nanoparçacıklarının morfolojileri ve kimyasal bileşimleri sırasıyla Zeiss Crossbeam 540 marka alan emisyon taramalı elektron mikroskobu (FE-SEM) ve enerji dağıtıcı X-ışını spektroskopisi (EDX) analizi ile incelendi. Pellet haline getirilen numunelerin dielektrik özelliklerini belirlemek için HIOKI IM3536 marka LCR metre kullanıldı. Numunelerin dielektrik parametreleri oda sıcaklığında 1-200 kHz frekans aralığında ölçüldü.

3. Bulgular ve Tartışma

3.1. Yapısal Özellikler

Katkısız ve farklı oranlarda La katkılı CdO nanoparçacıkların XRD kırınım desenleri Şekil 1 'de görülmektedir. Tüm kırınım zirveleri 78-0653 numaralı JCPDS kartı ile uyumludur ve CdO' nun kübik fazına mükemmel bir şekilde karşılık gelmektedir. Saf CdO' da $33.06^\circ, 38.36^\circ, 55.36^\circ, 65.99^\circ$ ve 69.30° , 2θ derecelerine karşılık gelen yüksek pikler sırasıyla (111), (200), (220), (311) ve (222) düzlemlerine karşılık gelmektedir. Bu pikler saf CdO' nun karakteristik pikleridir [2, 5, 13]. La katkılı nanoparçacıkların tepe pozisyonları ve yoğunlukları, La katkılama oranına göre farklılık göstermekle beraber yine JCPDS no.78-0653 ile mükemmel şekilde eşleşmektedir. La katkılı numunelerin kırınım desenleri incelendiğinde yüksek katkı oranına sahip numune hariç (7%La-CdO) diğer numunelerde farklı fazlara ait piklere rastlanmamıştır. Bu durum 1%, 3% ve 5% La katkı oranlarında sentezlenen tozların yüksek saflıkta ve tek fazlı yapıda olduğunu teyit etmektedir. Ayrıca, La' nın sentezlenen La katkılı tozlarda CdO konakçı kafesine etkili bir şekilde katkı sağladığını ve La parçacıklarının CdO yüzeyinde iyi bir dağılım gösterdiğini göstermektedir [1, 13]. 7% katkı oranında ise CdO' ya ait karakteristik piklerin yanında yaklaşık $22.8^\circ, 29.58^\circ$ ve 31.33° 2θ açılarında La_2O_3 piklerine de rastlanmıştır [19]. Bu durumun bu katkı oranında La miktarının artmasından kaynaklandığı düşünülmektedir. La katkı oranı arttıkça 7% La katkılı numune hariç diğer numunelerde piklerin bir miktar daha düşük 2θ açılara kaydıkları görülmüştür. Bu durumun La^{3+} iyonlarının CdO kafesi içerisine uniform olarak ikame etmesinden kaynaklandığı düşünülmektedir. İkame durumunda ve farklı iyon yarıçapları nedeniyle (Cd^{3+} yarıçapı = $0.097 \text{ nm} < \text{La}^{3+}$ yarıçapı = 0.1061 nm), bir kafes distorsiyonu meydana gelir ve bu distorsiyon katkı konsantrasyonunun artmasıyla artar [2, 13]. 2θ açılarındaki değişim sınırlı olmuştur bunun nedeni olarak iyonik yarıçaplar arasındaki farkların düşük olması gösterilebilir [13]. Yine bu numunelerde katkı oranı arttıkça pik şiddetlerinin düştüğü görülmüştür. Pik şiddetlerindeki bu düşüş iyonik yarıçap farklarından ve katkılanan atomların konak kafesinin yerini değiştirmesinden kaynaklanmış olabilir [2].

Sentezlenen saf ve farklı oranlarda La katkılı nanoparçacıkların 2θ değerleri, kırınım düzlemleri, kafes boyutları, birim hücre hacimleri, kristal boyutları ve ortalama kristal boyutlarının hesaplanan değerleri Tablo 1' de verilmiştir. Tüm hesaplanan değerler La katkılama oranının değişiminden etkilenmiştir. Yüksek katkılama oranı hariç diğer numunelerin kafes boyutları ve birim hücre hacimleri saf CdO' ya göre az miktarda daha yüksektir ve katkı oranı arttıkça artmıştır. Yüksek katkı oranında ise kafes parametreleri ve birim hücre hacmi en düşüktür. Farklı katkı elementleriyle ve farklı oranlarda katkılanan CdO' lar ile ilgili yapılan çalışmalarda da kafes parametreleri ve birim hücre hacimlerinde farklılıklar görülmüştür [2, 4, 13]. La katkılı nanoparçacıkların ortalama kristal boyutları saf CdO' dan daha düşüktür ve en düşük değer 5% La katkılı numunede 14.6426 nm ' dir. XRD sonuçları saf ve La katkılı CdO nanoparçacıklarının başarı bir şekilde sentezlendiğini ortaya koymaktadır.

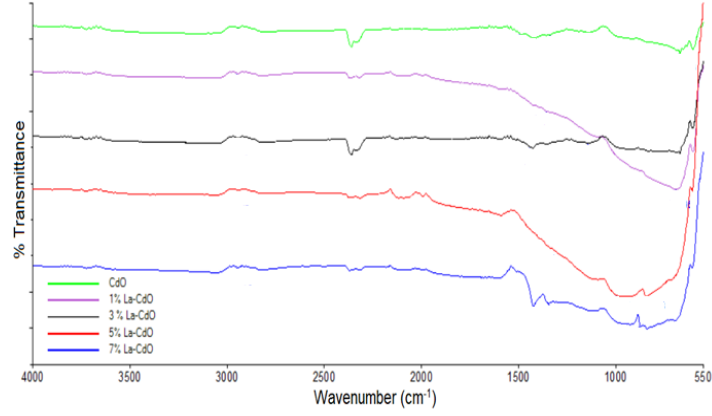


Şekil 1. Sentezlenen nanoparçacıkların XRD analiz sonuçları.

Tablo 1. Sentezlenen nanoparçacıkların 2θ değerleri, kırınım düzlemleri, kafes boyutları, birim hücre hacimleri, kristal boyutları ve ortalama kristal boyutlarının hesaplanan değerleri.

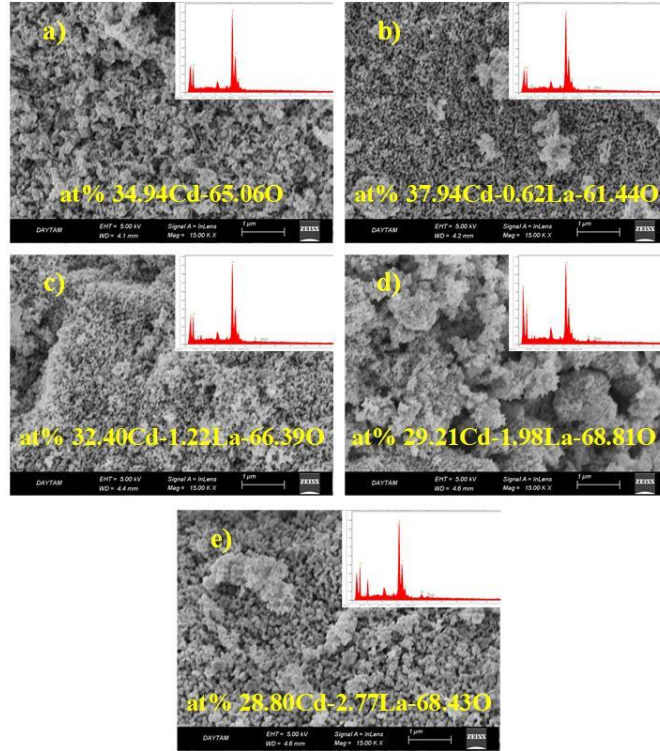
Numune	Kırınım düzlemleri	2θ kırınım açıları (derece)	$a=b=c$ (Å)	V (Å ³)	Kristal boyutu (nm)	Ortalama kristal boyutu (nm)
CdO	111	33.06	4.6896	103.1337	37.2756	36.4391
	200	38.36			35.6026	
1%La-CdO	111	33.04	4.6918	103.2785	25.1889	16.6699
	200	38.35			24.8208	
3%La-CdO	111	33.03	4.6924	103.3181	26.8783	17.7981
	200	38.34			26.5161	
5%La-CdO	111	32.99	4.6990	103.7599	22.0941	14.6426
	200	38.29			21.8336	
7%La-CdO	111	33.06	4.6890	103.0961	30.9406	20.1789
	200	38.36			29.5961	

Sol-Jel yöntemi ile sentezlenmiş katkısız ve farklı oranlarda La katkılı CdO nanoparçacıklarının FT-IR spektrumları Şekil 2' de görülmektedir. La katkısının CdO kafesini etkilemesiyle bant yoğunlukları ve pozisyonları değişmiştir. Saf CdO' da yaklaşık 2939 cm^{-1} ve 1%, 3%, 5% ve 7% La katkılı numunelerde sırasıyla yaklaşık $2944, 2942, 2942$ ve 2944 cm^{-1} ' deki bantlar CH_2 molekülleri için asimetrik ve simetrik modların germe titreşimine atfedilebilir [1, 20]. Saf ve 1% La katkılı numunede yaklaşık 2361 cm^{-1} , diğer numunelerde ise yaklaşık 2375 cm^{-1} deki geçirgenlik bantları $\text{O}=\text{C}=\text{O}$ titreşimine atfedilmektedir [1, 20]. Yaklaşık 1361 ve 1464 cm^{-1} ' deki geçirgenlik zirveleri, CdO' nun sallanma ve bükülme titreşimleri olarak atanabilir [1]. Yaklaşık 554 ile 668 cm^{-1} arasındaki bantlar metal oksijen (Cd-O) germe titreşimlerine atfedilmiştir [1, 7, 20]. Bu sonuçlar, La' nın CdO nanoparçacıklarına uygun şekilde katkılındığını ve CdO oluşumunun gerçekleştiğini göstermektedir.



Şekil 2. Sentezlenen nanoparçacıkların FT-IR analiz sonuçları.

Şekil 3.' de saf ve La katkılı CdO nanoparçacıkların FE-SEM görüntüleri ve EDX analiz sonuçları görülmektedir. Sentezlenen katkısız ve La katkılı CdO parçacıklar nanoboyuttadırlar ve nanoparçacıkların morfolojileri neredeyse küre benzeri formdadır. Sentezlenen nanoparçacıklar yüksek yüzey enerjilerinden dolayı yer yer topaklanmışlardır [5]. Ölçülen ortalama tanecik boyutları saf ve 1%, 3%, 5% ve 7% La katkılı numuneleri için yaklaşık 43.77, 55.87, 54.26, 50.49, 55.63 nm' dir. La katkılı numunelerin tanecik boyutları saf CdO' ya göre bir miktar daha yüksektir. EDX analizlerinden görüldüğü gibi La katkılı numunelerde La' ya rastlanmış ve La oranı katkı oranı arttıkça beklenildiği üzere artmıştır. Bu durum La katkısının başarıyla gerçekleştirdiğini göstermektedir.



Şekil 3. FE-SEM görüntüleri ve EDX analiz sonuçları a) CdO, b) 1%La-CdO, c) 3%La-CdO, d) 5%La-CdO ve e) 7%La-CdO.

3.2. Dielektriksel Özellikler

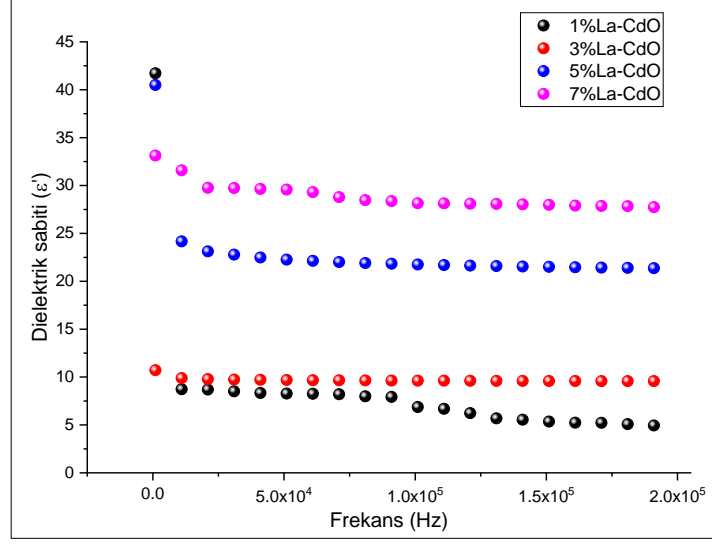
La katkılı CdO nanoparçacıkların dielektrik özelliklerin belirlenmesinde kullanılan en yaygın metod Empedans analizi tekniğidir [21]. Toz halindeki nanoparçacıklar öncelikle 5 ton basınç altında sıkıştırılarak pellet haline getirildi. Kalınlığı ölçülüp, temas alanı hesaplandıktan sonra kondaktörler arasına konulan numunelere elektrik alan uygulanarak dielektrik parametreleri ölçüldü. 1-200 kHz frekans aralığı için kapasitans (Cp), kayıp faktörü (DF), iletkenlik (Gp) değerleri kaydedildi ve sırasıyla dielektrik sabiti (ϵ'), dielektrik kayıp faktörü (ϵ''), AC iletkenlik (σ_{ac} , S/cm) değerleri Denklem 4-6 kullanılarak hesaplandı [22].

$$\epsilon' = C_p \frac{d}{A\epsilon_0} \quad (4)$$

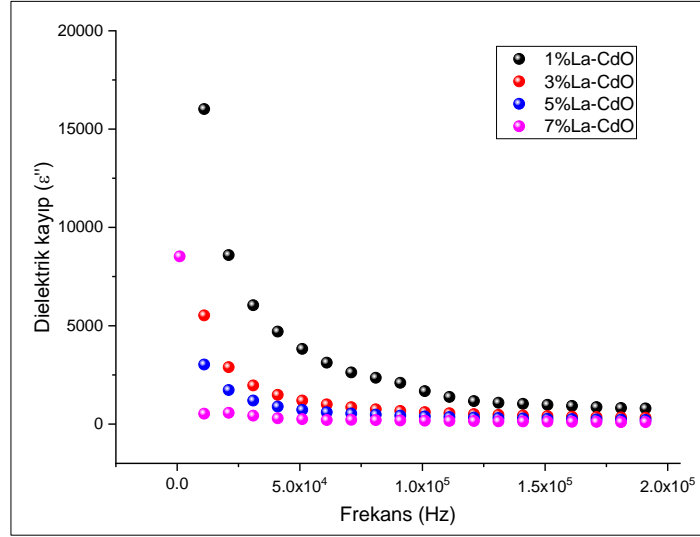
$$\epsilon'' = \epsilon' DF \quad (5)$$

$$\sigma = G_p \frac{d}{A} \quad (6)$$

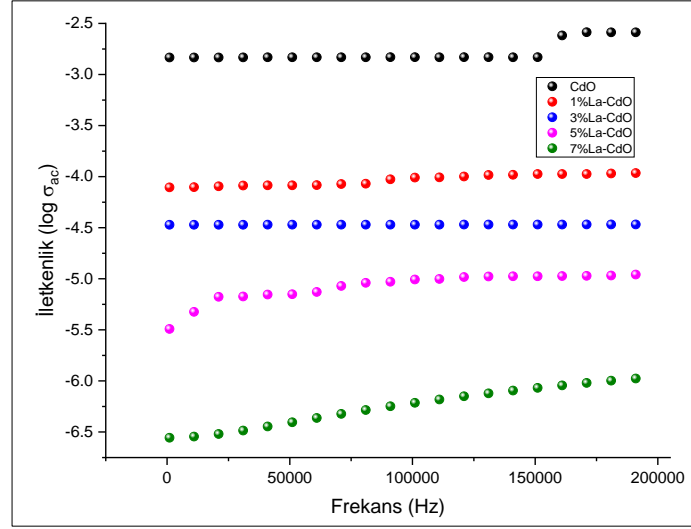
Bu denklemlerde “Cp” ile simgelenen değer kapasitans, “ ϵ_0 ” 8.854×10^{-12} F/m olarak bilinen boşluğun dielektrik sabiti “d” nanoparçacık örneklerine ait pellet kalınlığı ve “A” numunenin temas alanını ifade etmektedir. CdO nanoparçacıkların artan La katkısı ile elde edilen dielektrik sabiti ve dielektrik kayıp değerlerinin frekansla değişim grafikleri karşılaştırmalı olarak sırasıyla Şekil 4 ve Şekil 5’te gösterilmiştir. La katkısı ile dielektrik sabiti artış göstermiştir. Düşük frekans bölgesinde dielektrik sabiti ve dielektrik kayıp değerlerinde artan frekansla önemli bir düşüş olmasına rağmen daha yüksek frekans bölgesinde bu düşme eğilimi oldukça azalmaktadır [23]. Bu durumun nedeninin daha düşük frekans bölgesinde ara yüzey, atomik ve elektronik polarizasyonunun daha etkin olmasından kaynaklandığı düşünülmektedir. Bu etkilerden atomik ve elektronik polarizasyonlar ani gelişen etkileşimlerdir ve dielektrik özelliklerin frekansa bağlılığını çok etkilemez. Ara yüzey polarizasyonu düşük frekans bölgesinde dielektrik özelliklerine en fazla etki eden mekanizmadır [24, 25]. Malzemenin iç yapısına bağlı olan dielektrik kayıp değerlerinin frekansla değişiminde de benzer davranış görülmektedir [26]. Dielektrik ölçüm esnasında malzemeye uygulanan elektromanyetik enerjinin bir kısmı da ısı enerjisine dönüşür. Bu enerji malzemenin ısınmasına sebep olur. La katkısının artması ile malzeme içerisindeki iletim kayıpları azalmış ve CdO nanoparçacıkları artan La oranı sayesinde daha az ısınmıştır [27]. AC iletkenlik değerlerinin frekansla değişimi Şekil 6’da gösterilmiştir. İletkenlik, saf ve katkılı numuneler için elektron atlamalı yaklaşımdan kaynaklanır. AC iletkenliğin geliştirilmiş değeri, atlama, tünelleme veya serbest bant iletimi gibi farklı iletim süreçlerinden kaynaklanır [15]. Saf CdO için iletkenlik değeri 2×10^{-3} S/cm olarak gözlenirken La katkısı ile CdO nanoparçacıkların AC iletkenliğinde azalma meydana gelmiştir. 1% La katkısı ile 9.799×10^{-5} S/cm olan iletkenlik değeri 7% La katkısı ile 6.110×10^{-7} S/cm olarak ölçülmüştür. Bunun nedeninin, La katkısı ile malzeme içerisindeki iletim mekanizmasının kısmen de olsa engellendiği düşünülmektedir. Düşük frekanslarda, yük taşıyıcılarının atlama yoluyla rastgele akışının, frekanstan bağımsız bir iletkenliğe yol açtığı gözlemlenebilir. Daha yüksek frekanslarda, La katkılı CdO'nun iletkenliği artan bir eğilim gösterir. La katkılı CdO nanoparçacıkların dielektrik özellikleri Tablo 2’de özetlenmiştir.



Şekil 4. La katkılı CdO nanoparçacıkların dielektrik sabitinin frekansla değişimi.



Şekil 5. La katkılı CdO nanoparçacıkların dielektrik kayıp faktörünün frekansla değişimi.



Şekil 6. La katkılı CdO nanoparçacıkların ac iletkenlik değerinin frekansla değişimi.

Tablo 2. La katkılı CdO nanoparçacıkların Farklı Sıcaklıklarda 10 kHz'deki Dielektrik Sonuçları

Numune	ϵ'	ϵ''	σ_{ac}	$\log \sigma_{ac}$
1%La-CdO	6.871	1675.380	9.799×10^{-5}	-4.008
3%La-CdO	9.625	603.145	3.388×10^{-5}	-4.470
5%La-CdO	21.754	388.028	9.838×10^{-6}	-5.007
7%La-CdO	28.150	172.911	6.110×10^{-7}	-6.213

ϵ' : Dielektrik Sabiti; ϵ'' : Dielektrik Sabiti; σ_{ac} : İletkenlik

4. Sonuçlar

Saf ve La katkılı CdO nanoparçacıklar sol-jel yöntemi ile başarılı bir şekilde sentezlenmiştir. Nanoparçacıkların yapısal özellikleri La katkısından etkilenmiştir. Sentezlenen nanoparçacıklar küresel benzeri yapıdadır. La katkısı ile taneciklerin boyutları bir miktar büyümüştür. La katkılı CdO nanoparçacıkların homojen olmayan içyapıları ve uygulanan elektrik alan sonucu meydana gelen polarizasyonlardan dolayı, dielektrik sabiti ve dielektrik kayıpların düşük frekanslarda daha yüksek olduğu ortaya konulmuştur. Daha yüksek frekans değerlerine çıktığında polarizasyon etkisinin azalması sonucu dielektrik sabiti ve kayıpların azaldığı belirlenmiştir. Kompozit içerisinde artan La oranı ile dielektrik sabiti 6.87'den 28.75'e yükselmiştir. Bu artış La ilavesiyle ara yüzey polarizasyonun artmasından kaynaklanmaktadır. AC iletkenlik değeri 1% La katkısında 9.799×10^{-5} S/cm, 7% La katkısında ise 6.110×10^{-7} S/cm olarak belirlenmiştir. İletkenliğin La katkısı ile azalması elektron atlamalı mekanizmayı kısmen engellemesinden kaynaklandığı düşünülmektedir.

Bu sonuçlar incelendiğinde ve bu tür malzemelerin elektriksel özelliklerinin frekansa duyarlılığı sebebiyle La katkılı CdO nanoparçacıkları dielektrik kapasitör, mikroelektronik gibi alanlar ve dielektrik özellikler gereken uygulamalar için kullanılabilir.

Teşekkür

Yazarlardan Ezgi GÜRGENÇ 100/2000 doktora burs programı ile verdiği burs desteği için Yüksek Öğretim Kuruluna (YÖK) teşekkür eder. E.G. ve A.D. fikir sahibi. E.G. ve F.A. nanoparçacıkları sentezledi ve yapısal özellikleri yorumladı. F.B. ve K.K. dielektrik özellikleri ölçmek için gerekli pelletleri hazırladı ve dielektrik ölçümlerini gerçekleştirdi. E.G., F.B. ve K.K. dielektrik özellikleri yorumladı.

Kaynaklar

- [1] Sivakumar S, Venkatesan A, Soundhirarajan P, Khatiwada C P. Synthesis, characterizations and anti-bacterial activities of pure and Ag doped CdO nanoparticles by chemical precipitation method. *Spectrochim. Acta, Part A* 2015; 136: 1751-1759.
- [2] Mohanraj K, Balasubramanian D, Chandrasekaran J, Bose A C. Synthesis and characterizations of Ag-doped CdO nanoparticles for PN junction diode application. *Mater. Sci. Semicond. Process.* 2018; 79: 74-91.
- [3] Gandhi A C, Wu S Y. Strong deep-level-emission photoluminescence in NiO nanoparticles. *Nanomater.* 2017; 7(8): 231.
- [4] Ravichandran A, Xavier A R, Pushpanathan K, Nagabhushana B, Chandramohan R. Structural and optical properties of Zn doped CdO nanoparticles synthesized by chemical precipitation method. *J. Mater. Sci.: Mater. Electron.* 2016; 27(3): 2693-2700.
- [5] Gupta V K, Fakhri A, Tahami S, Agarwal S. Zn doped CdO nanoparticles: structural, morphological, optical, photocatalytic and anti-bacterial properties. *J. Colloid Interface Sci.* 2017; 504: 164-170.
- [6] Ranjithkumar R, Irudayaraj A A, Jayakumar G, Raj A D, Karthick S, Vinayagamoorthy R. Synthesis and properties of CdO and Fe doped CdO nanoparticles. *Mater. Today.* 2016; 3(6): 1378-1382.
- [7] Mosquera E, del Pozo I, Morel M. Structure and red shift of optical band gap in CdO–ZnO nanocomposite synthesized by the sol gel method. *J. Solid State Chem.* 2013; 206: 265-271.
- [8] Tawfik W Z, Esmat M, El-Dek S. Drastic improvement in magnetization of CdO nanoparticles by Fe doping. *Appl. Nanosci.* 2017; 7(8): 863-870.
- [9] Yathisha R, Nayaka Y A, Manjunatha P, Vinay M, Purushothama H. Doping, structural, optical and electrical properties of Ni²⁺ doped CdO nanoparticles prepared by microwave combustion route. *Microchem. J.* 2019; 145: 630-641.
- [10] Makwana P, Dhruv D, Solanki S, Boricha H, Satyaprasad A, Ranjan M, Solanki P, Shah N. Modifications in structural, optical and electrical properties of nanocrystalline CdO: role of sintering temperature. *J. Sol-Gel Sci. Technol.* 2019; 89(3): 866-875.
- [11] Pascariu P, Tudose I V, Sucheana M, Koudoumas E, Fifere N, Airinei A. Preparation and characterization of Ni, Co doped ZnO nanoparticles for photocatalytic applications. *Appl. Surf. Sci.* 2018; 448: 481-488.
- [12] Bhargava R, Khan S, Ansari M M N, Ahmad N. Synthesis and characterization of pure and Mn incorporated CdO nanoparticles. *Mater. Today. Proc.* 2018; 5(9): 17636-17640.
- [13] Geetha M, Shivananjaiah H. Structural and photoluminescence properties of La³⁺ doped CdO nanophosphors synthesised via green mediated solution combustion route. *J. Rare Earths* 2019; 37(9): 916-923.
- [14] Salem A. Silver-doped cadmium oxide nanoparticles: synthesis, structural and optical properties. *Eur. Phys. J. Plus* 2014; 129(12): 1-12.
- [15] Tripathi R, Dutta A, Das S, Kumar A, Sinha T. Dielectric relaxation of CdO nanoparticles. *Appl. Nanosci.* 2016; 6(2): 175-181.
- [16] Senthil S, Srinivasan S, Thangeeswari T, Madhu B, Silambarasan M. Enhanced dielectric, EMI shielding effectiveness, linear and nonlinear optical properties of CdO/SnO₂ nanocomposites. *Nano-Struct. Nano-Objects* 2020; 24: 100554.
- [17] Sharmila P, Sebastain R M, Sagar S, Mohammed E, Tharayil N J. Dielectric properties and conductivity of (ZnO/CdO) mixed oxide nanocomposite. *Ferroelectr.* 2015; 474(1): 144-155.
- [18] Sagadevan S, Veeralakshmi A. Synthesis, structural, and dielectric characterization of cadmium oxide nanoparticles. *nt. J. Chem. and Mol. Eng.* 2015; 8(12): 1492-1495.
- [19] Choi J, Chung Y H. Preparation of lanthanum oxide and lanthanum oxycarbonate layers on titanium by electrodeposition with organic solution. *J. Nanomater.* 2016; 2016: 5140219.
- [20] Sivakumar S, Venkatesan A, Soundhirarajan P, Khatiwada C P. Thermal, structural, functional, optical and magnetic studies of pure and Ba doped CdO nanoparticles. *Spectrochim. Acta, Part A* 2015; 151: 760-772.
- [21] Gurgenc T, Biryan F. Production, thermal and dielectrical properties of Ag-doped nano-strontium apatite and nano h-BN filled poly (4-(3-(2, 3, 4-trimethoxyphenyl) acryloyl) phenyl acrylate) composites. *J. Polym. Res.* 2020; 27(7): 1-13.
- [22] Gurgenc T. Structural characterization and dielectrical properties of Ag-doped nano-strontium apatite particles produced by hydrothermal method. *J. Mol. Struct.* 2021; 1223: 128990.
- [23] Çalışkan E, Koran K, Görgülü A O, Çetin A. Electrical properties of amino acid substituted novel cinnamic acid compounds. *J. Mol. Struct.* 2020; 1222: 128830.
- [24] Pethrick R A, Hayward D. Real time dielectric relaxation studies of dynamic polymeric systems. *Prog. Polym. Sci.* 2002; 27(9): 1983-2017.
- [25] Çalışkan E, Biryan F, Koran K. Dipeptit Kaplı Manyetik Fe₃O₄ Nanopartikülünün Termal ve Dielektrik Özelliklerinin İncelenmesi. *Türk Doğa ve Fen Dergisi* 2021; 10(1): 259-268.
- [26] Li Y, Cordovez M, Karbhari V. Dielectric and mechanical characterization of processing and moisture uptake effects in E-glass/epoxy composites. *Composites, Part B* 2003; 34(4): 383-390.
- [27] Ilgaz A, Perin D. Karbon Nanotüp Katkılı Levha Kalıplama Pestilinin AC Elektriksel İletkenliğinin ve Dielektrik Özelliklerinin İncelenmesi. *Bitlis Eren Üniversitesi Fen Bilimleri Dergisi* 2021; 10(2): 296-303.