

Sb₂O₃ - PbO Sistemlerinin incelenmesi

H.Güzin ASLAN (TUNALI)

Tez Yöneticisi

Prof. Dr. Nevzat KÜLCÜ

**Erciyes Üniversitesi
Fen Bilimleri Enstitüsü'ne
Kimya Ana Bilim Dalı'nda Yüksek Lisans Tezi Olarak
Sunulmuştur.**

Eylül - 1994

KAYSERİ

Anil's...

Erciyes Üniversitesi

Fen Bilimleri Enstitüsü Müdürlüğü'ne

Bu çalışma jürimiz tarafından Kimya Ana Bilim Dalı'nda
YÜKSEK LİSANS TEZİ olarak kabul edilmiştir.

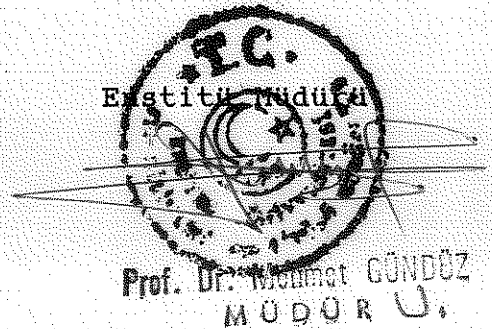
15/9/1994

BAŞKAN: Prof. Dr. Mehmet Doğan .. *M. Doğan*
UYE : Prof. Dr. Nevzat Külcü .. *N. Külcü*
UYE : Yrd. Doç. Dr. Nilgün Özpozan .. *N. Özpozan*

ONAY

Yukarıdaki imzaların adı geçen öğretim
üyelerine ait olduğunu onaylarım.

14/10/1994



ÖZGEÇMİŞ

Adı ve Soyadı: H. GÜZİN ASLAN (TUNALI)
Baba Adı : İ.ÜSTÜN
Ana Adı : E.NURAN
Doğum Yeri : İZMİR
Doğum Tarihi : 1966

İlk ve orta öğrenimini Kayseri'de tamamladı. 1988 Yılında Erciyes Üniversitesi Fen-Edebiyat Fakültesi Kimya Bölümünden mezun oldu. 1989-1990 tarihleri arasında Trabzon-Sürmene Lisesinde Kimya öğretmeni olarak çalıştı. Ağustos 1990'da Erciyes Üniversitesi Fen-edebiyet Fakültesi Kimya Bölümünde Uzman olarak çalışmaya başladı. Halen aynı görevine devam etmektedir. Evli ve bir çocuk annesidir.

TEŞEKKÜR

Tezin yürütülmesi sırasında her zaman destek olan danışmanım Sayın Prof. Dr. Nevzat KÜLCÜ'ye, çalışmamı yaptığım Martin Trömel Katıhal Kimyası laboratuvarının kuruluşuna büyük destek sağlayan Johann Wolfgang Goethe Üniversitesi Anorganik Kimya Enstitüsü öğretim üyesi Sayın Prof. Dr. Martin TRÖMEL'e, yardımlarından dolayı Yrd.Doç.Dr. Nilgün ÖZPOZAN'a, Dr. Melek MERDİVAN'a, Arş. Gör. Orhan TÜRKOĞLU'na, Arş. Gör. Uğur ŞAHİN'e ve eşim Ertuğrul ASLAN'a teşekkür ederim.

Ayrıca bu tezi araştırma projesi olarak destekleyen E.Ü. Araştırma Fonu'na ve çalışmalarımı yürüttüğüm araştırma laboratuvarının finansmanını sağlayan Volkswagen Stiftungwerk-Hannover Vakfı'na da teşekkür ederim.

ÖZET

Bu çalışma PbO ve Sb_2O_3 'in değişik stokiyometrik oranlarda karışımlarının açık atmosferde 650-900 °C arasında 24-96 saate kadar değişen sürelerde altın ve platin reaksiyon kaplarında yürütüldü. Önceki yıllarda çalışılan $PbSb_2O_6$ (1:1) ve $Pb_6Sb_2O_{11}$ (6:1) bileşikleri bu çalışmada da sentezlendi. Adı geçen bileşikler 0.8-0.9 mol kesri aralığındaki katı çözelti bölgesinde de değişik sıcaklığa ve kristal sisteminde elde edildi. Katı çözelti bölgesi ilk kez bu çalışmada sentezlendi.

0.1-0.5 mol kesri (x_{PbO}) bölgesinde çalışılan bütün sıcaklık ve zamanlarda $PbSb_2O_6$ bileşiği ve Sb_2O_4 bileşiği, 0.5 - 0.8 mol kesri (x_{PbO}) bölgesinde ise $PbSb_2O_6$ ve $9PbO.4Sb_2O_3$ bileşiği karışık olarak bir arada oluştu.

Bileşikler x-ışınları toz difraksiyon ve DTA/TG yöntemleri ile incelendi.

SUMMARY

In this study, PbO and Sb_2O_3 were reacted in the different stoichiometric ratios between 650-900 °C in the air atmosphere using gold and platinum reaction vessel by heating up to 96 hours at various periods from 24 hours.

Only PbSb_2O_6 (1:1), $\text{Pb}_6\text{Sb}_2\text{O}_{11}$ (6:1) phases were synthesized from the literature. These phases were synthesized in solid solution area (0.8-0.9 mole ratio) different temperature crystal systems.

PbSb_2O_6 and Sb_2O_4 phases in the region between 0.1-0.5 mole fraction and the mixture of PbSb_2O_6 and $9\text{PbO}-4\text{Sb}_2\text{O}_3$ phases in the region between 0.5-0.8 mole fraction were synthesized at all studied temperatures and time ranges.

Reaction products were characterized by X-ray powder diffraction method, Differential thermal analysis and thermal gravimetry.

SEMBOL VE KISALTMALAR

a, b, c	: Birim hücre boyutları
CuK α	: Bakır K α çizgisi (154.06 pm)
α	: b ve c eksenleri arasındaki açı
β	: a ve c eksenleri arasındaki açı
d	: Kristal düzlemler arasındaki uzaklık
	: a ve b eksenleri arasındaki açı
h, k, l	: Miller indisleri
I	: Yansımaların şiddeti
I $_0$	: En büyük yansımanın şiddeti
kV	: Kilovolt
	: Dalga boyu
M	: Molar kütle
m $_0$	: Örnek maddenin kütlesi
m $_p$	: Piknometrenin kütlesi
m $_t$	: Toluenin kütlesi
m $_r$	: Piknometre, toluen ve örnek madde toplam kütlesi
N $_L$	: Avagadro sayısı
pm	: pikometre (10 ⁻¹² metre)
	: yoğunluk
t	: Toluenin yoğunluğu
δ	: Örnek maddenin yoğunluğu
s	: Sayfa
θ	: Bragg yansıma açısı
V	: Birim hücre [cm ³]
V $_0$	: Örnek maddenin hacmi
V $_t$	: Toluenin hacmi [cm ³]
XRPD	: X-Işınları toz difraktometresi
Z	: Birim hücre başına formül sayısı
megs	: Mili eş değer gram sayısı
EDTA	: Etilen diamin tetra asetik asit
DTA	: Diferansiyel Termal Analiz Cihazı
TG	: Termal Gravimetri
T.Kris.	: Tek Kristal
Int	: Şiddet
d $_{obs}$	: Gözlene kristal düzlemler arası uzaklık
Sin ² θ_{obs}	: Gözlenen Bragg yansıma açısının sinüs kareleri
θ_{obs}	: Gözlenen Bragg yansıma açısı
x	: Mol kesri
[RodB]	: Rodamin B (ağırlıkça % 0.02)
Bek	: Beklenen
Bul	: Bulunan

İÇİNDEKİLER

	Sayfa
ONAY	II
ÖZGEÇMİŞ	III
TEŞEKKÜR	IV
ÖZET	V
SUMMARY	VI
SEMBOL VE KISALTMALAR	VII
İÇİNDEKİLER	VIII
GİRİŞ	1
2. METOT VE KULLANILAN ALETLER	3
2.1. Başlangıç Maddeleri	3
2.1.1. Kurşun Oksit	3
2.1.2. Sb_2O_3	4
2.2. Karışımların Hazırlanması	5
2.3. DİFRAKTOMETRİK ÇALIŞMALAR	6
2.3.1. Oluşan Fazların Tanısı	6
2.3.2. Difraktometre Ünitesi	7
2.3.3. DTA/TG Cihazı ve Ölçümleri	10
2.4. Yoğunluk Tayini ve Birim Hücre Başına Formül Sayısının Hesabı	12
2.4.1. Yoğunluk Tayini	12
2.4.2. Birim Hücre Başına Formül Sayısının Hesabı	14
2.5. Kimyasal Analizler	14
2.5.1. Kurşun Analizi	14
2.5.2. Antimon Analizi	15
3. İNCELENEN SİSTEMLER	18
3.1. 0.1-0.5 Mol Kesri Bölgesi	18
3.1.6. $PbSb_2O_6$ Bileşiği	21
3.2. 0.5-0.8 Mol Kesri Aralığı	23
3.3. 0.8-0.9 Mol Kesri Aralığı	28
3.3.1. $Pb_6Sb_{20(1)}$ Bileşiği	28
3.3.2. Katı Çözelti Bölgesi	29
4. SONUÇLAR VE TARTIŞMASI	35
KAYNAKLAR	
Ekler	

GİRİŞ

Ağır metal oksitlerinin ikili tepkimeleri uzun süredir incelenmektedir. Tepkimeler için metallerin oksitlerinden, nadiren de karbonatlarından hareket edilmiş, sonuçlar x-ışınları ile değerlendirilip, kristallografik özellikleri incelenmiştir.

Yapılan literatür taramalarında Tablo-1.1 verilen fazların önceden sentezlendiği tesbit edildi [1-8].

Tablo-1.1 : Literatürlerde daha önce sentezlenen fazlar.

No	Mol Oranı	Mol kesri	Faz	Kristal sistemi	inceleme yöntemi			Kaynak
					XRPD	T.kris	DTA	
1	1:1	0.5	PbSb ₂ O ₆	hexagonal	+	+	+	[1-3, 3]
			PbO.Sb ₂ O ₆	bilinmiyor	+	+	-	[7, 8] [9]
2	2:1	0.67	Pb ₂ Sb ₂ O ₇	"	+	+	-	[4, 6, 8]
3	3:1	0.75	Pb _(2+x) Sb ₂ O ₈	"	+	-	-	[3]
			Pb ₃ Sb ₂ O _{8.47}	"	+	+	+	[6]
			3PbO.Sb ₂ O ₃	"	+	+	-	[9]
4	4:1	0.8	Pb ₄ Sb ₂ O ₉	"	+	-	-	[3]
5	6:1	0.86	Pb ₆ Sb ₂ O ₁₁	Monoklin	+	+	+	[3]

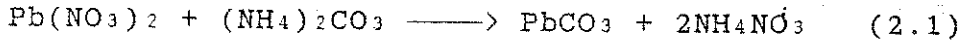
Bu alıřmalarda Pb-Sb-O sistemi iin de aynı yntem uygulandı. Literatrde belirtilen bileřikler yanında yeni bileřiklerin sentezi ve kristal sistemlerinin tesbitine alıřıldı.

2. METOT VE KULLANILAN ALETLER

2.1. Başlangıç Maddeleri

2.1.1. Kurşun Oksit

Kurşun(II) oksit kurşunnitrat maddesi kullanılarak hazırlandı. Kurşun(II) karbonat 0.1 M kurşun(II)nitrat çözeltisi ile 0.1 M amonyum karbonat çözeltisi yavaş yavaş karıştırılarak denklem (2.1)'de verilen tepkimeye uygun olarak çöktürüldü.



Sonra çökelek olgunlaşması için 2 saat bekletildi. Bu işlemden sonra mavi bant süzgeç kağıdı ile vakumda süzüldü. Çökelek destile su ile yıkandı, etüvde 125 °C 'de kurutuldu ve öğütüldü.

En son işlemde kurşun karbonat, sabit tartıma getirilen porselen kroze içinde 600 °C 'de denklem (2.2)'ye göre kurşun okside dönüştürülmek üzere bir saat fırınlandı.



Parçalanmanın tam olup olmadığını kontrol amacı ile renkli kurşun oksit tartıldı ve kütle kaybının teorik karbon-dioksit kaybına eşdeğer olup olmadığı kontrol edildi.

Bu şekilde elde edilen kurşunoksitin X-Işınları toz deseni verileri ve literatür değerleri Tablo-2.1 'de verilmiştir. Tablo-2.1'de verilen değerlerin uyumu sentezlenen maddenin kurşun(II) oksit olduğu kanıtlamaktadır.

Tablo-2.1 : PbO bileşiğinin toz deseni, yansımalarının bağıl şiddetleri (I/I_0) ve düzlemleri arası uzaklıkları (d)

Literatür		Bu Çalışma	
I/I_0	d[pm]	I/I_0	d[pm]
100	306.8	100	307.0
24	294.6	58	294.2
23	274.5	8	273.7
21	248.8	6	251.2
17	237.6	8	238.1
13	200.8	17	200.1
2	195.4	2	195.2
12	185.4	15	185.5
13	179.6	5	179.2
16	172.3	27	172.4

2.1.2. Sb_2O_3

Kullanılan antimontrioksit (Sb_2O_3) Merck firmasının bir ürünüdür. Beyaz renkli Sb_2O_3 bileşiği kübik sistemde kristallenmektedir. Sb_2O_3 için literatür verileri ve bu çalışmadaki x-ışınları toz deseni verileri Tablo-2.2'de, verilmiştir. Her iki veri arasındaki uyum, kullanılan maddenin Sb_2O_3 olduğunu gösterir.

Tablo-2.2 : Sb_2O_3 bileşiğinin toz deseni, yansımalarının bağıl şiddetleri (I/I_0) ve düzlemeleri arası uzaklıkları (d)

Literatürde [12]		Bu Çalışma	
I/I_0	d[pm]	I/I_0	d[pm]
12	6.64	10	6.64
100	3.21	100	3.21
40	2.78	35	2.78
11	2.55	9	2.55
2	2.27	2	2.27
3	2.14	3	2.14
42	1.97	35	1.96
2	1.80	1	1.80
35	1.68	35	1.67
11	1.61	10	1.61

2.2. Karışımların Hazırlanması

Karışımların hazırlanması için kullanılan kurşunoksit ve antimontrioksit maddeleri etüvde $125\text{ }^{\circ}\text{C}$ 'de kurutuldu. Çeşitli mol oranlarına karşılık gelen stokiyometrik miktarlarda başlangıç maddeleri tartılıp agat havanda öğütülerek karışımların homojen hale gelmesi sağlandı. Katıhal reaksiyonları bu stoklardan alınarak altın ve platin kayıkçıklarda gerçekleştirildi. Karışımlar fırınlanmadan önce ve sonra tartılarak kütle değişimleri kontrol edildi.

Kurutma Nüve marka FN 400 model bir etüvde, katıhal reaksiyonları yine Nüve marka MF 120 model bir kül fırınında ve tartım işlemleri de Shimadzu marka AEU-210 model bir terazi kullanılarak gerçekleştirildi.

Maddelerin her işlemde sonra yapılan ağırlık kontrollerinden genel olarak düşük sıcaklıklarda bir artış, yüksek sıcaklıklarda ise bir azalma olduğu tesbit edildi. Düşük sıcaklıklardaki artışın antimontrioksitin



denklemine uygun olarak kısmi yükseltgenmesinden, yüksek sıcaklıktaki azalmaların ise süblimasyondan kaynaklandığı bilinmektedir.

Başlangıç stoklarının numaraları, mol oranları ve mol kesirleri Tablo-2.3'de verilmiştir.

2.3. DİFRAKTOMETRİK ÇALIŞMALAR

2.3.1. Oluşan Fazların Tanısı

Karışımların fırınlanması sırasında herhangi bir katıhal reaksiyonunun meydana gelip gelmediği her işlem sonrası X-ışınları toz difraksiyon desenleri çekilerek ve başlangıç maddelerinin toz desenleri ile karşılaştırılarak kontrol edildi. Çekilen toz desenlerinin başlangıç maddelerinin toz desenlerinden tamamen farklı olması durumunda saf bir ürünün meydana geldiği, başlangıç maddelerinin toz deseninin yansımalarının yanında farklı yansımaların bulunması durumunda ise başlangıç maddesi ile karışım halinde ürünlerin oluştuğu şeklinde değerlendirildi.

Reaksiyon ürününe ait toz deseninin önceden bilinen bir bileşiğe ait olup olmadığı ASTM indekslerindeki ve literatürdeki toz difraksiyon verileri ile karşılaştırılarak belirlendi. Yeni yansımalar bilinen bir faza ait değilse, fazı saf olarak elde edebilmek için sıcaklık ve zaman parametreleri değiştirilerek yeni reaksiyonlar denendi. Saf olarak elde edilen ürünlerin;

- a) kristalografik özellikleri tesbit için toz desenleri indislenmeye çalışıldı.

b) bileşimlerinden emin olmak için kimyasal analizleri yapıldı,

c) birim hücredeki formül sayılarını tesbit için yoğunluk tayinleri yapıldı.

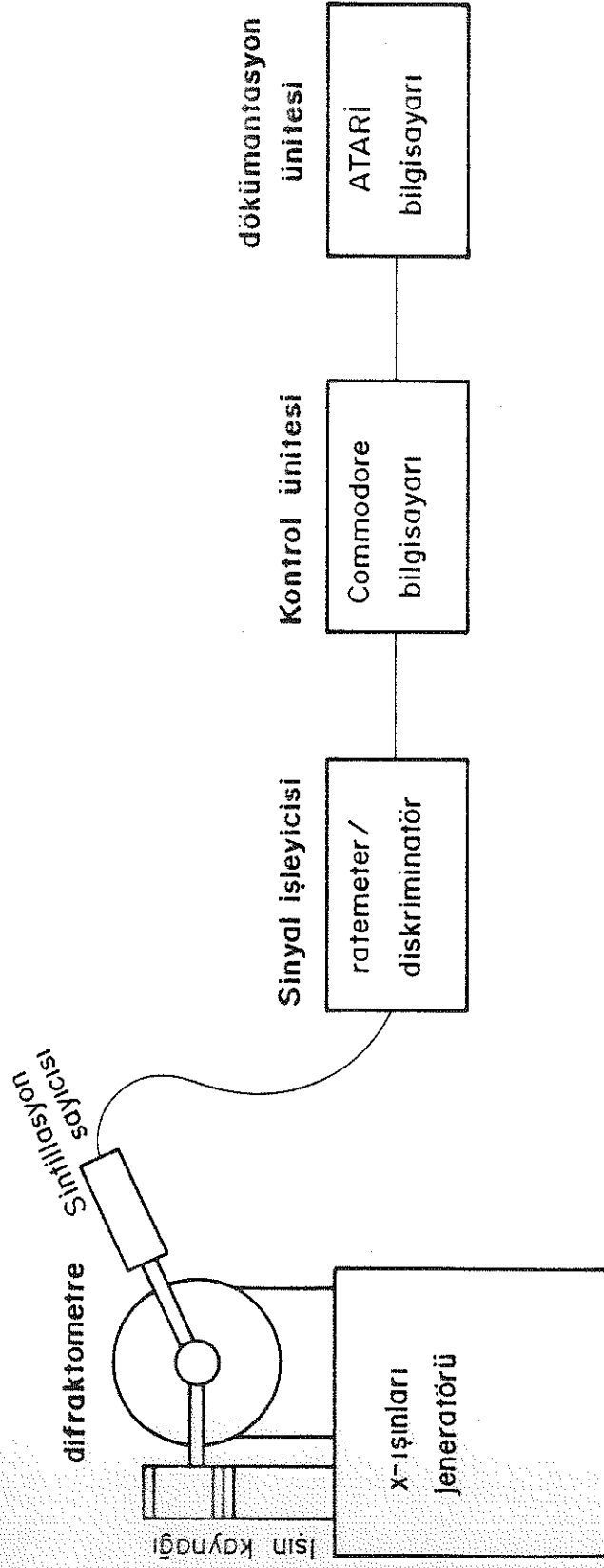
Toz desenlerinin indislenme işlemlerinde "X-Ray powder" programı kullanıldı [10]. Bu program Atari PC bilgisayarı için Basic dilinde yazılmış bir programdır.

2.3.2. Difraktometre Ünitesi

Toz desenlerinin ölçümleri Şekil-2.3'de sematik çizimi görülen sistem ile yapıldı. XRPD sisteminde kullanılan X-ışınları jeneratörü Philips marka PW-1010 model olup 20-50kV ve 6-50 mA aralığında kullanılabilmektedir. Işın kaynağı olarak kullanılan fine focus Cu tüpü 20 mA ve 40 kV ile beslenmektedir. Sistemin Simens marka F tipi bir goniometresi ve Wenzel Elektronik marka sintilasyon sayıcısı bulunmaktadır. Bu çalışmada ayırma gücünü artırmak ve zemin ısımasının miktarını azaltmak için birincil (gelen) ışınlar 2.4 mm'lik ve ikincil (yansıyan) ışınlar ise 1.0 mm'lik slitlerden geçirilerek ışın demetlerinin mümkün olduğu kadar paralelliği sağlandı. Monokromatize ışın elde edilmesi için Ni filitre kullanıldı.

Goniometre ünitesi Şekil-2.4'de verilmiştir. Ünitenin dönüş hareketi bilgisayar kontrollüdür. Sayıcı (dedektör) olarak Wenzel Elektronik marka bir sintilasyon sinyal sayıcısı kullanılmıştır. Bu sayıcı, örnekten yansıyan ışınları elektrik sinyaline çevirmektedir.

Ratemeter ve yükseltici (amplifikatör) üniteleri, sayıcıdan gelen elektrik sinyallerini işlemek, yabancı sinyalleri



Sekil 2.3 X-ışınları toz difraksiyon sistemi

S1,S2 : Slitler
D : Dedektör
F : Fokuslama yada odaklama çemberi
R : Difraktometre eksenini yarıcı
P : Örnek
M : Difraktometre eksenini
G : Monokromatize ışınların difraktometreye giriş noktası
B : Çıkış noktası

süzerek esas sinyalleri yükseltmek amacı ile kullanıldı. Bu üniteler, sayıcıyı besleyen bir güç kaynağına monte edilmiştir.

Step motor, kontrol cihazından gelen sinyaller yardımı ile difraktometrenin hareketinin kontrolünü sağlamaktadır.

Commodore 64 bilgisayarı, motor kontrol ünitesine uygun sinyalleri göndererek step motoru ve difraktometreyi çalıştırmak, ayrıca yükselticiden gelen elektrik sinyallerini sayısal şekle dönüştürmek amacıyla kullanıldı [11].

Atari bilgisayar ise ölçüm sonuçlarını değerlendirme ve dökümantasyon işlemlerinde kullanıldı [12].

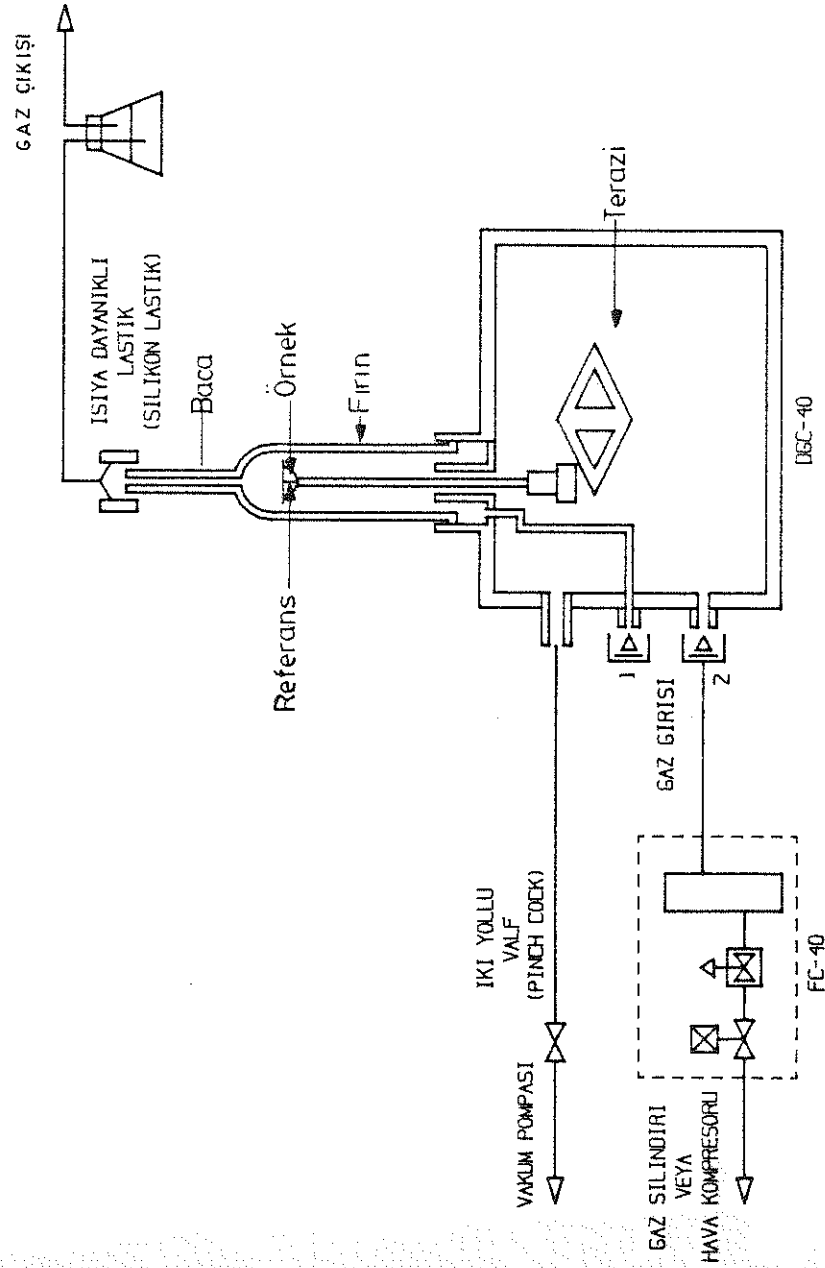
Yansıma açılarının yerleri, dış standart olarak kullanılan metalik altının yansıma açıları referans alınarak düzeltilildi. Metalik altına ait difraksiyon verileri Tablo-2.4'de verilmiştir.

Tablo-2.4 : Metalik altının difraksiyon verileri

I/I_0	θ	$d[\text{pm}]$
94	19.09	235.5
71	22.18	203.97
100	32.80	144.2
43	38.80	122.2
5	40.90	117.65
4	41.03	117.33

2.3.3. DTA/TG Cihazı ve Ölçümleri

Bileşiklerin yüksek sıcaklıktaki davranışlarının incelenmesi için Shimadzu marka DT-40 model simultan diferansiyel termal analiz (DTA) ve termal gravimetre (TG) sistemi kulla-



Sekil 2.5 DTA/TG Cihazı

nıldı. Kullanılan DTA/TG cihazının şeması Şekil-2.5'de görülmektedir. Bu sistemde sıcaklık kontrolü Pt/PtRh (%10) termal çifti ile sağlanmakta ve 0 °C ile 1550 °C aralığında çalışılabilmektedir. Örnek kabı platin kröze, referans maddesi ise $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 'dür. Sıcaklık çalışmaları 25 °C ile 1200 °C arasında yaklaşık 15 miligram madde ile yürütüldü.

2.4. Yoğunluk Tayini ve Birim Hücre Başına Formül Sayısının Hesabı

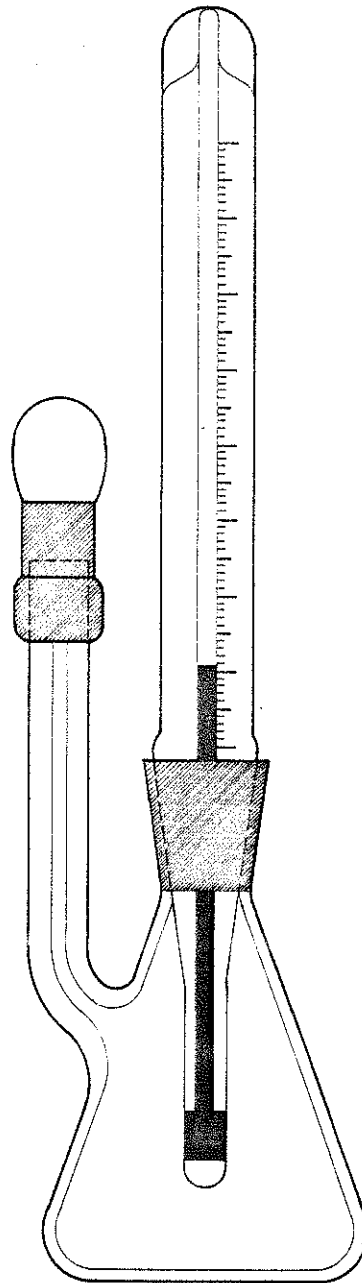
2.4.1. Yoğunluk Tayini

Yoğunluk tayini, birim hücre başına formül sayısının hesabı için gereklidir. Yoğunluk tayini toluen kullanılarak ve piknometrik yöntemle gerçekleştirildi. Önce toluenin 20 °C 'de bilinen yoğunluğundan faydalanıp piknometrenin gerçek hacmi (V_F) 5.002 (4) cm^3 olarak bulundu. Kullanılan piknometre Şekil-2.7'de şematik olarak görülmektedir.

Örnek yoğunlukların tayini için önce boş piknometrenin ağırlığı (m_F) piknometre etüvde sabit tartıma getirilerek bulundu. Sonra yoğunluğu tayin edilecek madde piknometreye kondu ve tartılarak kütlesi (m_0) bulundu. Örnek maddesi üzerine bir miktar toluen konuldu ve içerisindeki hava kabarcıklarını bertaraf etmek için ısıtıldı ve sonra soğumaya bırakıldı. Sıcaklığı oda sıcaklığına inince toluen dikkatlice eklendi, işaret çizgisine kadar dolduruldu ve tartıldı. Bulunan değerlerden (m_T) boş piknometre (m_F) ile örnek maddenin kütlesi (m_0) çıkarıldı ve toluenin kütlesi (m_t) hesaplandı:

$$m_t = m_T - (m_F + m_0)$$

Toluenin 20 °C'de bilinen yoğunluğu $\rho_{20^\circ\text{C}} = 0.866 \text{ g/cm}^3$ [17] ve hesaplanan kütlesi (m_t) yardımı ile piknometredeki tolue



Sekil 2.6 Piknometre

nin hacmi (V_t) bulundu:

$$V_t = m_t / \rho$$

Toluenin hacmi piknometrenin hacminden (V_p) çıkarıldı ve örnek maddenin hacmi (V_s) bulundu.

$$V_s = V_p - V_t$$

Örnek maddesinin yoğunluğu (ρ) örneğin bilinen hacmi ve kütlesi aşağıdaki bağıntıda yerine konarak bulundu.

$$\rho = m_s / V_s$$

2.4.2. Birim Hücre Başına Formül Sayısının Hesabı

İncelenen bileşiklerin birim hücreleri içerisindeki formül sayısı aşağıdaki bağıntıdan hesaplandı.

$$Z = NV_0D_d/M$$

Burada;

Z : birim hücre başına formül sayısı,

M : bileşiğin formül kütlesi

V_0 : birim hücre başına hacmi (cm^3)

N : Avagadro sayısını ve

D_d : bileşiğin deneysel yoğunluğunu temsil etmektedir.

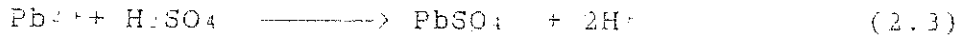
2.5. Kimyasal Analizler

Bileşiklerin kimyasal bileşimlerinden emin olmak için örneklerin elementer analizleri yapılmıştır.

2.5.1. Kurşun Analizi [15-16]

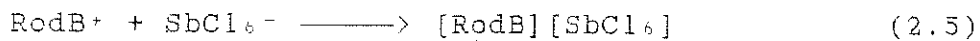
Analiz yapılacak örnekten alınan 0.250 gr'lık miktar 6 M HCl içinde çözünürleştirildi ve üzerine 1:1 oranında seyreltilmiş olan H_2SO_4 damla damla eklendi. PbSO_4 beyaz renkte

çöktü. H_2SO_4 ilavesine çökelek oluşumu tamamlanıncaya kadar devam edildi. Daha sonra çökelek daha önceden $110\text{ }^\circ\text{C}$ 'de sabit tartıma getirilmiş (G-4) Gouch krozesinden süzülerek ayrıldı. Alkol ile yıkanan çökelek, etüvde kurutuldu ve tartıldı.



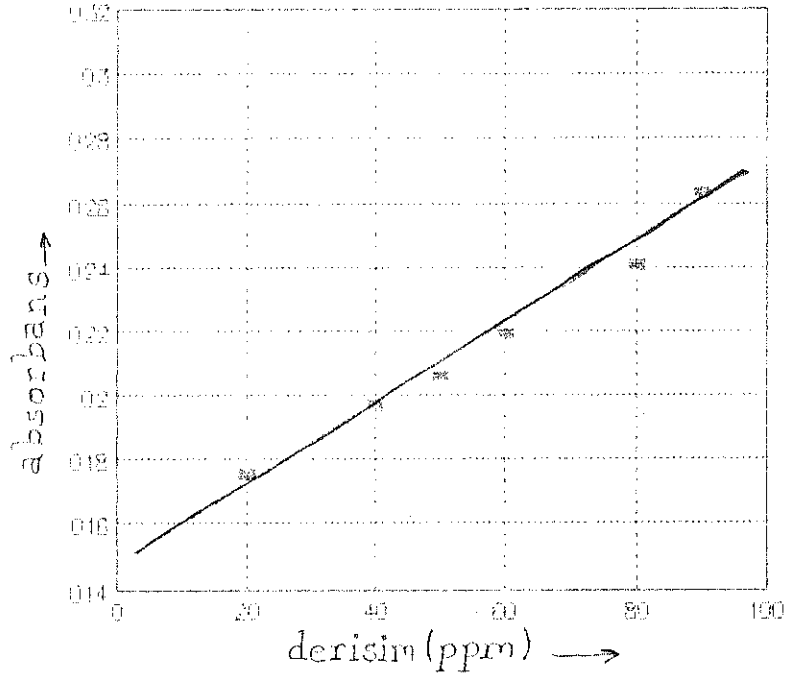
2.5.2. Antimon Analizi [18]

Analizi yapılacak örnekten alınan 0.25 gramlık miktar 6 M HCl 'de çözünürleştirildi. Örnek 250 ml'ye tamamlandı. Örnekten 1 ml alınarak santrifüj tüpüne kondu, üzerine $Ce(SO_4)_2$ 'in 0.5 M H_2SO_4 'deki ağırlıkça %3 'lük çözeltisinden 5 damla eklendi. Hafif sarı renk kaybolana kadar iyice karıştırıldı, 5 dakika sonra 5 damla ağırlıkça % 1'lik hidroksil amin hidroklorür çözeltisi eklenip, karıştırıldı. 2 dakika sonra 3 ml 1 M HCl 'de ağırlık % 0.02 'lik rodamin B [RodB] çözeltisi ilave edilip ortam saf su ile 1:1 oranında seyreltildi. Ayırma hunisine alınarak 2 ml benzende üç kısımda toplam 1 dk çalkalandı. Benzen özütünün 565 nm 'de absorban- sı ölçüldü. Aynı yöntemle stok antimon çözeltisi ile daha önceden hazırlanan ayar eğrisinden antimon miktarı bulundu. Oluşan kompleksin formülü;



şeklindedir.

Ayar eğrisi Şekil-2.6 'da verilmiştir.



Sekil-2.6 : Antimon ayar eğrisi $r=0.99$ $m=1.47$

Tablo-2.3 : Kurşun (II) oksit ve antimontrioksitin başlangıç karışımları. Oranlar $PbO:Sb_2O_3$ şeklindedir.

No	Mol Kesri	Mol Oranı
1	0.100	1:9
2	0.110	1:8
3	0.125	1:7
4	0.143	1:6
5	0.160	1:5
6	0.180	2:9
7	0.200	1:4
8	0.220	2:7
9	0.250	1:3
10	0.272	3:8
11	0.280	2:5
12	0.300	3:7
13	0.307	4:9
14	0.330	1:2
15	0.357	5:9
16	0.363	4:7
17	0.375	3:5
18	0.384	5:8
19	0.400	2:3
20	0.416	5:7
21	0.430	3:4
22	0.437	7:9
23	0.440	4:5
24	0.460	7:8
25	0.461	6:7
26	0.470	8:9
27	0.500	1:1
28	0.530	8:7
29	0.538	7:6
30	0.545	6:5
31	0.550	5:4
32	0.562	9:7
33	0.571	4:3
34	0.583	7:5
35	0.592	9:8
36	0.600	3:2
37	0.615	8:5
38	0.619	9:4
39	0.625	5:3
40	0.636	7:4
41	0.642	9:5
42	0.660	2:1
43	0.700	7:3
44	0.714	5:2
45	0.727	6:3
46	0.750	3:1
47	0.770	7:2
48	0.800	4:1
49	0.818	9:2
50	0.857	6:1
51	0.870	5:1
52	0.875	7:1
53	0.880	8:1
54	0.900	9:1

3. İNCELENEN SİSTEMLER

Bu çalışmada 0.1-0.9 mol kesri aralığına düşen ellibeş adet $PbO+Sb_2O_3$ karışım, 650 °C ile 900 °C arasında ısıtılma tabi tutuldu. Çalışma aralığı sentezlene fazların özelliğinin de dikkate alarak Şekil-3.1'de görüldüğü gibi mol kesrine göre üç farklı bölgeye ayrıldı. Birinci bölge 0.1-0.5, ikinci bölge 0.5-0.8 ve üçüncü bölge de 0.8-0.9 mol kesri aralığıdır. Bütün bölgeler ve elde edilen bileşikler aşağıda ayrıntıları ile ele alınacaktır.

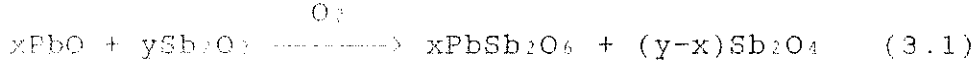
3.1. 0.1-0.5 Mol Kesri Bölgesi

Tablo-2.3'de verilen ve bu bölümde yer alan 26 adet karışım, kül fırınında açık atmosferde platin reaksiyon kaplarında Tablo-3.1'de belirtilen sıcaklık ve sürelerde ısıtılma tabi tutuldu.

Tablo-3.1 : Tepkime Koşulları

Karışım No	T (°C)	t (Saat)	Ürün
1	650-900	24-96	$PbSb_2O_4+Sb_2O_3$
2	"	"	"
.	"	"	"
.	"	"	"
26	"	"	"

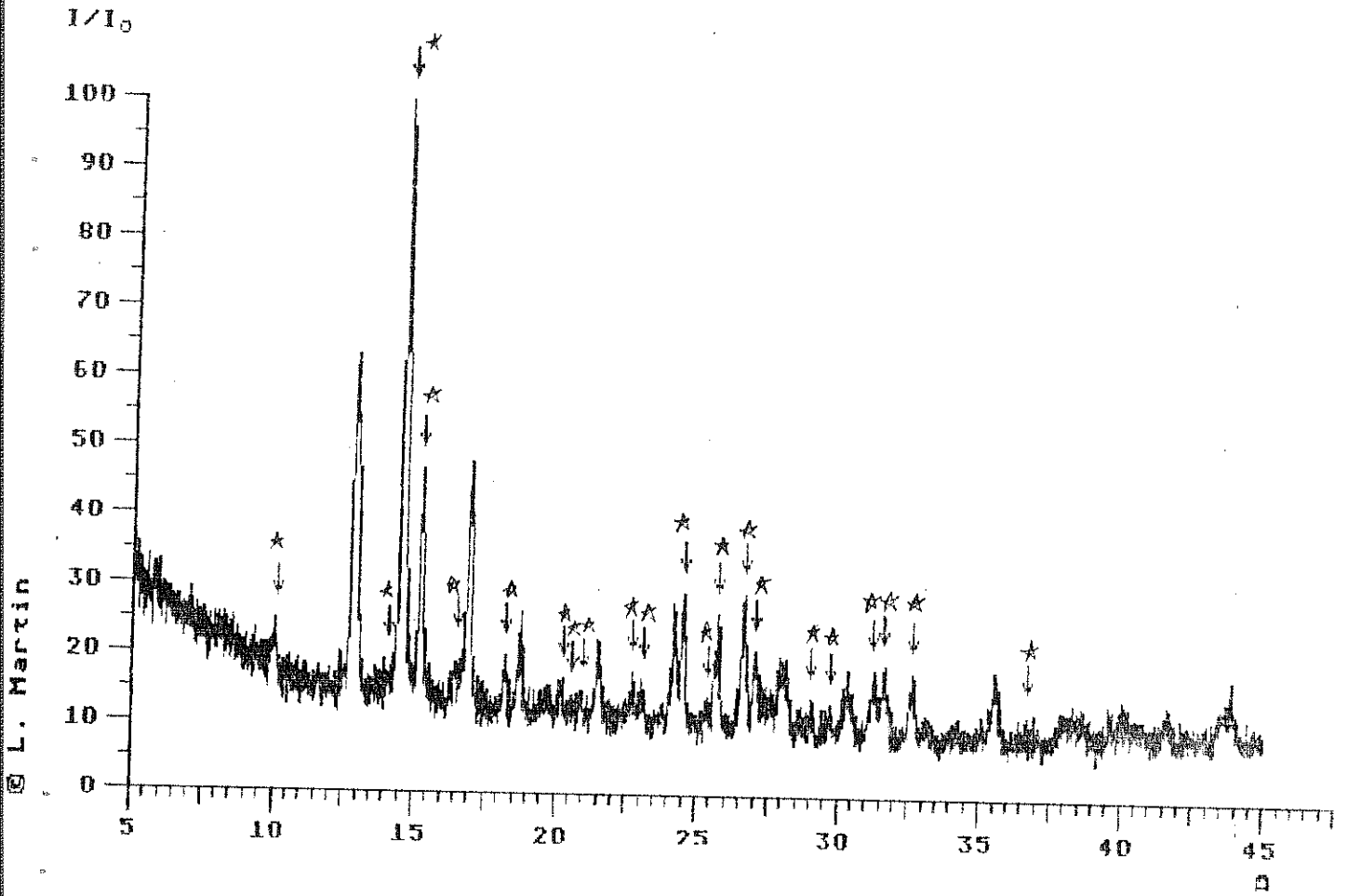
Tablo-3.1'den de görülebileceği gibi bütün tepkimelerde elde edilen ürünlerin XRPD yöntemi ile yapılan değerlendirmelerin de yalnızca iki ürünün meydana geldiği tesbit edildi.



elde edilen ürünlerin toz desenleri herbir ürüne ait literatürde verilen toz desenleri yardımı ile indislendi. Bu bölgedeki bütün karışımlara ait reaksiyon ürünlerinin toz desenleri ve yansıma listeleri Ek-1 'de verilen Şekil-E1.1-E1.26'de verilmiştir. Bütün şekillerde PbSb_2O_6 bileşiğine ait yansımalar "*" işareti ile işaretlenmiştir. Ancak 6 numaralı karışım ait toz deseni Şekil-3.1.1 ve indislenmiş yansıma listeleride Tablo-3.1.1 'de verilmiştir. Şekil-3.1.1 'de Sb_2O_4 bileşiğine ait yansımalar "*" işareti ile işaretlenmiştir.

PbSb_2O_6 bileşiğine ait X-ışınları toz deseni ve yansıma listesi de Şekil-3.1.2 ve Tablo-3.1.2'de verilmiştir.

PbSb_2O_6 ile birlikte oluşan Sb_2O_4 bileşiği ortorombik kristal sistemine sahiptir. Sb_2O_4 bileşiğine ait toz desenlerinin değerlendirilmesi ile bulunan hücre parametreleri literatürde verilenle birlikte aşağıda verilmektedir. Sonuçlar arasındaki uyum PbSb_2O_6 fazı yanında oluşan fazın Sb_2O_4 olduğunu gösteren en iyi kanıttır.



Şekil-3.3.1 : Sb_2O_4 Bileşiğinin X-Işınları Toz Deseni

Int.	I/I_0	θ_{obs}	$\sin^2\theta_{obs}$	h	k	l	d_{obs}
662.1	51.0	10.0889	0.0307	0	1	1	4.3973 *
147.5	11.4	14.1222	0.0595	1	0	3	3.1571 *
1299.1	100.0	14.6111	0.0636	1	1	2	3.0536 *
376.0	28.5	15.2667	0.0693	0	0	4	2.9254 *
114.0	8.8	16.5556	0.0812	2	0	0	2.7033 *
163.4	12.6	18.2556	0.0981	2	0	2	2.4590 *
85.4	6.6	20.2333	0.1196	2	0	3	2.2273 *
64.8	5.0	20.6111	0.1239	2	1	2	2.1982 *
74.2	5.7	20.9667	0.1280	1	2	1	2.1527 *
67.4	5.2	22.7444	0.1495	2	0	4	1.9924 *
92.5	7.1	23.0778	0.1536	1	1	5	1.9651 *
272.1	20.9	24.4889	0.1718	0	2	4	1.8583 *
61.6	4.7	25.3989	0.1838	2	2	0	1.7966 *
173.6	13.4	25.7000	0.1881	2	2	1	1.7763 *
288.6	22.2	26.6222	0.2008	2	2	2	1.7190 *
149.9	11.5	27.0556	0.2069	3	1	0	1.6935 *
93.2	7.2	28.9667	0.2345	2	0	6	1.5905 *
104.0	8.0	29.7000	0.2455	3	1	3	1.5547 *
135.9	10.5	31.2333	0.2689	1	3	2	1.4856 *
143.4	11.0	31.6222	0.2749	3	1	4	1.4691 *
120.3	9.3	32.6111	0.2904	1	3	3	1.4293 *
180.5	14.5	36.7556	0.3581	1	3	5	1.2873 *

Tablo-3.1.1 : Sb_2O_4 Bileşiğinin Yansıma Listesi

Tablo-3.1.3 : Sb_2O_3 bileşiğinin toz deseni difraksiyon verileri (a) ve hücre parametreleri (b)

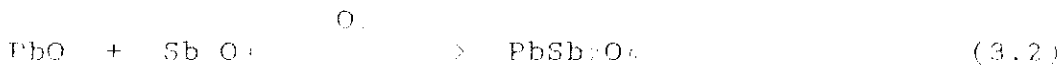
a)		
I/I_0	$d [A^\circ]$ Literatür [14]	$d [A^\circ]$ Bu çalışma
100	3.07	3.05
45	2.94	2.92
17	2.40	2.45
11	2.23	2.22
25	1.86	1.85
b)		
	$a = 5.436$	$a = 5.459$
	$b = 4.810$	$b = 4.812$
	$c = 11.76$	$c = 11.82$

3.1.6. $PbSb_2O_6$ Bileşiği

Bu bileşik DTA/TG [3], XRPD [1], tek kristal [3] yöntemleri ile daha önceki yıllarda incelenmiştir [1-3,5-8].

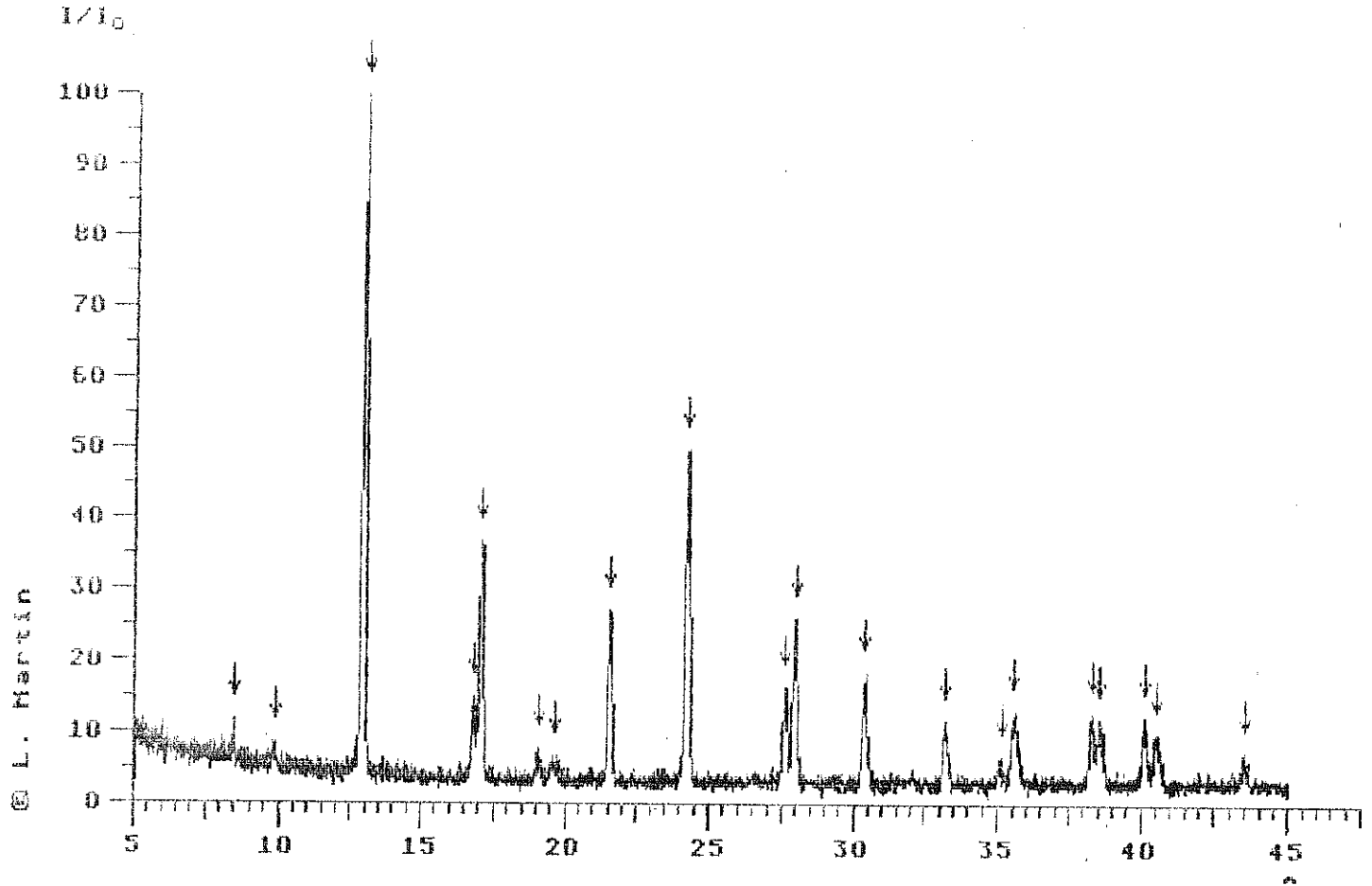
Tablo-2.3 'de verilen 27 numaralı 1:1 mol oranlı karışım önce 850°C de 6 saat daha sonra 950 °C de 24 saat fırınlandı. Sonuçta platin kayıkçık içerisinde beyaz renkli $PbSb_2O_6$ bileşiği (3.2) eşitliğine uygun olarak elde edildi.

Reaksiyon denklemi;



şeklindedir.

Elde edilen bileşiğin difraksiyon verileri Tablo-3.1.2, X-ışınları toz deseni Şekil-3.1.2 'de yer almaktadır. Toz deseninin değerlendirilmesinde bileşiğin literatürde belirtildiği gibi hegzagonal sistemde kristallendiği tesbit edildi. Bileşiğe ait hücre parametreleri ve bazı kristallografik özellikler Tablo-3.1.4'de ve kimyasal analiz sonuçları



Şekil-3.1.2 : PbSb_2O_6 Bileşiğinin X-Işınları Toz Diffraksiyonu

Int.	I/I_0	$2\theta_{\text{obs}}$	$\sin^2\theta_{\text{obs}}$	h	k	l	d_{obs}
36.6	2.8	8.4388	0.0215	0	0	1	5.2490
1286.8	100.0	12.9334	0.0501	1	0	1	3.4416
133.1	10.3	16.8183	0.0837	0	0	2	2.6623
506.0	39.3	17.0556	0.0860	1	1	0	2.6263
61.8	4.8	19.0778	0.1068	1	1	1	2.3567
83.4	6.5	19.7556	0.1142	2	0	0	2.2789
364.4	28.3	21.5542	0.1350	2	0	1	2.0967
739.6	57.5	24.2626	0.1689	1	1	2	1.8746
209.7	16.3	27.6333	0.2151	1	0	3	1.6608
371.0	28.8	27.9444	0.2196	2	1	1	1.6438
213.5	16.6	30.3769	0.2557	3	0	0	1.5233
133.4	10.4	33.2007	0.2998	2	0	3	1.4068
42.4	3.3	35.1222	0.3310	0	0	4	1.3389
222.8	17.3	35.6667	0.3400	2	2	0	1.3211
140.4	10.9	38.2889	0.3839	2	1	3	1.2432
148.0	11.5	38.5553	0.3885	3	1	1	1.2359
129.1	10.0	40.1000	0.4149	1	1	4	1.1959
127.3	9.9	40.5000	0.4218	2	2	2	1.1861
77.2	6.0	43.4444	0.4729	4	0	1	1.1202

Tablo-3.1.2 : PbSb_2O_6 Bileşiğinin Yansıma Listesi

aşağıda verilmiştir.

Tablo-3.1.4 : PbSb_2O_6 bileşiğinin hücre parametreleri ve kristallografik özellikler

	Bu çalışma	Literatür	
Kristal sistemi	Hekzagonal	Hexagonal	[1]
hücre parametreleri	a = 5.31100 c = 5.38407	a = 5.298 c = 5.376	[1]
Yoğunluk	7.2 g/cm ³	7.29 g/cm ³	[7]
Birim hücre başına formül sayısı (Z)	1		
Birim hücre hacmi V	131.521	130.68	[1]
Formül Kütlesi	548 g/mol	547 g/mol	[1]

Bileşiğe ait kimyasal analiz sonuçları:

Element	Beklenen (%)	Bulunan (%)
Pb	68.3	68.3
Sb	20.0	20.0
O	11.7	11.7

şeklindedir.

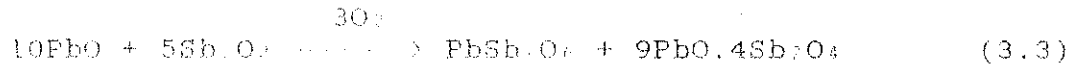
3.2. 0.5-0.8 Mol Kesri Aralığı

Tablo-2.3'deki 28-48 numaralı karışımlar arasında yer alan 20 adet karışım yine bir kül fırında platin reaksiyon kablari içinde ve açık atmosferde Tablo-3.2.1'de verilen koşullarda tepkitildiler.

Tablo-3.2.1 :

Karışım No	Isıl İşlem T (°C)	t (Saat)	Ürün
28	650-900	24-96	PbSb ₂ O ₆ +9PbO.4Sb ₂ O ₄
29	"	"	"
"	"	"	"
"	"	"	"
48	"	"	"

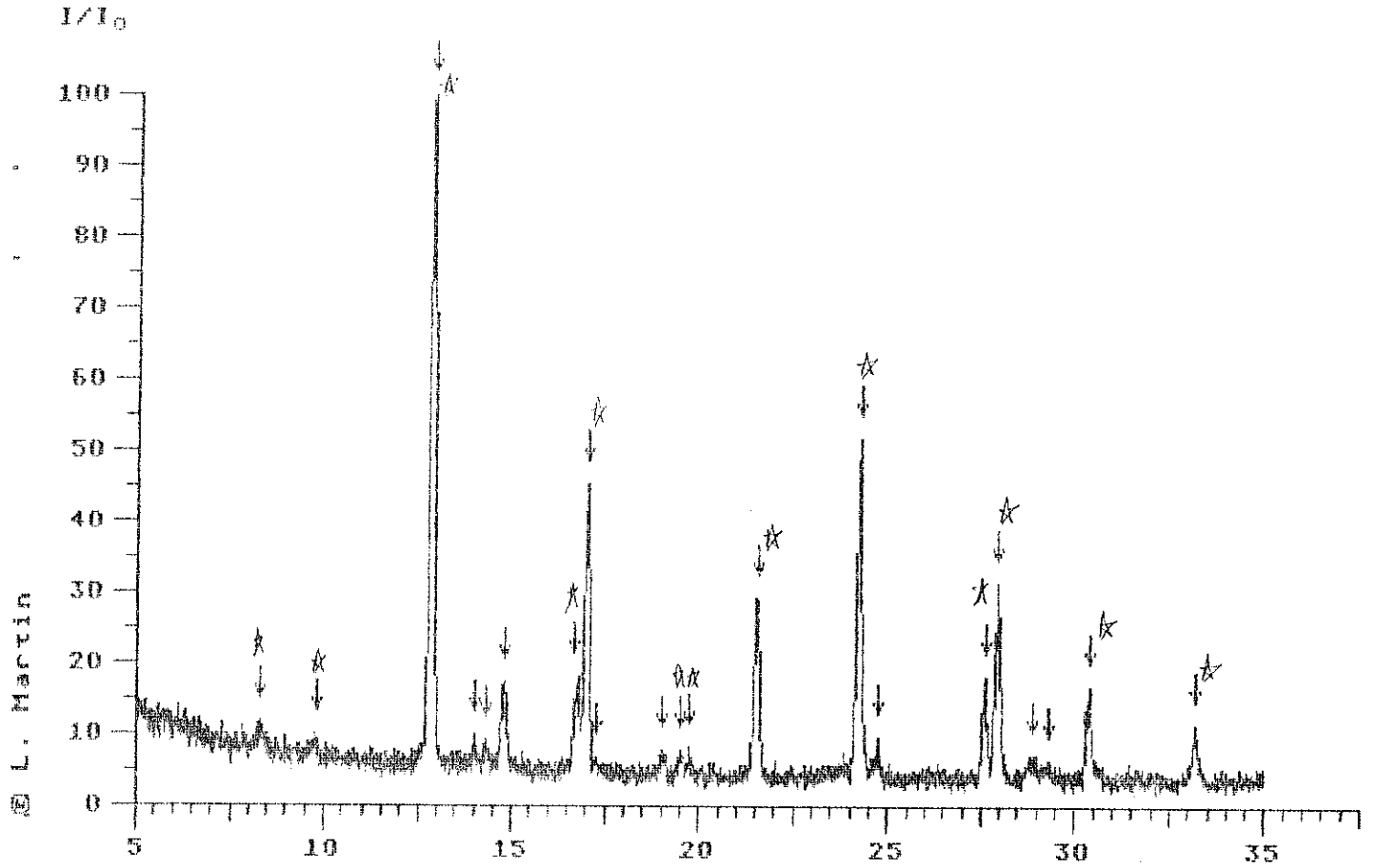
Bu bölgede yapılan bütün tepkimeler ürünleri XRPD yöntemi ile incelendiğinde yalnızca PbSb₂O₆ ve 9PbO.4Sb₂O₄ ürünlerinin karışım halinde olduğu tespit edildi.



Yukarıdaki (3.3) denklemine uygun olarak oluşan ürünlerin meydana geldiği tepkimelerde ileri düzeyde kütle kayıpları kaydedildi.

Ek 2'de bu bölgede yer alan bütün ürünlerin doz desenleri ve bu desenlere ait yansıma listeleri Şekil-E2.1-E2.19 'da verilmiştir. Ancak 30 numaralı karışıma ait toz deseni ve yansıma listeleri Şekil-3.2.1'de ve Tablo-3.2.2 'de verilmiştir. Şekillerde ve tablolar da PbSb₂O₆ fazına ait yansımalar "*" sembolü ile işaretlenmiştir.

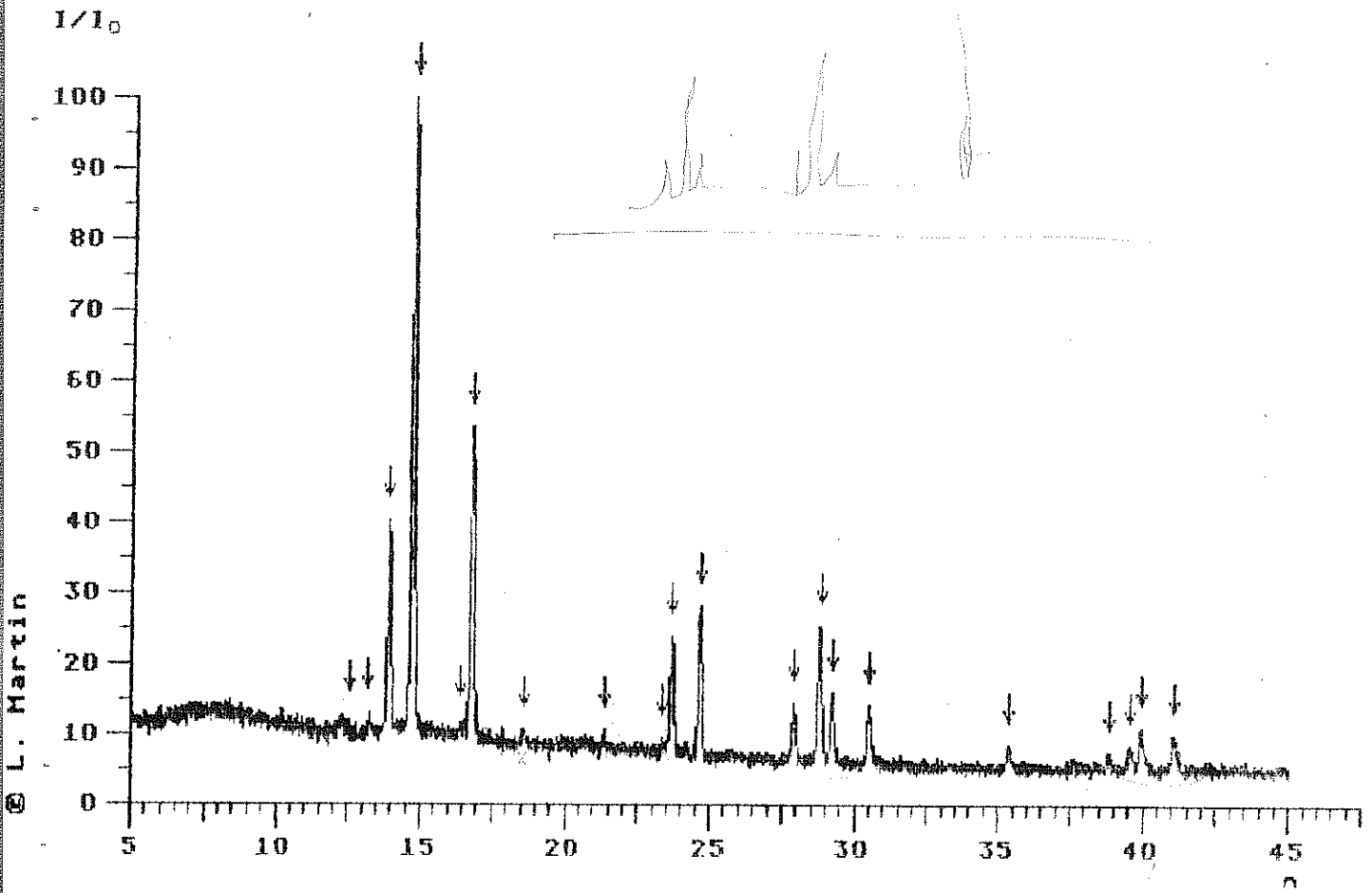
Bu aralıkta saf ve yeni olarak sentezlenen 9PbO.4Sb₂O₄ fazının toz deseni Şekil-3.2.2 ve indislenmiş yansıma listesi ve bu faza ait hücre parametreleri Tablo-3.2.3 'de verilmiştir. Bu fazın kimyasal analiz sonuçları da aşağıdaki şekildedir.



Şekil-3.2.1 : $x=0.545$ Bileşimli Örneğin X-Işınları Toz Deseni

Nr.	E Imp	rel.int.	θ	2θ	d [Å]
1	920	6.9	8.3222	16.6444	5.3220 *
2	260	1.9	9.7889	19.5778	4.5307 *
3	13418	100.0	12.8718	25.7436	3.4578 *
4	324	2.4	14.0444	28.0889	3.1742
5	179	1.5	14.3319	28.6639	3.1118
6	1677	12.5	14.8037	29.6074	3.0148
7	1555	11.6	16.6916	33.3832	2.6817 *
8	5730	42.7	17.0259	34.0518	2.6308 *
9	56	0.4	17.2674	34.5348	2.5951
10	608	4.5	19.0111	38.0222	2.3647
11	445	3.3	19.4778	38.9556	2.3102 *
12	172	1.3	19.7333	39.4667	2.2814 *
13	3533	26.3	21.5350	43.0700	2.0985 *
14	6598	49.2	24.2311	48.4621	1.8769 *
15	427	3.2	24.7252	49.4504	1.8416
16	1766	13.2	27.6111	55.2222	1.6620 *
17	3486	26.0	27.9512	55.9023	1.6434 *
18	965	7.2	28.8778	57.7556	1.5950
19	385	2.9	29.3111	58.6222	1.5735
20	1478	11.0	30.3800	60.7599	1.5231 *
21	1016	7.6	33.1909	66.3819	1.4071 *

Tablo-3.2.2 : $x=0.545$ Bileşimli Örneğin Yansıma Listesi



Şekil-3.2.2.: 9PbO-4Sb₂O₄ Bileşiğinin X-Işınları Toz Deseni

Tablo-3.2.3 : $9\text{PbO} \cdot 4\text{Sb}_2\text{O}_3$ Bileşiğinin Yansıma Listesi

Int.	$1/\lambda_0$	θ_{obs}	$\sin^2 \theta_{\text{obs}}$	h	k	l	d_{obs}
282.3	8.6	12.5444	0.0472	3	2	1	3.5466
55.8	1.7	13.2000	0.0521	4	1	0	3.3733
1033.6	31.5	13.9255	0.0579	4	1	1	3.2008
3285.6	100.0	14.7222	0.0646	3	3	1	3.0311
91.9	2.8	16.4000	0.0797	0	4	2	2.7283
1643.3	50.0	16.8000	0.0835	3	4	0	2.6651
42.4	1.3	18.5889	0.1016	4	0	3	2.4164
140.5	4.3	21.3444	0.1325	0	6	1	2.1164
46.6	1.4	23.3444	0.1570	4	2	4	1.9439
696.1	21.2	23.6444	0.1608	5	3	3	1.9207
769.5	23.4	24.6444	0.1739	5	1	4	1.8473
252.1	7.7	27.9222	0.2193	6	4	3	1.6450
765.8	23.3	28.0333	0.2326	8	3	1	1.5973
346.9	10.6	29.2333	0.2385	1	5	5	1.5773
298.6	9.1	30.5222	0.2579	7	2	4	1.5167
109.6	3.3	35.3778	0.3352	9	5	0	1.3305
126.5	3.9	38.8222	0.3930	11	0	2	1.2287
109.4	3.3	39.5702	0.4058	0	10	3	1.2092
212.7	6.5	39.9076	0.4116	8	1	6	1.2007
235.2	7.2	41.0321	0.4310	6	3	7	1.1734

Sıfır nokta düzeltmesi

$$\Delta \theta \text{ in } [^\circ] = 0.06264 \pm 0.00452$$

Birim hücre parametreleri

$$\begin{aligned} a \text{ in } [\text{\AA}] &= 13.92336 \pm 0.00205 \\ b \text{ in } [\text{\AA}] &= 12.95457 \pm 0.00216 \\ c \text{ in } [\text{\AA}] &= 10.01096 \pm 0.00158 \end{aligned}$$

Element	Beklenen %	Bulunan %
Pb	59.1	59.1
Sb	32.7	32.7
O	8.3	8.3

3.3. 0.8-0.9 Mol Kesri Aralığı

Bu bölge katı çözelti bölgesidir. Bölgede literatürde yer alan $Pb_6Sb_2O_{11}$ bileşiği 0.857 mol kesrinde bulunmaktadır. Bileşik bu çalışmada da literatüre uygun olarak 900°C de elde edildi.

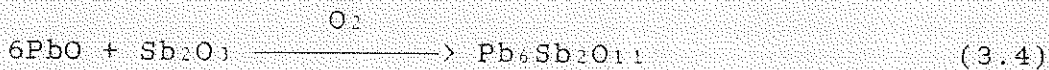
Katı çözeltideki bileşikler 650°C de elde edildi. Literatürdeki $6PbO + Sb_2O_3$ bileşiği 650°C de çalışıldığında katı çözelti bölgesindeki diğer bileşiklere uygun difraksiyon verilerine sahiptir. Bölge monoklin olarak ve tamamen aynı hkl değerleri ile indislendi. Literatürde yer alan $Pb_6Sb_2O_{11}$ bileşiği 3.3.1. konu başlığında, katı çözeltiler ise 3.3.2. konu başlığında incelenmiştir.

3.3.1. $Pb_6Sb_2O_{11}$ Bileşiği

Bileşik DTA/TG, XRPD çalışmaları daha önceki yıllarda yapılmıştır [3].

Tablo-2.3'de verilen 50 numaralı 6:1 mol oranlı karışım önce 650 °C 'de 24 saat daha sonra 900 °C 'de 10 dakika fırınlandı. Sonuçta platin kayıkçıkta beyaz renkli $Pb_6Sb_2O_{11}$ bileşiği (3.4) eşitliğine uygun olarak elde edildi.

Reaksiyon denklemi,



şeklindedir.

Bileşiğin yansıma listesi verileri Tablo-3.3.2'de ve X-ışınları toz deseni Şekil-3.3.1 'dedir. Toz deseninin değerlendirilmesinde bileşiğin literatürde belirtildiği gibi monoklin sistemde kristallendiği tesbit edildi. Bileşiğe ait hücre parametreleri ve bazı kristallografik özellikler Tablo-3.3.1 'de ve kimyasal analiz sonuçları da aşağıda verilmistir.

Tablo-3.3.1 : $Pb_2Sb_2O_{11}$ bileşiğine ait hücre parametreleri ve bazı kristallografik özellikleri

	Bu çalışma	Literatür [3]
Kristal sistemi	Monoklin	Monoklin
hücre parametreleri	$a = 12.57996$ $b = 7.46481$ $c = 8.99947$ $\beta = 134.23$	$a = 12.56$ $b = 7.445$ $c = 8.89$ $\beta = 134.2$
Yoğunluk	9.8 g/cm ³	9.3 g/cm ³
Birim hücre başına formül sayısı (Z)	2	
Birim hücre hacmi(V)	598.765	597.09
Formül Kütlesi	1668 g/mol	1663 g/mol

Bileşiğe ait kimyasal analiz sonuçları :

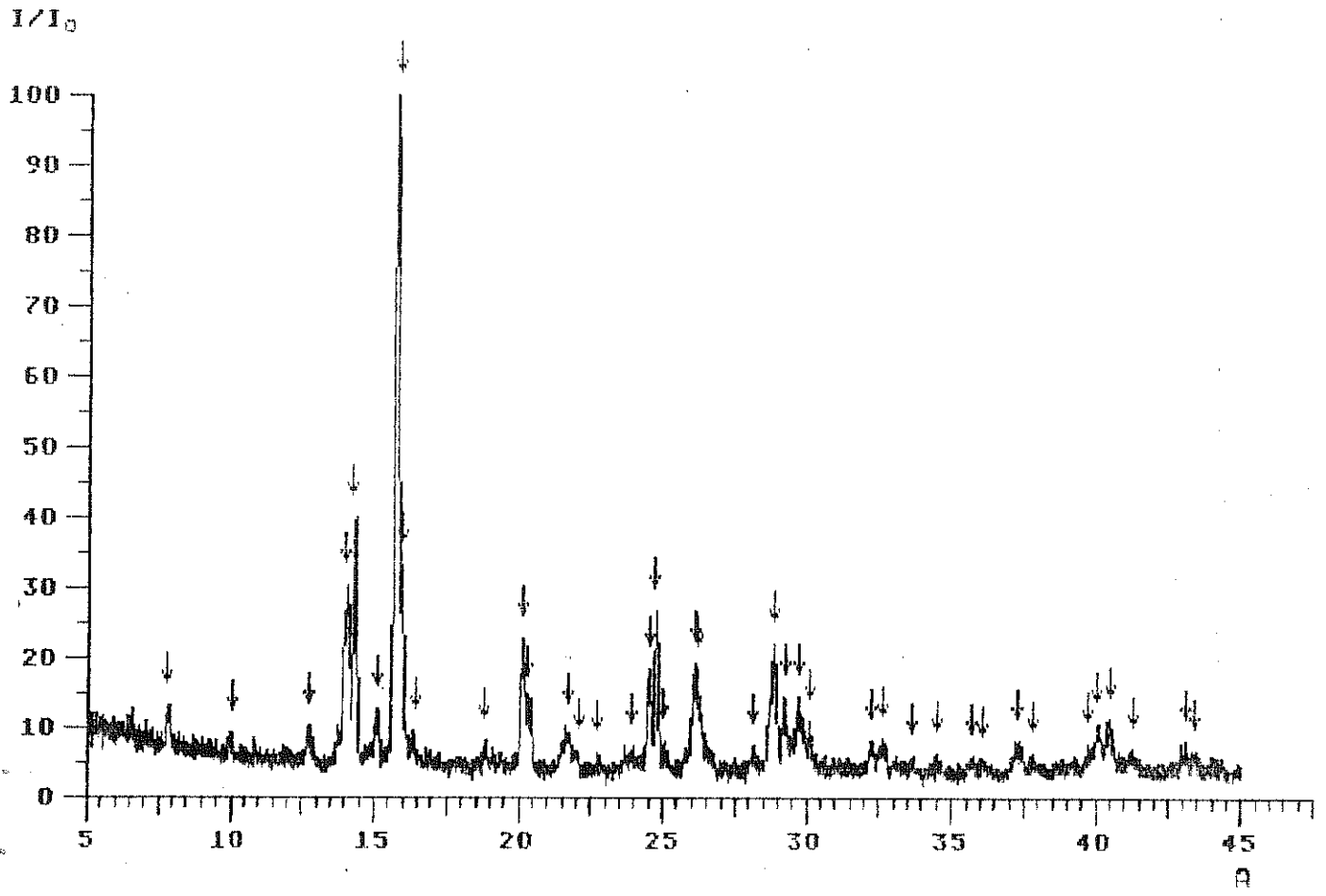
Element	Beklenen %	Bulunan %
Pb	38.0	38.0
Sb	44.5	44.5
O	17.5	17.5

şeklindedir.

Bileşiğin DTA/TG diyagramı EK-4 'de yer almaktadır.

3.3.2. Katı Çözelti Bölgesi

Tablo-2.3'de verilen 48-54 numaralı karışımların tamamı 0.8-0.9 mol kesri aralığında bulunmaktadır. Bu karışımlar



Şekil-3.3.1 : PbSb_2O_6 Bileşiğinin X-Işınları Toz Deseni

Tablo-3.3.2 : PbSb₂O₆ Bileşiğinin Yansıma Listesi

Int.	I/I ₀	θ_{obs}	$\sin^2\theta_{\text{obs}}$	h	k	l	d _{obs}
77.3	5.9	7.7467	0.0183	1	1	-1	5.7000
53.8	2.6	10.0000	0.0302	2	0	-2	4.4360
69.3	5.3	12.7333	0.0486	3	1	-2	3.4948
518.0	39.4	14.0111	0.0586	0	0	2	3.1816
499.1	38.0	14.2333	0.0605	4	0	-2	3.1329
110.3	8.4	15.1000	0.0679	3	0	-3	2.9570
1314.8	100.0	15.7889	0.0740	4	0	-1	2.8310
399.5	30.4	15.9667	0.0757	4	0	-3	2.8003
29.2	2.2	16.4111	0.0796	1	2	-2	2.7245
133.5	10.2	16.7778	0.1036	1	3	-1	2.3930
346.8	26.4	20.1333	0.1185	4	2	-3	2.2379
142.5	10.8	20.3000	0.1204	4	0	-4	2.2203
201.6	15.3	21.6556	0.1362	5	1	-1	2.0674
104.9	6.0	22.7000	0.1469	6	0	-2	1.9961
86.8	6.6	23.8889	0.1640	3	3	-3	1.9021
212.0	16.1	24.4889	0.1716	4	3	-3	1.8583
359.9	27.4	24.7000	0.1746	0	2	3	1.8434
60.6	4.6	24.9889	0.1765	1	4	-1	1.8234
157.6	12.0	26.0667	0.1931	5	3	-2	1.7530
150.6	11.5	26.1778	0.1946	1	1	-4	1.7461
35.8	2.7	29.1778	0.2230	3	3	-4	1.6313
367.1	27.9	29.6222	0.2324	4	2	1	1.5978
100.4	7.6	29.2081	0.2381	3	4	-3	1.5785
170.1	12.9	29.7444	0.2461	4	4	-3	1.5526
45.7	3.5	30.1000	0.2515	8	1	-4	1.5360
46.9	3.6	32.2333	0.2845	7	3	-4	1.4442
64.1	4.9	32.6556	0.2912	4	0	2	1.4276
12.4	0.9	33.6274	0.3067	6	1	-2	1.3910
43.5	3.3	34.5333	0.3214	7	2	-6	1.3588
43.4	3.3	35.7333	0.3411	2	5	-3	1.3190
39.7	3.0	36.0667	0.3466	2	3	-5	1.3084
82.8	6.3	37.3000	0.3672	8	0	-1	1.2711
88.9	6.8	37.7889	0.3755	6	1	1	1.2571
64.8	4.9	39.6889	0.4078	0	2	5	1.2062
44.4	3.4	40.0376	0.4138	2	6	-2	1.1974
181.7	13.8	40.4778	0.4214	3	6	-1	1.1866
53.8	4.1	41.2556	0.4348	10	2	-6	1.1691
66.9	5.1	43.0778	0.4665	6	4	-2	1.1276
63.0	4.8	43.4444	0.4729	3	0	4	1.1202

kül fırın ve platin reaksiyon kaplarında açık atmosferde Tablo-3.3.2'de belirtilen koşullarda ısıtma işlemi tabi tutuldukları her defasında aynı tip toz desenine sahip reaksiyon ürünleri elde edildi.

Tablo 3.3.2: Reaksiyon koşulları

Karışım No	T (°C)	t (Saat)
48	650	48
49	"	48
50	"	24
.	"	48
.	"	"
.	"	"
54	"	"

Şekil-3.3.1 ve Tablo-3.3.2'de 48 numaralı karışıma ait ürünün toz deseni ve indislenmiş yansıma listesi örnek olarak verilmiştir. Bölgede yer alan diğer karışımların ürünlerine ait toz deseni ve bunların yansıma listeleri Ek-3 'deki Şekil-E3.1-E3.6 ve Tablo-E3.1-E3.6 'da verilmiştir. Katı çözelti bölgesine ait DTA/TG diyagramlarından seçilen örnekler Ek-4 'de yer almaktadır.

Reaksiyon ürünlerine ait toz desenlerin tamamı aynı kristal sisteminde monoklin olarak indislenmiştir. Sonuçlar Tablo-3.3.4'de görülmektedir. Bu katı çözelti bölgesinin varlığı hakkında önceki çalışmalarda hiçbir bilgiye rastlanmamıştır.

Tablo-3.3.4 : Katı çözelti bölgesine ait bazı kristallografik parametreler.

Karışım No	Hücre Parametreleri			S	P	Z
	a(Å)	b(Å)	c(Å)			
48	13.589	12.235	9.293	98.265	6	5
49	13.619	12.216	9.292	98.452	7	2
50	13.642	12.256	9.347	98.313	6	4
51	13.659	12.194	9.401	98.439	6	3
52	13.650	12.226	9.368	98.311	6	3
53	13.634	12.231	9.345	98.258	5	2
54	13.654	12.234	9.379	98.315	7	3

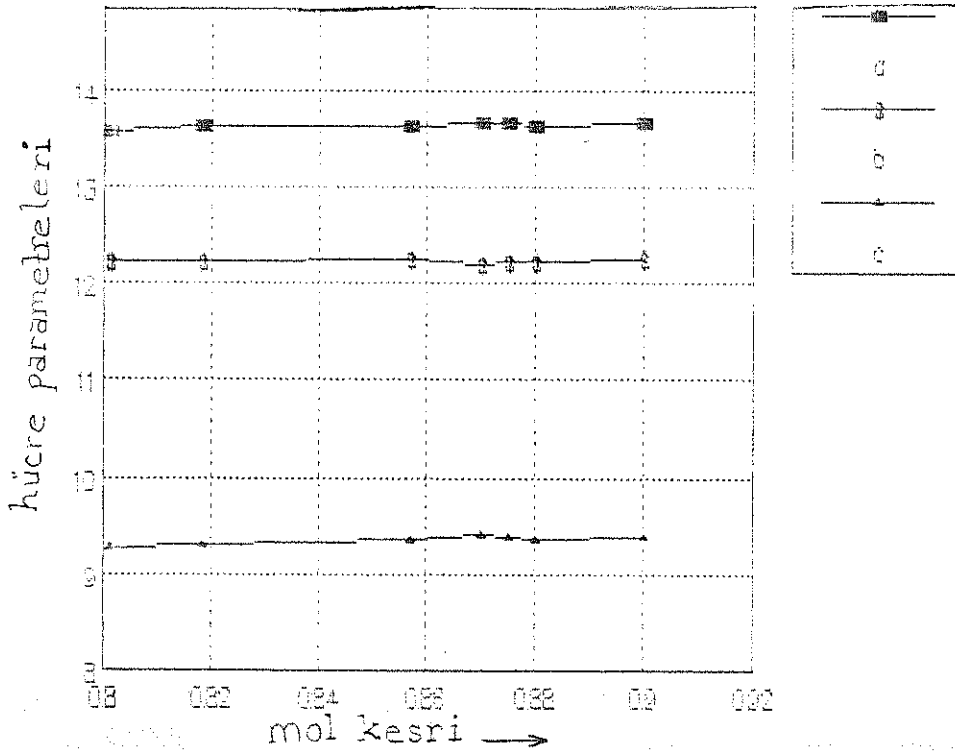
Katı çözeltiye ait hücre parametreleri mol kesrine karşı grafiğe alınmış ve değişimin seyri kontrol edilmiştir. Sonuç Şekil-3.3.3 'de görülmektedir. Ayrıca herbir ürünün kimyasal analizleri yapılmış ve sonuçlar aşağıdaki tabloda verilmiştir.

Tablo-3.3.5 : Katı çözelti bölgesinin kimyasal analiz sonuçları

Karışım No	Pb (%)		Elementler Sb (%)		O (%)	
	Bek	Bul	Bek	Bul	Bek	Bul
48	68.3	68.3	20.0	20.0	11.7	11.7
49	72.0	71.8	18.4	18.4	9.6	9.8
50	71.6	71.5	16.8	16.8	11.7	11.7
51	74.4	74.6	14.5	14.5	11.1	10.9
52	76.4	76.4	12.8	12.8	10.8	10.8
53	78.3	78.2	11.5	11.5	10.3	10.3
54	79.8	79.8	10.4	10.4	9.8	9.8

Tablo-3.3.6 : Katı çözelti bölgesinde yer alan bileşiklerin mol kesrine karşı a, b, c değerleri

Mol Kesri (PbO/Sb ₂ O ₃)	a(Å)	b(Å)	c(Å)
0.8	13.5890	12.2350	9.2830
0.818	13.6191	12.2164	9.2922
0.857	13.6420	12.2566	9.3476
0.87	13.6598	12.1942	9.4011
0.875	13.6504	12.2264	9.3769
0.88	13.6341	12.2317	9.3451
0.9	13.6500	12.2446	9.3731



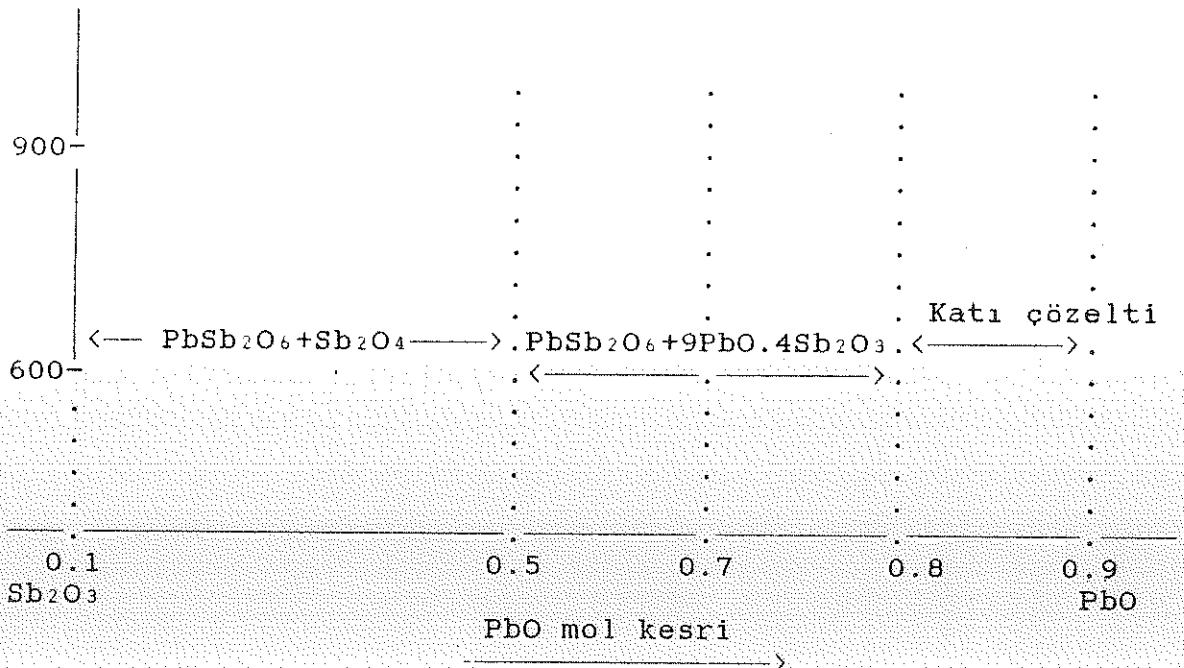
Sekil-3.3.2 : Katı çözelti bölgesindeki bileşiklerin mol kesrine karşı a, b, c değerlerinin grafiği

4. SONUÇLAR VE TARTIŞMASI

Bu çalışmada Pb-Sb-O üçlü sisteminin faz diyagramı çıkarılmaya çalışıldı.

Bu amaçla hazırlanan 55 başlangıç karışımı 650 °C 'den 950 °C 'ye kadar sıcaklıklarda ve 24 saat ile 96 saat arası sürelerde altın ve platin reaksiyon kaplarında reaksiyona tabi tutuldu. Bu işlemler sonucunda sistem için çıkarılan kaba faz diyagramı aşağıda gösterilen fazları içerdiği tesbit edildi.

T (°C)



0.1-0.5 mol kesri arasındaki bölgede literatürde ve bu çalışmada da sentezlenen PbSb_2O_6 ve Sb_2O_4 bileşiklerinin karışım halinde tüm sıcaklık ve sürelerde oluşmaktadır.

0.5-0.8 mol kesri arasındaki bölgede ise PbSb_2O_6 bileşiği ve $9\text{PbO} \cdot 4\text{Sb}_2\text{O}_3$ karışım olarak oluşmaktadır. Bütün sıcaklık ve süre taramalarında aynı sonuç ile karşılaşıldı. $9\text{PbO} \cdot 4\text{Sb}_2\text{O}_3$ saf olarak elde edildi ve faz 0.691 mol kesrine sahiptir. Literatürde varlığından söz edilen ve değişik araştırmacılar tarafından değişik sistem ve h k l değerleri de elde edilmiş olan 2:1 $\text{Pb}_2\text{Sb}_2\text{O}_7$ fazı önemli ölçüde madde kaybından dolayı sentezlenemedi.

Bu bölgede 3:1 $\text{Pb}_3\text{Sb}_2\text{O}_8$ [6] $\text{Pb}_{(3+x)}\text{Sb}_2\text{O}_8$ [3] bileşik-leri de literatürde verilmektedir. Ancak bu bileşiklerin sentezi için kapalı reaksiyon kaplarının ve çok yüksek sıcaklıkların gerekmesi nedeniyle bu çalışmada sentezlenemedi.

0.8-0.9 mol kesri bölgesinde monoklin sisteme sahip bir katı çözelti bölgesinin varlığı tesbit edildi. Katı çözelti sentez sıcaklığı 650°C ve süresi 48 saattir.

Yine literatürde 900°C 'de verilen $\text{Pb}_6\text{Sb}_2\text{O}_{11}$ bileşiği 900°C 'de bu çalışmada da elde edildi. Sonuçlar literatür ile uyum halindedir. 650°C 'de katı çözelti bölgesinde yer alan bileşiklerin 900°C 'nin üzerindeki sıcaklıklara çıkıldığında muhtemelen $\text{Pb}_6\text{Sb}_2\text{O}_{11}$ bileşiğine benzer bir katı çözelti bölgesi oluşturmak üzere faz dönüşümü gerçekleştireceği düşünülmektedir. Ancak daha yüksek sıcaklıklarda madde kaybı büyüdüğünden bu durum araştırılamadı.

KAYNAKLAR

- [1]. RODERICK J.H., "Structure of PbSb_2O_6 and its Relation Ship to the Crystal Chemistry of PbO_2 in Antimonial Lead Acid Batteries", Journal of Solid Stated Chem. 71, 12-18, 1987
- [2]. LOPATIN S.S., MEDVEDEV E.S., RAEVSKII I.P., "Phase Transformation in the Rhombohedral Lead Metaniobate and Solid Solutions Based Upon it", Russian Journal of Inorganic Chem., 30 (8), 1985
- [3]. BUSH A.A., VENETSEV Y.N., "Equilibrium Diagram of the $\text{PbO-Sb}_2\text{O}_3$ System in the Presence of Atmospheric Oxygen and the Preparation of Single Crystals of the Phases of this System", Russian Journal of Inorganic Chem., 23 (8), 1978
- [4]. BURCHARD V.G., RUDORFF W., "Zur Frage nach der Existenz eines kurbischen Phosphors $\text{Pb}_3\text{Sb}_2\text{O}_7$ ", Z. Anorg. Allg. Chem., 447, 149-152, 1978
- [5]. RAYMANDE F., "Spectroscopie Moleculaire", C.R.Acad. Sc. Paris t. 274 , 24 Jan. 1972
- [6]. KUZNETSOV V.G., KOZ'MIN R.A., "The Structure of a Phase of Composition $\text{Pb}_3\text{Sb}_2\text{O}_7$ ", Zhurnal Neorganicheskoi Khimii, Vol III. No 10 2361-2365, 1958
- [7]. MAGNELI A., "The Crystal Structure of Lead Metantimonate and Isomorphous Compounds", Arkiv F6r Kemi, Mineralogisch Geologi Band 15 B No : 3
- [8]. ASTAFEV A.V., BUSH A.N., STEFANOVICH S.Y., VENETSEV Y.N., "Preparation and Polar Properties of $\text{Pb}_3\text{Sb}_2\text{O}_7$ with the Weberite Structure", Izvestiya Akademii Nauk SSSR, Neorganicheskie Materialy, Vol 21, No 4, 645-648, April 1985
- [9]. GELACH, HENNIG, KURZ, PAWLEK, "Beitrag zur Kenntniss des Systems Blei-Antimon Sauerstoff", Metallography, 2215, 1968

- [10]. MARTIN L.A., "X-Ray Powd", West Germany, 1989
- [11]. FINK L., "Program-System GONIO/C64", Flo-Soft
Rüsselsheim - Main, 1989
- [12]. FINK L., "Bindungslängen in Oxoblerbindungen der 4D-und
5D- Elemente ein Beltrag zur Kristallehemie Dieser
Verbindungen", W.Goethe Univ. Frankfurt, 1989
- [13]. JCPDS-ICDD Copyright (c), 11-534, 1989
- [14]. JCPDS-ICDD Copyright (c), 11-694, 1989
- [15]. MULLER G.O., "Lehrbuch der Angwandten Chemie", Bjl. III
S.Hirzel Verlag, Leipzig, 1971
- [16]. GUNDUZ T., "Kantitatif Analiz Laboratuvar Kitabı",
Ankara Univ. Fen Fak. Yayınları 1983
- [17]. Handbook of Chemistry and Physics 1977-78
- [18]. MARCZERKO Z., "Separation and Spectrophotometric
Determination of Elements", Warsaw Technical University
141-143, 1986

EK-1

Şekil-E1.1: $x=0.1$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri

Şekil-E1.2: $x=0.11$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri

Şekil-E1.3: $x=0.125$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri

Şekil-E1.4: $x=0.143$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri

Şekil-E1.5: $x=0.16$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri

Şekil-E1.6: $x=0.2$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri

Şekil-E1.7: $x=0.22$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri

Şekil-E1.8: $x=0.25$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri

Şekil-E1.9: $x=0.272$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri

Şekil-E1.10: $x=0.28$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri

Şekil-E1.11: $x=0.3$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri

Şekil-E1.12: $x=0.307$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri

Şekil-E1.13: $x=0.33$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri

Şekil-E1.14: $x=0.357$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri

Şekil-E1.15: $x=0.363$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için
toz deseni ve verileri

Şekil-E1.16: $x=0.375$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için
toz deseni ve verileri

Şekil-E1.17: $x=0.384$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için
toz deseni ve verileri

Şekil-E1.18: $x=0.4$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için
toz deseni ve verileri

Şekil-E1.19: $x=0.416$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için
toz deseni ve verileri

Şekil-E1.20: $x=0.43$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için
toz deseni ve verileri

Şekil-E1.21: $x=0.437$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için
toz deseni ve verileri

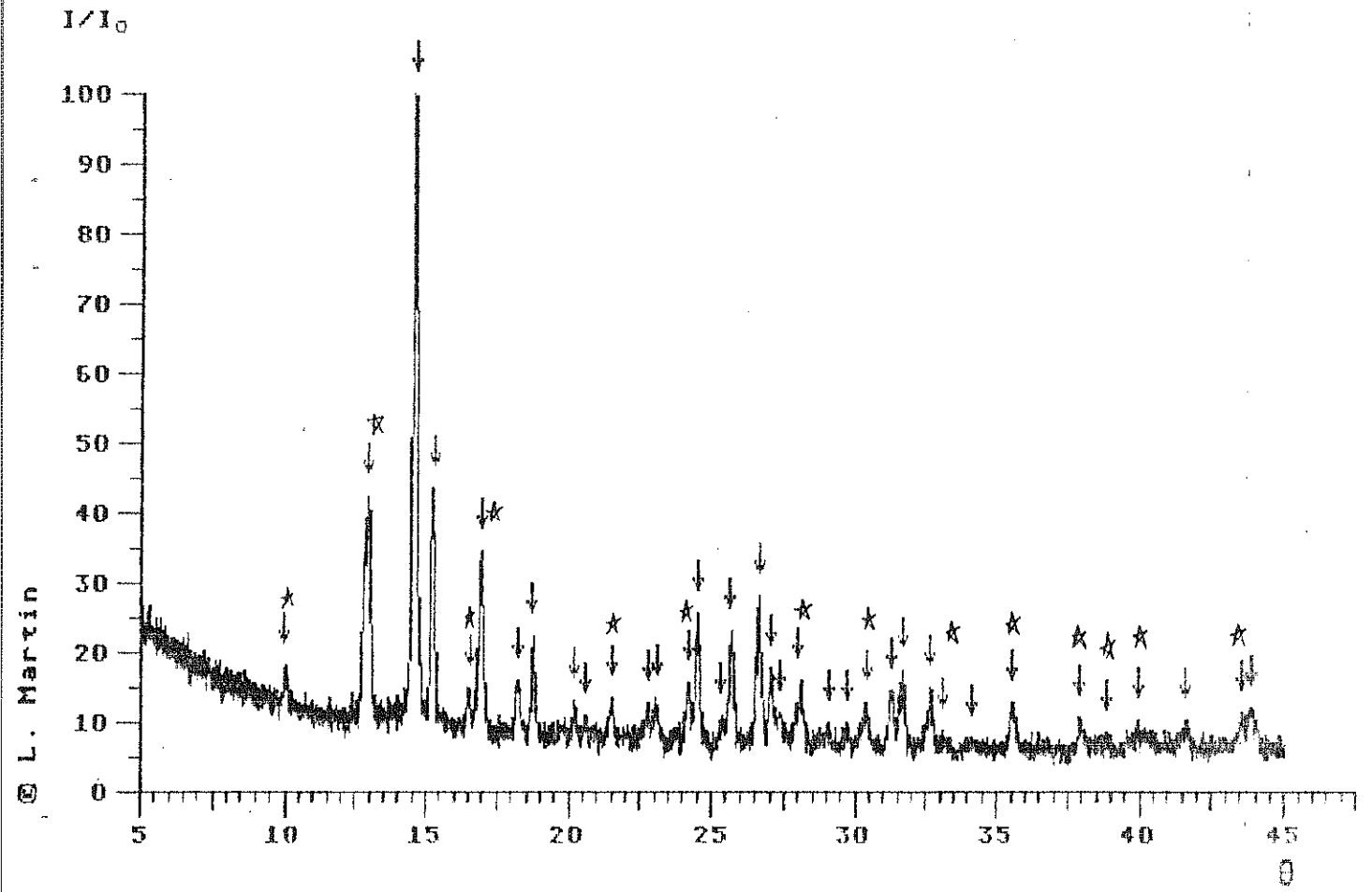
Şekil-E1.22: $x=0.44$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için
toz deseni ve verileri

Şekil-E1.23: $x=0.46$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için
toz deseni ve verileri

Şekil-E1.24: $x=0.465$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için
toz deseni ve verileri

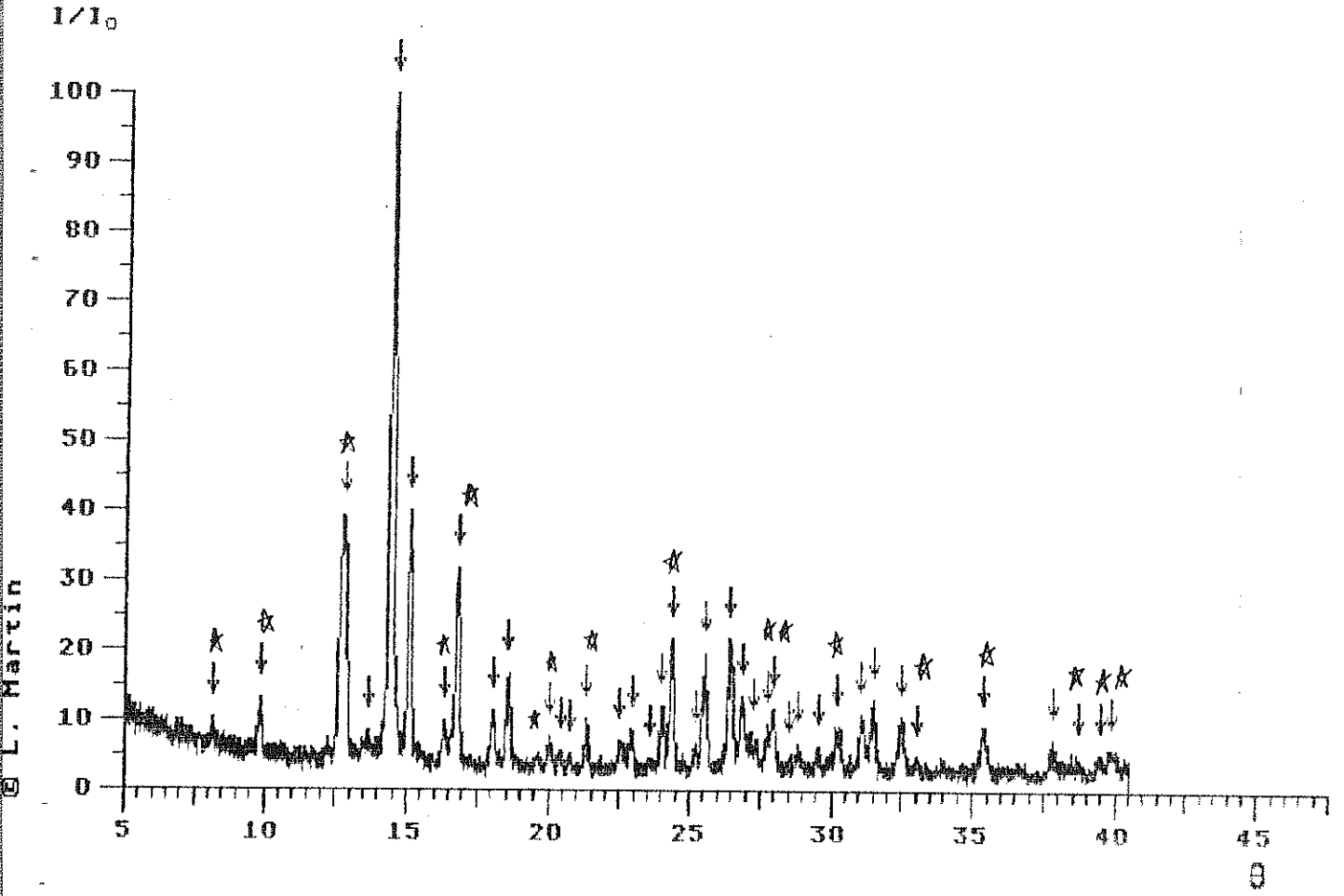
Şekil-E1.25: $x=0.47$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için
toz deseni ve verileri

Sekil-E1.1: $x=0.1$ bileşimli SrFe_2O_7 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



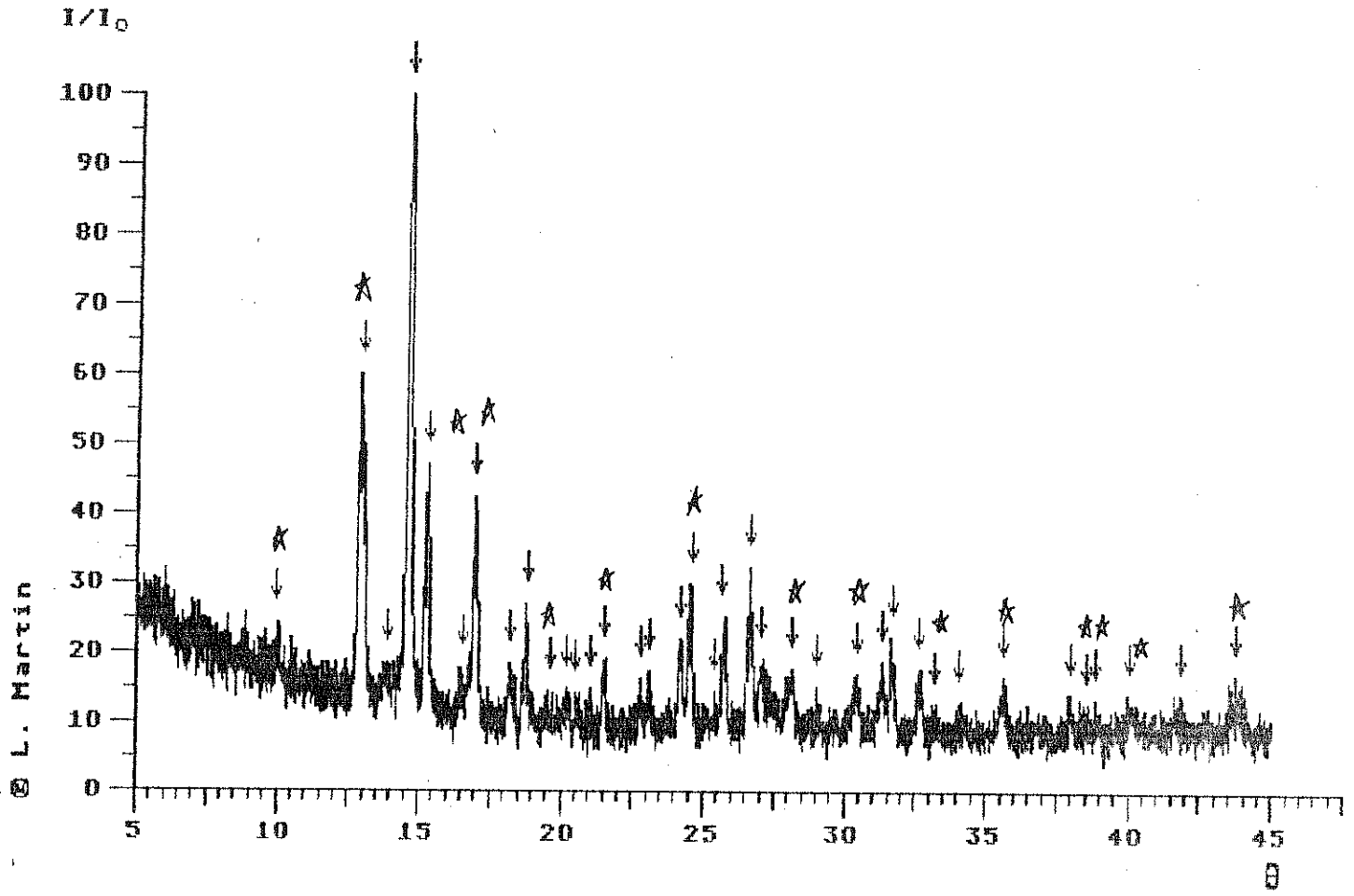
Nr.	Σ Imp	rel. Int.	θ	2θ	d [Å]
1	896	4.9	9.9889	19.9778	4.4409
2	9512	51.8	12.9333	25.8667	3.4416
3	18345	100.0	14.6000	29.2000	3.0559
4	5711	31.1	15.2889	30.5778	2.9213
5	928	5.1	16.5778	33.1556	2.6798
6	5685	31.0	16.9494	33.8987	2.6423
7	1266	6.9	18.2164	36.4327	2.4641
8	2207	12.0	18.7111	37.4222	2.4012
9	363	2.0	20.2133	40.4265	2.2294
10	801	4.4	20.5778	41.1556	2.1916
11	975	5.3	21.4966	42.9932	2.1021
12	1207	6.6	22.8111	45.6222	1.9869
13	675	3.7	23.1333	46.2667	1.9607
14	1353	7.4	24.2333	48.4667	1.8767
15	3281	17.9	24.5444	49.0889	1.8544
16	500	2.7	25.3444	50.6889	1.7995
17	3264	17.8	25.6333	51.2667	1.7806
18	4076	22.2	26.6184	53.2368	1.7192
19	1798	9.8	27.0332	54.0664	1.6948
20	333	1.8	27.3490	54.6981	1.6767
21	2419	13.2	27.9778	55.9556	1.6420
22	1747	9.5	29.0667	58.1333	1.5855
23	1084	5.9	29.6778	59.3556	1.5558
24	794	4.3	30.4432	60.8864	1.5203
25	2006	10.9	31.2940	62.5881	1.4830
26	2850	15.5	31.6444	63.2889	1.4682
27	1615	8.8	32.6444	65.2889	1.4280
28	1052	5.7	33.0667	66.1333	1.4118
29	798	4.3	34.1222	68.2444	1.3732
30	1623	8.8	35.5671	71.1341	1.3243
31	1194	6.5	37.9000	75.8000	1.2540
32	924	5.0	38.8556	77.7111	1.2278
33	1731	9.4	39.9222	79.8444	1.2005
34	1341	7.3	41.5889	83.1778	1.1605
35	1243	6.8	43.5667	87.1333	1.1177

Sekil-E1.2: $x=0.11$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



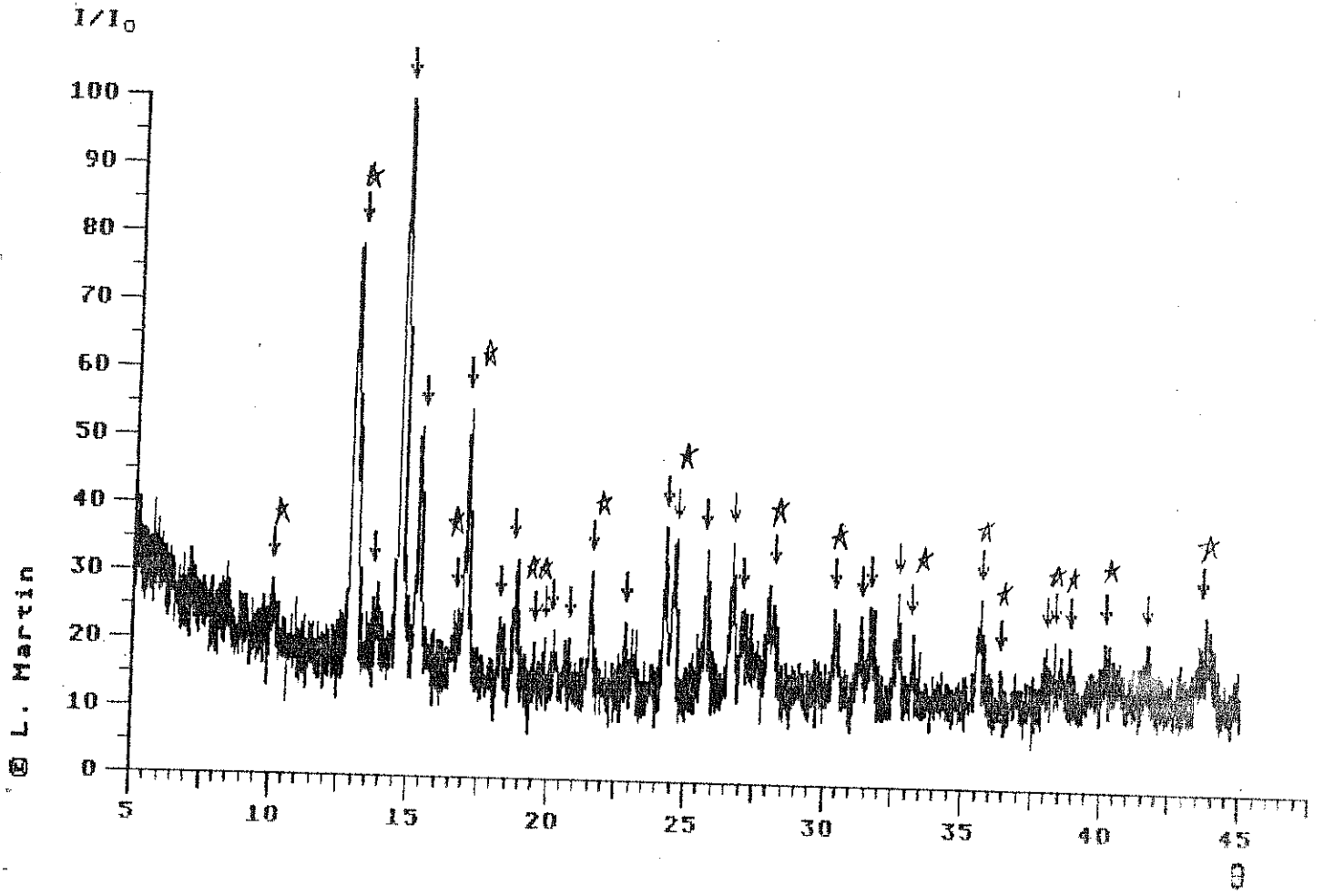
Nr.	E Imp	rel. Int.	θ	2θ	d [Å]
1	837	5.4	8.1111	16.2222	5.4595
2	851	5.5	9.8667	19.7333	4.4953
3	8082	52.1	12.7556	25.5111	3.4888
4	793	5.1	13.6222	27.2444	3.2706
5	15499	100.0	14.4111	28.8222	3.0951
6	4424	28.5	15.0889	30.1778	2.9591
7	655	4.2	16.3222	32.6444	2.7409
8	4693	30.3	16.7778	33.5556	2.6685
9	1091	7.0	18.0556	36.1111	2.4853
10	1785	11.5	18.5667	37.1333	2.4192
11	272	1.8	20.0000	40.0000	2.2522
12	325	2.1	20.4444	40.8889	2.2053
13	304	2.0	20.7333	41.4667	2.1759
14	695	4.5	21.3222	42.6444	2.1185
15	594	3.8	22.5111	45.0222	2.0119
16	760	4.9	22.9111	45.8222	1.9787
17	246	1.6	23.5889	47.1778	1.9249
18	1163	7.5	24.0000	48.0000	1.8939
19	2617	16.9	24.3444	48.6889	1.8687
20	384	2.5	25.2000	50.4000	1.8092
21	2361	15.2	25.5333	51.0667	1.7871
22	3165	20.4	26.4222	52.8444	1.7311
23	1005	6.5	26.8444	53.6889	1.7058
24	1148	7.4	27.2444	54.4889	1.6827
25	396	2.6	27.7111	55.4222	1.6565
26	1249	8.1	27.9667	55.9333	1.6426
27	129	0.8	28.5333	57.0667	1.6126
28	510	3.3	28.8222	57.6444	1.5978
29	379	2.4	29.5444	59.0889	1.5622
30	834	5.4	30.2222	60.4444	1.5303
31	1136	7.3	31.0889	62.1778	1.4918
32	1554	10.0	31.4889	62.9778	1.4747
33	1476	9.5	32.4778	64.9556	1.4345
34	347	2.2	33.0111	66.0222	1.4139
35	952	6.1	35.4111	70.8222	1.3294

Sekil-E1.3: $x=0.125$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



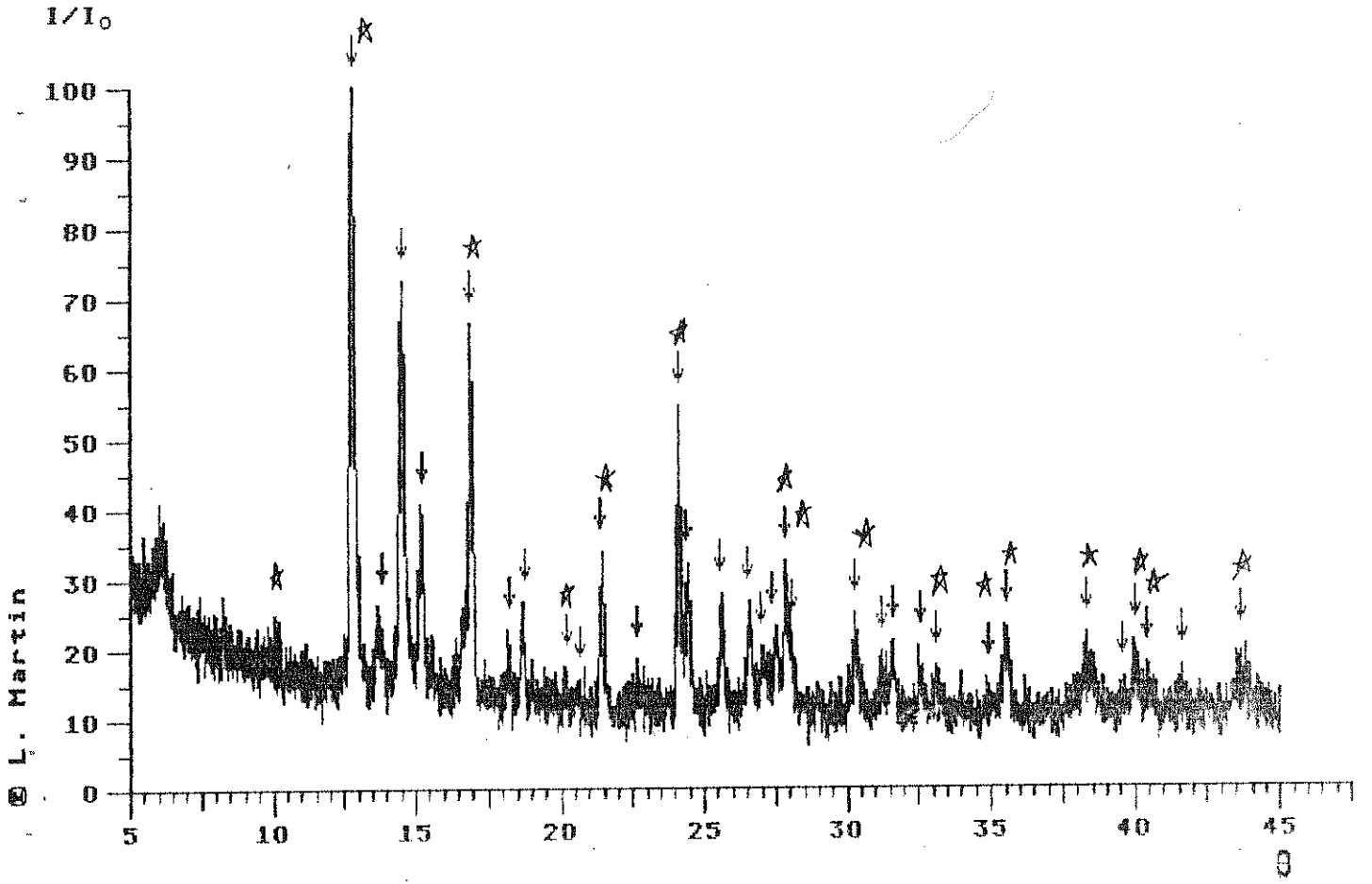
Nr.	Σ Imp	rel. Int.	θ	2θ	d [Å]
1	1311	18.9	9.9556	19.9111	4.4556
2	4673	67.3	12.9222	25.8444	3.4446
3	656	9.4	13.8667	27.7333	3.2141
4	6945	100.0	14.6000	29.2000	3.0559
5	2257	32.5	15.3000	30.6000	2.9192
6	345	5.0	16.5889	33.1778	2.6980
7	2838	40.9	16.9444	33.8889	2.6430
8	1298	18.7	18.1889	36.3778	2.4677
9	913	13.1	18.8222	37.6444	2.3875
10	313	4.5	19.6333	39.2667	2.2926
11	625	9.0	20.2111	40.4222	2.2297
12	551	7.9	20.5222	41.0444	2.1973
13	378	5.4	21.0222	42.0444	2.1473
14	357	5.1	21.4889	42.9778	2.1028
15	574	8.3	22.7778	45.5556	1.9896
16	670	9.6	23.1333	46.2667	1.9607
17	935	13.5	24.1889	48.3778	1.8799
18	1571	22.6	24.5667	49.1333	1.8528
19	393	5.7	25.3778	50.7556	1.7973
20	1069	15.4	25.6556	51.3111	1.7791
21	1278	18.4	26.6222	53.2444	1.7190
22	789	11.4	27.0556	54.1111	1.6935
23	943	13.6	28.1000	56.2000	1.6354
24	1064	15.3	29.0222	58.0444	1.5878
25	254	3.7	30.4333	60.8667	1.5207
26	989	14.2	31.2667	62.5333	1.4841
27	1001	14.4	31.6444	63.2889	1.4682
28	639	9.2	32.6222	65.2444	1.4289
29	504	7.3	33.1889	66.3778	1.4072
30	675	9.7	34.0444	68.0889	1.3759
31	362	5.2	35.6111	71.2222	1.3229
32	1439	20.7	37.9667	75.9333	1.2521
33	575	8.3	38.5667	77.1333	1.2356
34	523	7.5	38.8444	77.6889	1.2281
35	847	12.2	40.0333	80.0667	1.1975

Şekil-E1.4: $x=0.143$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



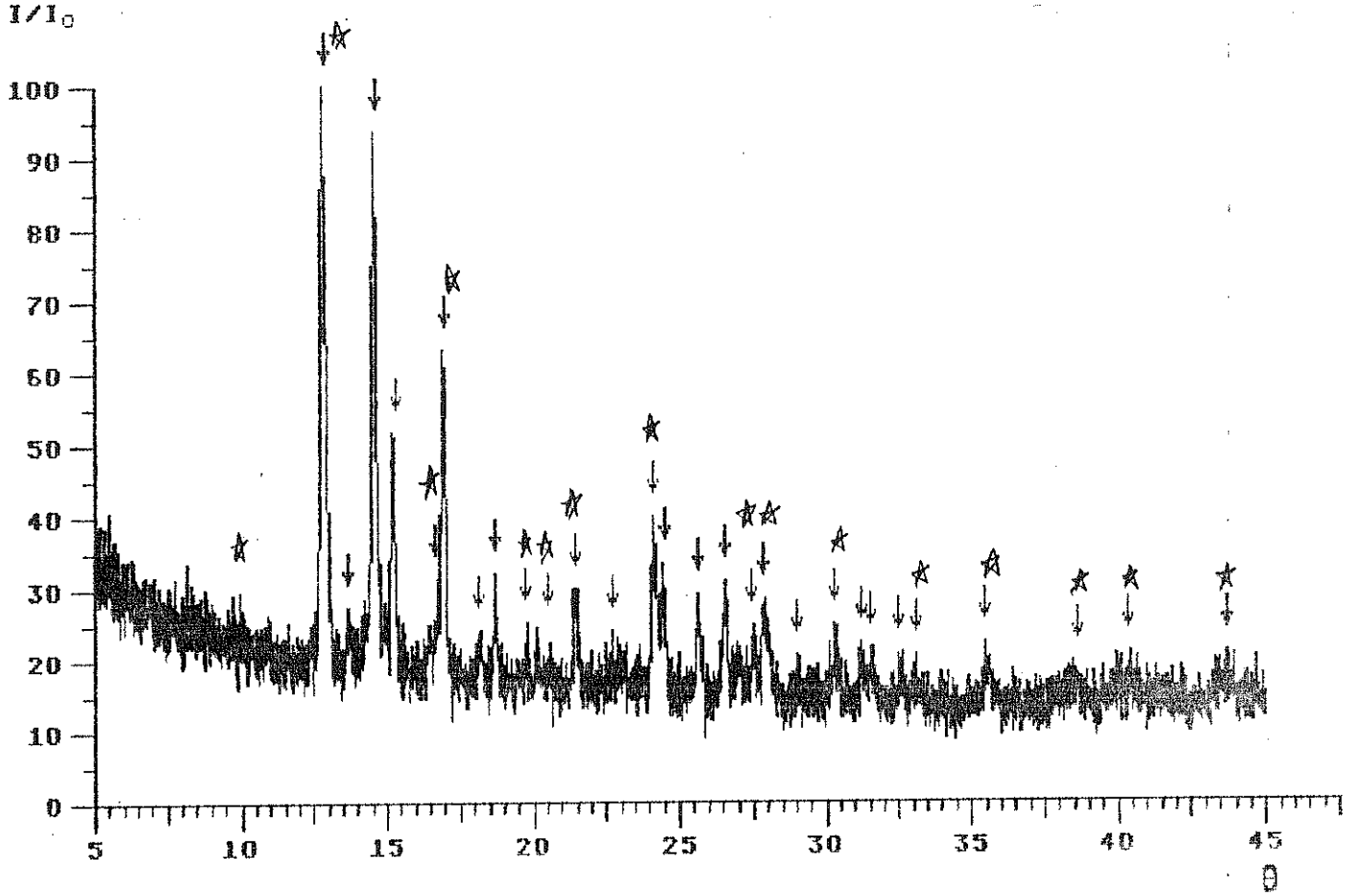
Nr.	Z Imp	rel.int.	θ	2 θ	d [Å]
1	1005	21.6	19.0000	20.0000	4.4360
2	4652	100.0	13.0000	26.0000	3.4243
3	867	18.6	13.6444	27.2889	3.2654
4	4572	98.3	14.6111	29.2222	3.0536
5	1767	38.0	15.3556	30.7111	2.9089
6	740	15.9	16.6778	33.3556	2.6841
7	1865	40.1	17.0000	34.0000	2.6347
8	1016	21.8	18.2000	36.4000	2.4663
9	1727	37.1	18.6778	37.3556	2.4053
10	399	8.6	19.4889	38.9778	2.3089
11	555	11.9	19.8667	39.7333	2.2667
12	190	4.1	20.1333	40.2667	2.2379
13	221	4.8	20.7444	41.4889	2.1748
14	657	14.1	21.5000	43.0000	2.1018
15	1218	26.2	22.7667	45.5333	1.9705
16	1079	23.2	24.2333	48.4667	1.8767
17	1232	26.5	24.5889	49.1778	1.8512
18	965	20.7	25.6333	51.2667	1.7896
19	1038	22.3	26.6111	53.2222	1.7197
20	236	5.1	27.0222	54.0444	1.6954
21	1250	26.9	28.1444	56.2889	1.6330
22	823	17.7	30.3444	60.6889	1.5248
23	351	7.5	31.3222	62.6444	1.4818
24	445	9.6	31.6333	63.2667	1.4687
25	433	9.3	32.6333	65.2667	1.4284
26	292	6.3	33.1333	66.2667	1.4093
27	466	10.0	35.5889	71.1778	1.3236
28	357	7.7	36.3000	72.6000	1.3012
29	599	12.9	37.9889	75.9778	1.2515
30	291	6.3	38.2667	76.5333	1.2438
31	355	7.6	38.8111	77.6222	1.2290
32	759	16.3	40.0889	80.1778	1.1962
33	988	21.2	41.5889	83.1778	1.1605
34	948	20.4	43.6000	87.2000	1.1170

Şekil-E1.5: $x=0.16$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



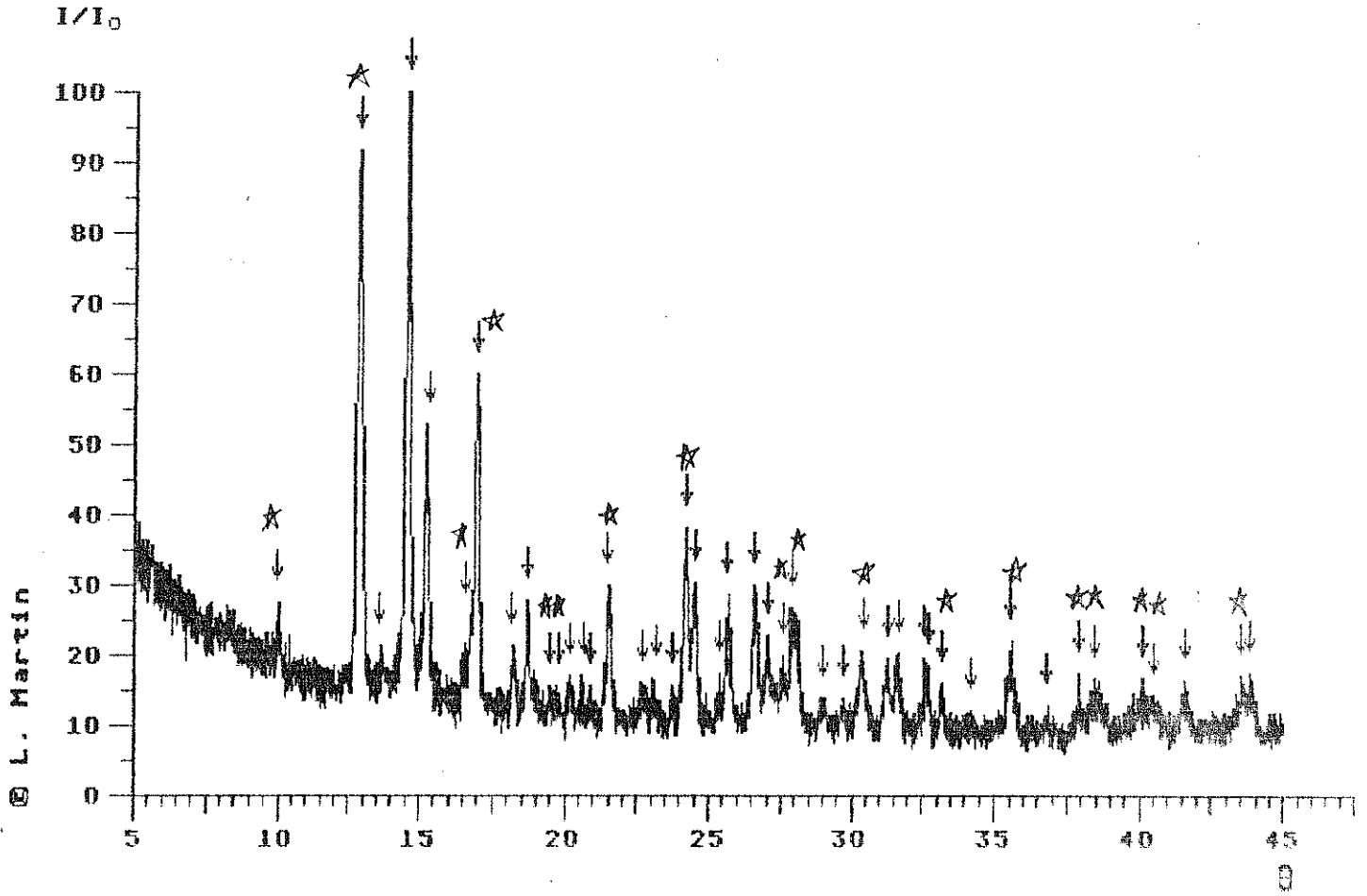
Nr.	E Imp	rel.Int.	θ	2 θ	d [Å]
1	6278	100.0	12.8111	25.6222	3.4739
2	405	6.4	13.7778	27.5556	3.2344
3	4249	67.7	14.5000	29.0000	3.0765
4	1505	24.0	15.2111	30.4222	2.9359
5	2369	37.7	16.8667	33.7333	2.6549
6	836	13.3	18.2444	36.4889	2.4605
7	537	8.6	18.7444	37.4889	2.3971
8	625	10.0	20.1556	40.3111	2.2355
9	423	6.7	20.6333	41.2667	2.1860
10	1162	18.5	21.4000	42.8000	2.1111
11	1257	20.0	22.6333	45.2667	2.0017
12	2438	38.8	24.1556	48.3111	1.8824
13	1132	18.0	24.4000	48.8000	1.8647
14	741	11.8	25.5778	51.1556	1.7842
15	792	12.6	26.5111	53.0222	1.7257
16	500	8.0	26.9444	53.8889	1.7000
17	412	6.6	27.3889	54.7778	1.6745
18	1320	21.0	27.8111	55.6222	1.6510
19	247	3.9	28.0578	56.1156	1.6377
20	376	6.0	30.2423	60.4847	1.5294
21	758	12.1	31.1889	62.3778	1.4875
22	1014	16.1	31.6000	63.2000	1.4701
23	672	10.7	32.5222	65.0444	1.4328
24	558	8.9	33.1333	66.2667	1.4093
25	368	5.9	34.9000	69.8000	1.3463
26	1320	21.0	35.5111	71.0222	1.3261
27	1500	23.9	38.3000	76.6000	1.2429
28	376	6.0	39.5222	79.0444	1.2104
29	522	8.3	40.0556	80.1111	1.1970
30	684	10.9	40.4556	80.9111	1.1872
31	640	10.2	41.6111	83.2222	1.1600
32	1029	16.4	43.6444	87.2889	1.1161

Şekil-E1.6: x=0.2 bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



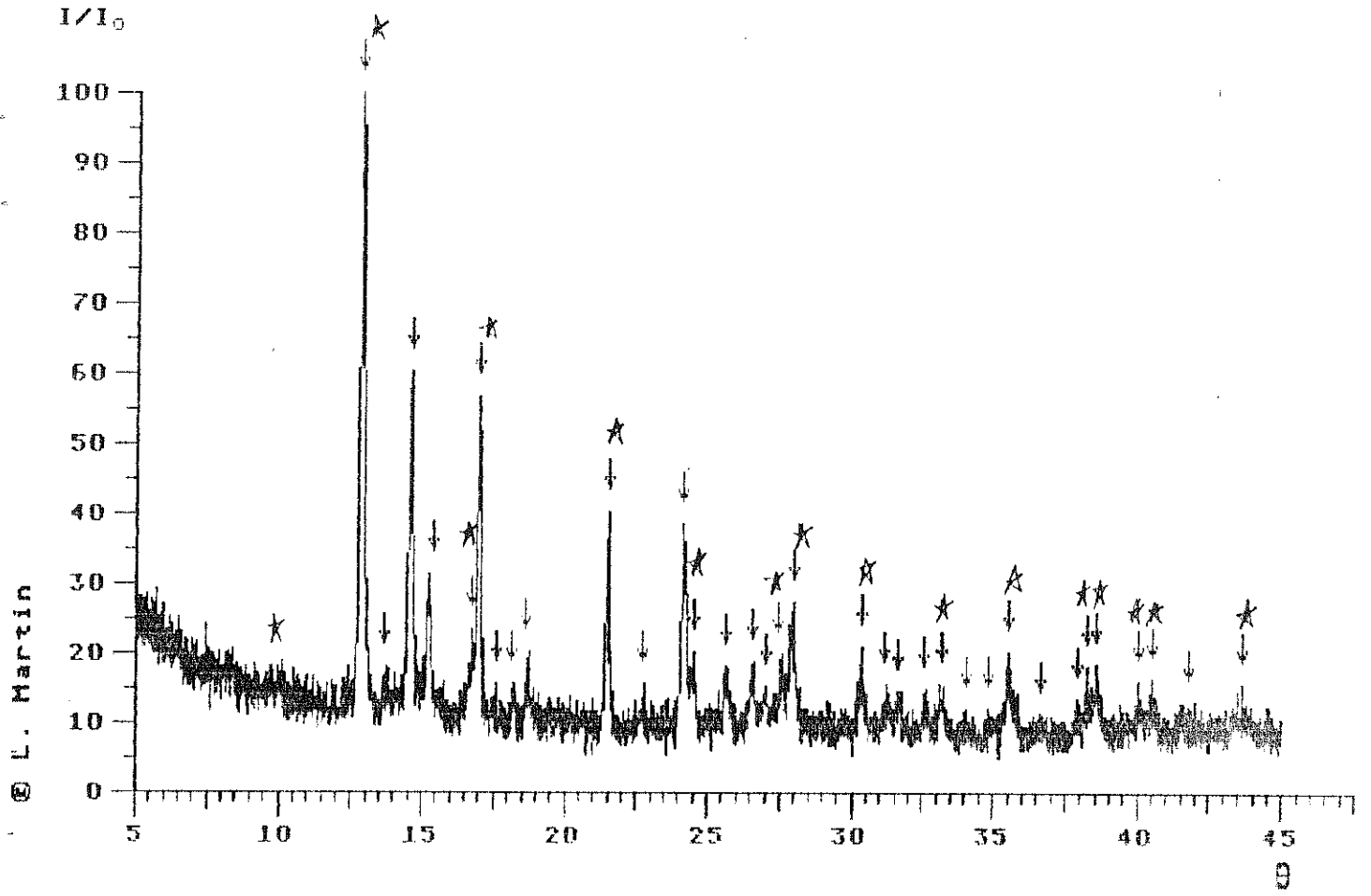
Nr.	E Imp	rel.Int.	θ	2θ	d [Å]
1	6577	100.0	12.8444	25.6889	3.4651
2	766	11.6	13.6333	27.2667	3.2680
3	5093	77.4	14.5889	29.1778	3.0582
4	3807	57.9	15.3111	30.6222	2.9171
5	698	10.6	16.6333	33.2667	2.6910
6	2063	31.4	16.9333	33.8667	2.6447
7	751	11.4	18.1444	36.2889	2.4736
8	318	4.8	18.6556	37.3111	2.4081
9	1069	16.3	19.7556	39.5111	2.2789
10	1291	19.6	20.5111	41.0222	2.1984
11	1320	20.1	21.4444	42.8889	2.1070
12	1249	19.0	22.7000	45.4000	1.9961
13	1626	24.7	24.1333	48.2667	1.8840
14	848	12.9	24.5222	49.0444	1.8559
15	821	12.5	25.6333	51.2667	1.7896
16	874	13.3	26.5667	53.1333	1.7223
17	862	13.1	27.4444	54.8889	1.6713
18	1814	27.6	27.8222	55.6444	1.6504
19	1919	29.2	28.9889	57.9778	1.5894
20	1298	19.7	30.3000	60.6000	1.5268
21	858	13.0	31.1889	62.3778	1.4875
22	732	11.1	31.5556	63.1111	1.4719
23	585	8.9	32.4667	64.9333	1.4350
24	708	10.8	33.1222	66.2444	1.4097
25	856	13.0	35.4778	70.9556	1.3272
26	2164	32.9	38.5778	77.1556	1.2353
27	3057	46.5	40.3000	80.6000	1.1910
28	1126	17.1	43.7111	87.4222	1.1147

Şekil-E1.7: $x=0.22$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için teorisi ve verileri



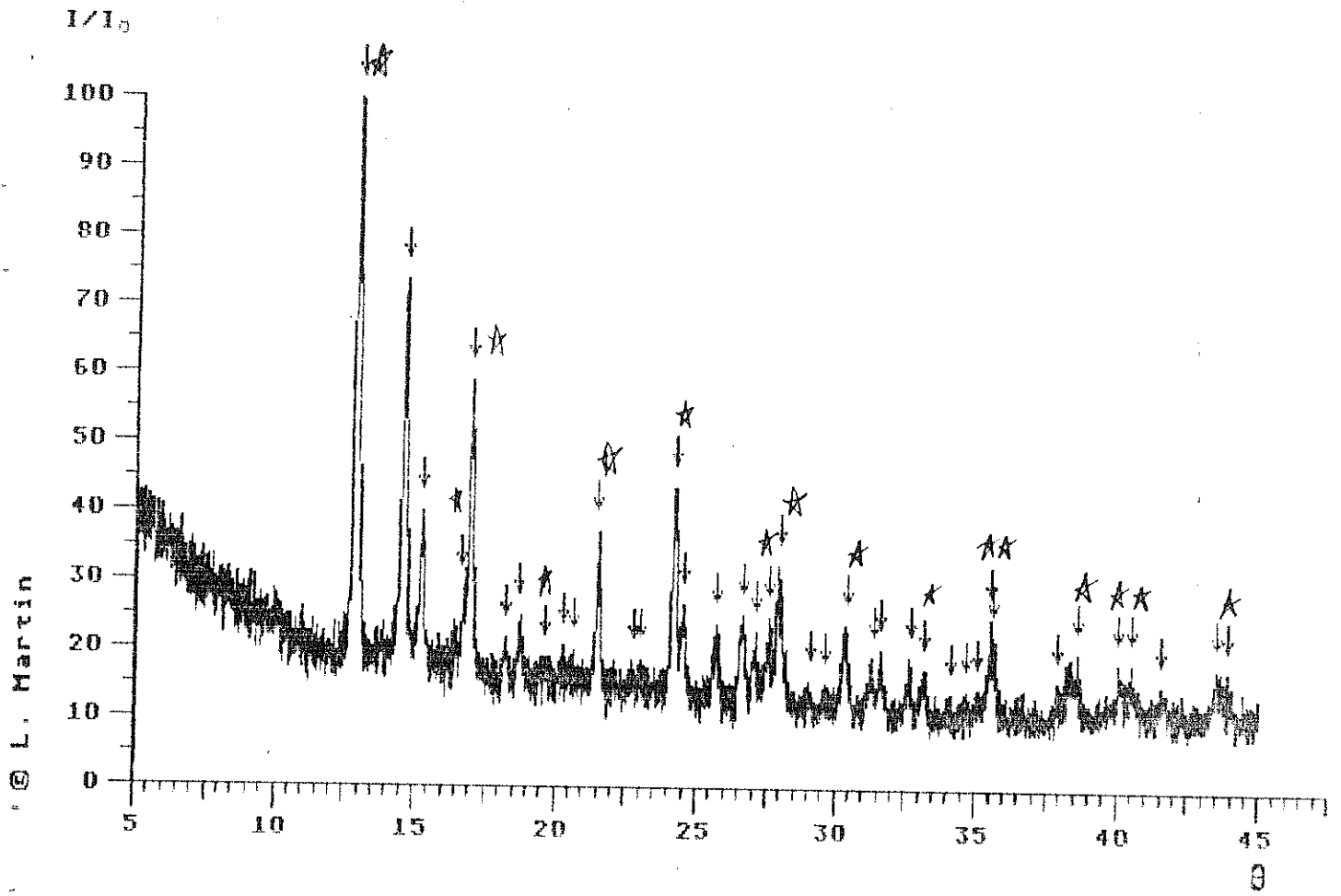
Nr.	Σ Imp	rel. int.	θ	2θ	d [Å]
1	5460	44.0	9.9444	19.8889	4.4605
2	12414	100.0	12.8333	25.6667	3.4680
3	688	5.5	13.6000	27.2000	3.2759
4	11395	91.8	14.5778	29.1556	3.0605
5	3704	29.8	15.2778	30.5556	2.9234
6	1227	9.9	16.5778	33.1556	2.6998
7	6471	52.1	16.9444	33.8889	2.6430
8	2025	16.3	18.1556	36.3111	2.4721
9	1121	9.0	18.6778	37.3556	2.4053
10	456	3.7	19.4667	38.9333	2.3114
11	438	3.5	19.7778	39.5556	2.2765
12	1324	10.7	20.2000	40.4000	2.2308
13	476	3.8	20.7000	41.4000	2.1792
14	427	3.4	20.9222	41.8444	2.1571
15	2328	18.8	21.4778	42.9556	2.1038
16	446	3.6	22.7444	45.4889	1.9924
17	686	5.5	23.1444	46.2889	1.9598
18	621	5.0	23.7667	47.5333	1.9114
19	3863	31.1	24.2149	48.4298	1.8780
20	2580	20.8	24.5556	49.1111	1.8536
21	514	4.1	25.3778	50.7556	1.7973
22	1783	14.4	25.6444	51.2889	1.7799
23	2528	20.4	26.6020	53.2041	1.7202
24	484	3.9	27.0440	54.0879	1.6942
25	746	6.0	27.6000	55.2000	1.6627
26	2792	22.5	27.8889	55.7778	1.6468
27	491	4.0	29.0000	58.0000	1.5889
28	584	4.7	29.7333	59.4667	1.5531
29	1581	12.7	30.4000	60.8000	1.5222
30	1025	8.3	31.2556	62.5111	1.4846
31	1488	12.0	31.6556	63.3111	1.4678
32	514	4.1	32.5810	65.1621	1.4305
33	420	3.4	32.7000	65.4000	1.4258
34	426	3.4	33.2000	66.4000	1.4068
35	896	7.2	34.1889	68.3778	1.3708
36	1415	11.4	35.5508	71.1015	1.3249

Şekil-E1.6: $x=0.25$ bileşimli irceğin 49 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



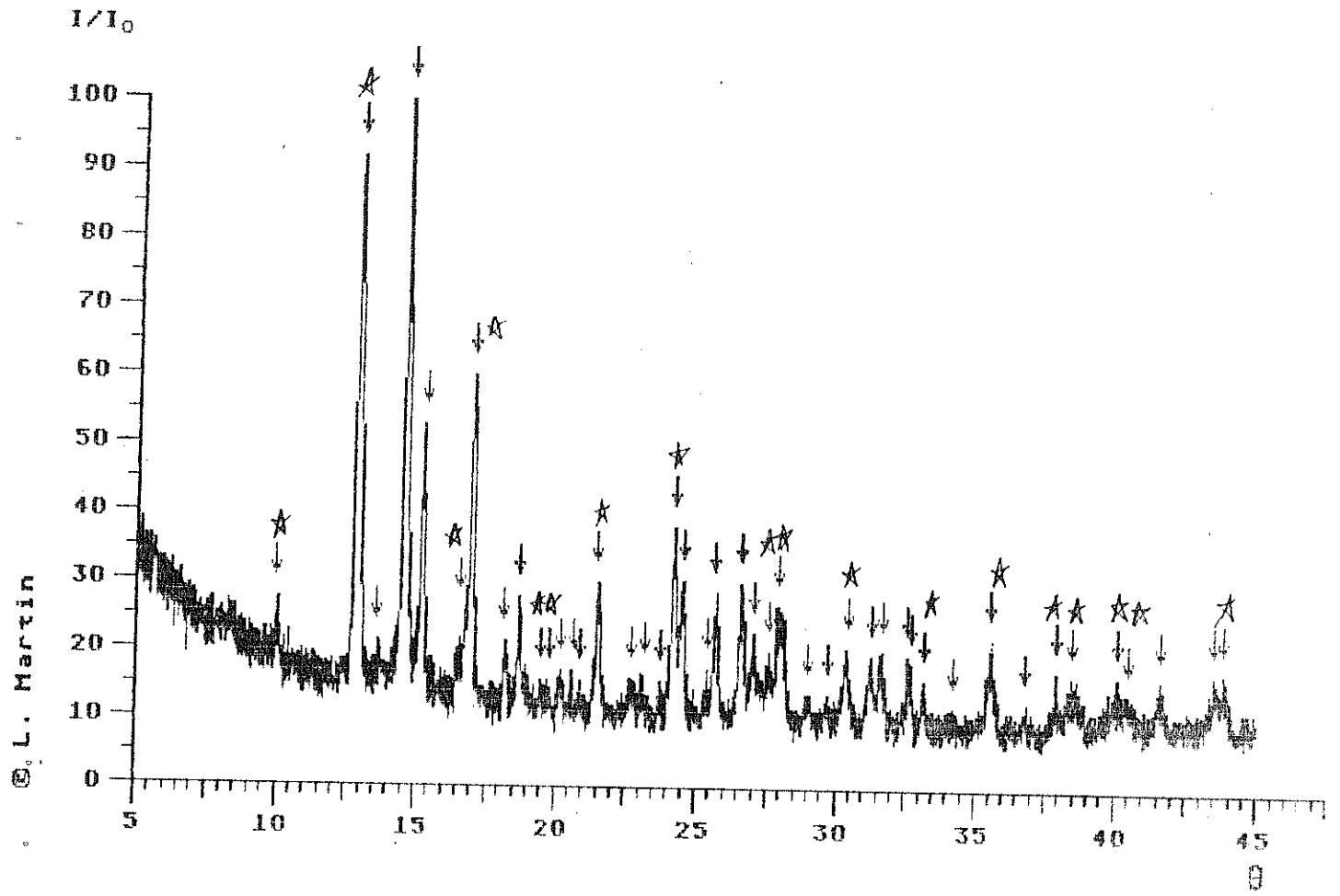
Nr.	Σ Imp	rel. Int.	θ	2θ	d [Å]
1	7458	100.0	12.8111	25.6222	3.4737
2	222	3.0	13.6778	27.3556	3.2576
3	3619	48.5	14.5889	29.1778	3.0582
4	2665	35.7	15.3556	30.7111	2.9089
5	574	7.7	16.7111	33.4222	2.6789
6	3374	45.2	17.0000	34.0000	2.6347
7	667	8.9	17.5778	35.1556	2.5507
8	769	10.3	18.1667	36.3333	2.4706
9	922	12.4	18.6222	37.2444	2.4123
10	2148	28.8	21.4889	42.9778	2.1028
11	1000	13.4	22.7111	45.4222	1.9952
12	2643	35.4	24.1444	48.2889	1.8832
13	709	9.5	24.4889	48.9778	1.8583
14	429	5.8	25.6444	51.2889	1.7797
15	275	3.7	26.5889	53.1778	1.7210
16	272	3.6	27.0111	54.0222	1.6961
17	1475	19.8	27.4000	54.8000	1.6738
18	1128	15.1	27.9667	55.9333	1.6426
19	1358	18.2	30.3444	60.6889	1.5248
20	538	7.2	31.1667	62.3333	1.4884
21	136	1.8	31.5889	63.1778	1.4705
22	581	7.8	32.5778	65.1556	1.4306
23	750	10.1	33.1556	66.3111	1.4084
24	223	3.0	34.0111	68.0222	1.3771
25	612	8.2	34.8444	69.6889	1.3482
26	1520	20.4	35.5333	71.0667	1.3254
27	1201	16.1	36.6444	73.2889	1.2906
28	280	3.8	37.9333	75.8667	1.2530
29	505	6.8	38.2333	76.4667	1.2447
30	569	7.6	38.5444	77.0889	1.2362
31	498	6.7	40.0222	80.0444	1.1978
32	942	12.6	40.4667	80.9333	1.1869
33	628	8.4	41.7333	83.4667	1.1572
34	1531	20.5	43.6444	87.2889	1.1161

Sekil-E1.9: $x=0.272$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



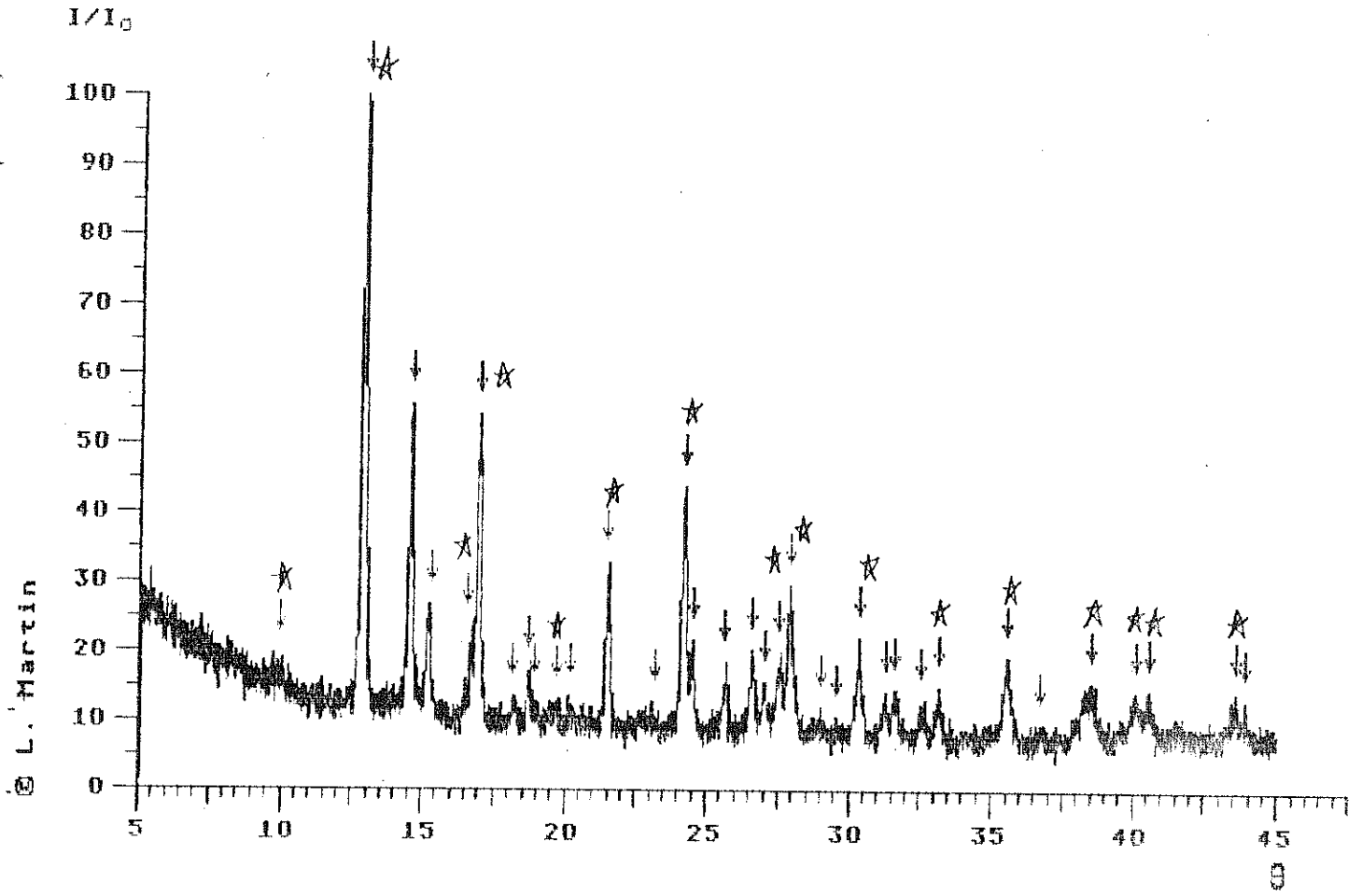
Nr.	E Imp	rel.Int.	θ	2θ	d [Å]
1	10332	100.0	12.8359	25.6717	3.4673
2	5850	56.6	14.5690	29.1380	3.0623
3	1672	16.2	15.2556	30.5111	2.9275
4	2029	19.6	16.6556	33.3111	2.6876
5	3657	35.4	16.9633	33.9266	2.6402
6	494	4.8	18.2000	36.4000	2.4663
7	732	7.1	18.7305	37.4611	2.3988
8	1329	12.9	19.6333	39.2667	2.2926
9	1117	10.8	20.2556	40.5111	2.2250
10	1070	10.4	20.6556	41.3111	2.1837
11	2110	20.4	21.4444	42.8889	2.1070
12	1037	10.0	22.7778	45.5556	1.9896
13	556	5.4	23.0111	46.0222	1.9705
14	3923	38.0	24.2222	48.4444	1.8775
15	1411	13.7	24.5000	49.0000	1.8575
16	806	7.8	25.6667	51.3333	1.7784
17	1730	16.7	26.6222	53.2444	1.7190
18	865	8.4	27.1000	54.2000	1.6909
19	650	6.3	27.6000	55.2000	1.6627
20	1745	16.9	27.9444	55.8889	1.6438
21	877	8.5	29.0889	58.1778	1.5844
22	1245	12.1	29.6556	59.3111	1.5568
23	1688	16.3	30.4000	60.8000	1.5222
24	505	4.9	31.3444	62.6889	1.4808
25	306	3.0	31.6000	63.2000	1.4701
26	719	7.0	32.6778	65.3556	1.4267
27	1609	15.6	33.2111	66.4222	1.4064
28	936	9.1	34.0889	68.1778	1.3744
29	1145	11.1	34.6778	69.3556	1.3539
30	553	5.4	35.0889	70.1778	1.3400
31	736	7.1	35.5123	71.0245	1.3261
32	777	7.5	35.6000	71.2000	1.3233
33	1326	12.8	37.9222	75.8444	1.2534
34	1897	18.4	38.6000	77.2000	1.2347
35	994	9.6	40.0444	80.0889	1.1973

Şekil-E1.10: $x=0.28$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



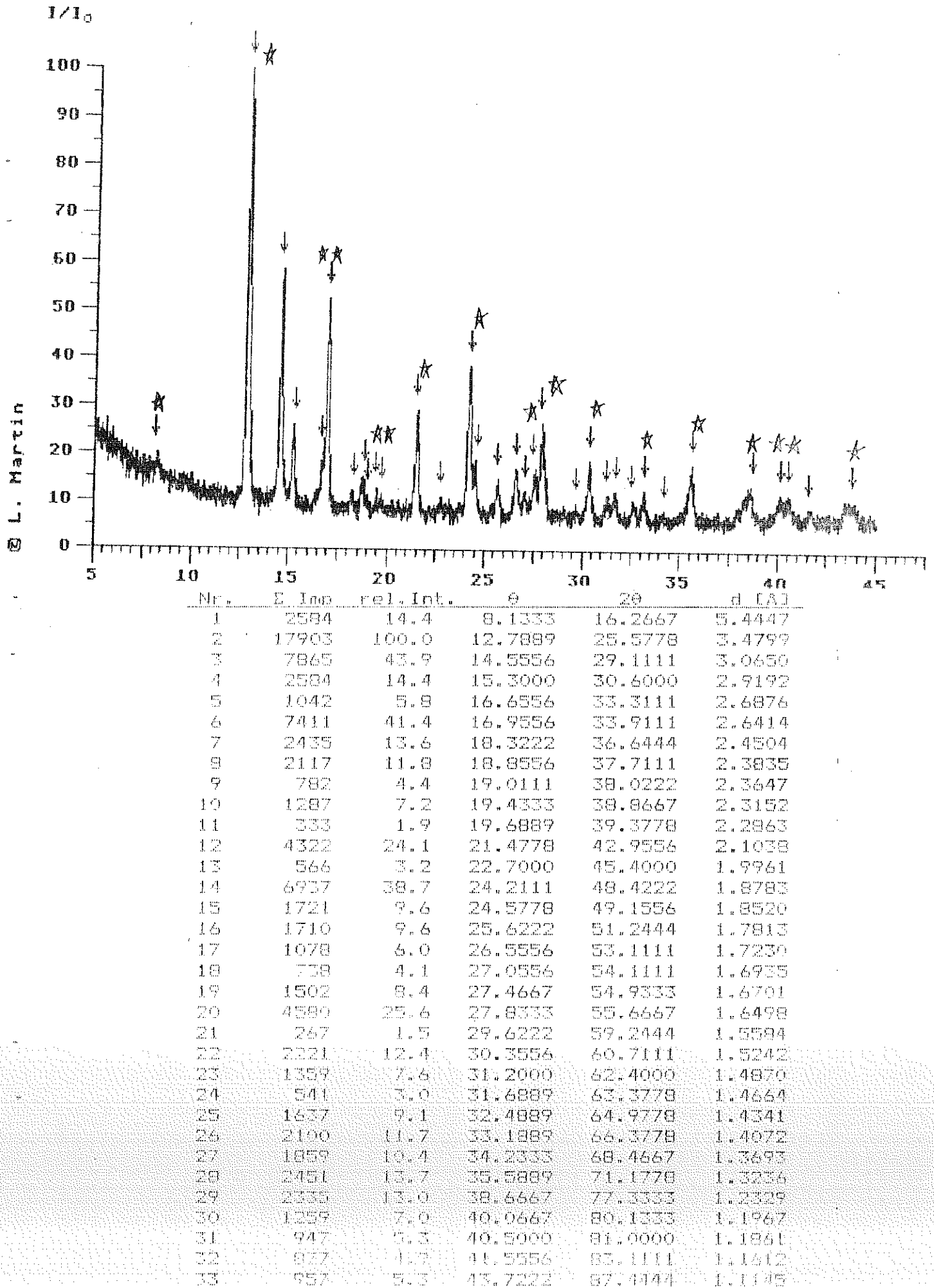
Nr.	E Imp	rel.Int.	θ	2θ	d [Å]
1	5460	44.0	9.9444	19.8889	4.4605
2	12414	100.0	12.8333	25.6667	3.4680
3	688	5.5	13.6000	27.2000	3.2759
4	11395	91.8	14.5778	29.1556	3.0605
5	3704	29.8	15.2778	30.5556	2.9234
6	1227	9.9	16.5778	33.1556	2.6998
7	6471	52.1	16.9444	33.8889	2.6430
8	2025	16.3	18.1556	36.3111	2.4721
9	1121	9.0	19.6778	37.3556	2.4053
10	456	3.7	19.4667	38.9333	2.3114
11	438	3.5	19.7778	39.5556	2.2765
12	1324	10.7	20.2000	40.4000	2.2308
13	476	3.8	20.7000	41.4000	2.1792
14	427	3.4	20.9222	41.8444	2.1571
15	2328	18.8	21.4778	42.9556	2.1038
16	446	3.6	22.7444	45.4889	1.9924
17	686	5.5	23.1444	46.2889	1.9598
18	621	5.0	23.7667	47.5333	1.9114
19	3863	31.1	24.2149	48.4298	1.8780
20	2380	20.8	24.5556	49.1111	1.8536
21	514	4.1	25.3778	50.7556	1.7973
22	1783	14.4	25.6444	51.2889	1.7799
23	2528	20.4	26.6020	53.2041	1.7202
24	484	3.9	27.0440	54.0879	1.6942
25	746	6.0	27.6000	55.2000	1.6627
26	2792	22.5	27.8889	55.7778	1.6468
27	491	4.0	29.0000	58.0000	1.5899
28	584	4.7	29.7333	59.4667	1.5531
29	1581	12.7	30.4000	60.8000	1.5222
30	1025	8.3	31.2556	62.5111	1.4846
31	1488	12.0	31.6556	63.3111	1.4678
32	514	4.1	32.5810	65.1621	1.4305
33	420	3.4	32.7000	65.4000	1.4258
34	426	3.4	33.2000	66.4000	1.4068
35	896	7.2	34.1889	68.3778	1.3708
36	1415	11.4	35.5508	71.1015	1.3249

Sekil-E1.11: $x=0.3$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri

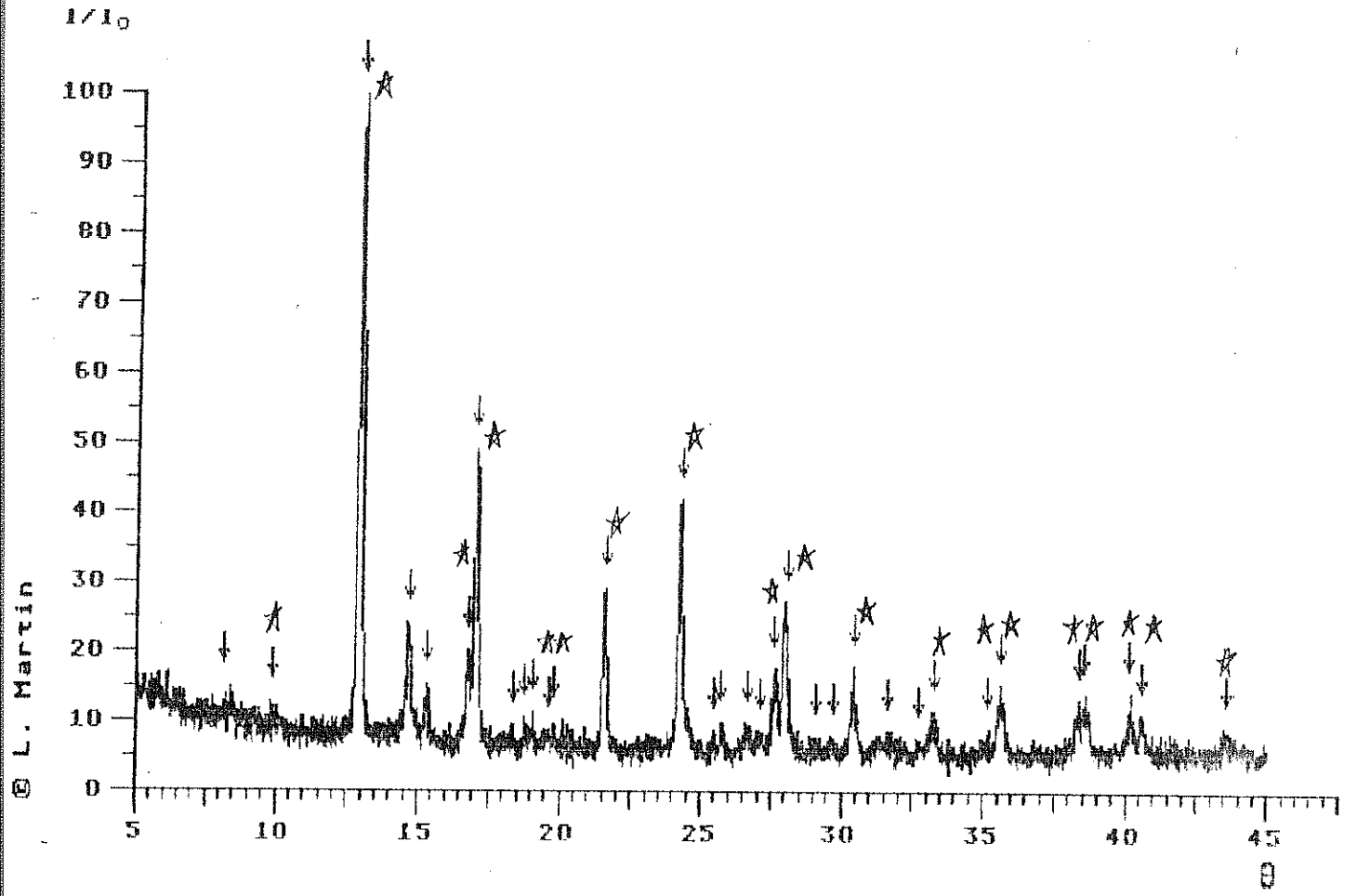


Nr.	λ [mp]	rel. int.	θ	2θ	d [Å]
1	2807	18.8	9.9667	19.9333	4.4507
2	14930	100.0	12.8556	25.7111	3.4621
3	6027	40.4	14.6000	29.2000	3.0559
4	2041	13.7	15.3000	30.6000	2.9192
5	832	5.6	16.5667	33.1333	2.7016
6	7044	47.2	16.9333	33.8667	2.6447
7	876	5.9	18.1778	36.3556	2.4692
8	423	2.8	18.6667	37.3333	2.4067
9	982	6.6	18.9556	37.9111	2.3714
10	1034	6.9	19.7556	39.5111	2.2789
11	1148	7.7	20.1778	40.3556	2.2332
12	3469	23.2	21.4862	42.9724	2.1031
13	1863	12.5	23.1778	46.3556	1.9571
14	5841	39.1	24.2000	48.4000	1.8791
15	1329	8.9	24.5444	49.0889	1.8544
16	989	6.6	25.6556	51.3111	1.7791
17	2948	19.7	26.5889	53.1778	1.7210
18	862	5.8	27.0556	54.1111	1.6935
19	2226	14.9	27.5444	55.0889	1.6657
20	3651	24.5	27.9202	55.8404	1.6451
21	714	4.8	28.9889	57.9778	1.5894
22	904	6.1	29.5444	59.0889	1.5622
23	1898	12.7	30.3556	60.7111	1.5242
24	721	4.8	31.2761	62.5521	1.4837
25	1842	12.3	31.6000	63.2000	1.4701
26	1411	9.5	32.5778	65.1556	1.4306
27	1447	9.7	33.1778	66.3556	1.4076
28	2745	18.4	35.5222	71.0444	1.3258
29	859	3.8	36.7444	73.4889	1.2876
30	4751	33.2	38.5444	77.0889	1.2362
31	1012	6.8	40.0889	80.1778	1.1962
32	1577	10.6	40.5556	81.1111	1.1847
33	1166	7.8	43.5444	87.0889	1.1181
34	827	5.5	43.8778	87.7556	1.1113

Şekil-E1.12: $x=0.307$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri

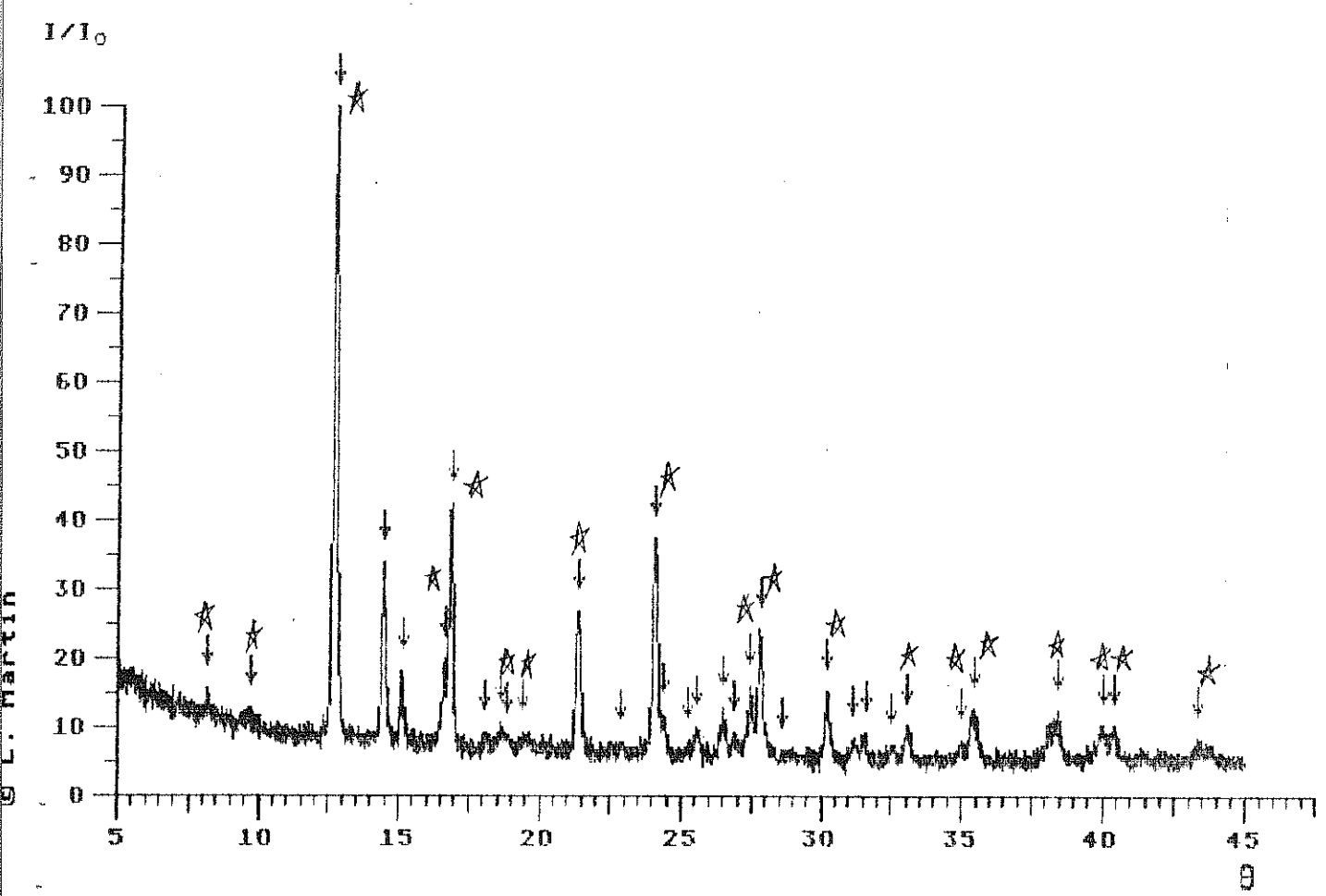


Şekil-E1.13: $x=0.33$ bileşimli örneğin 48 saat ve 790 °C için toz deseni ve verileri



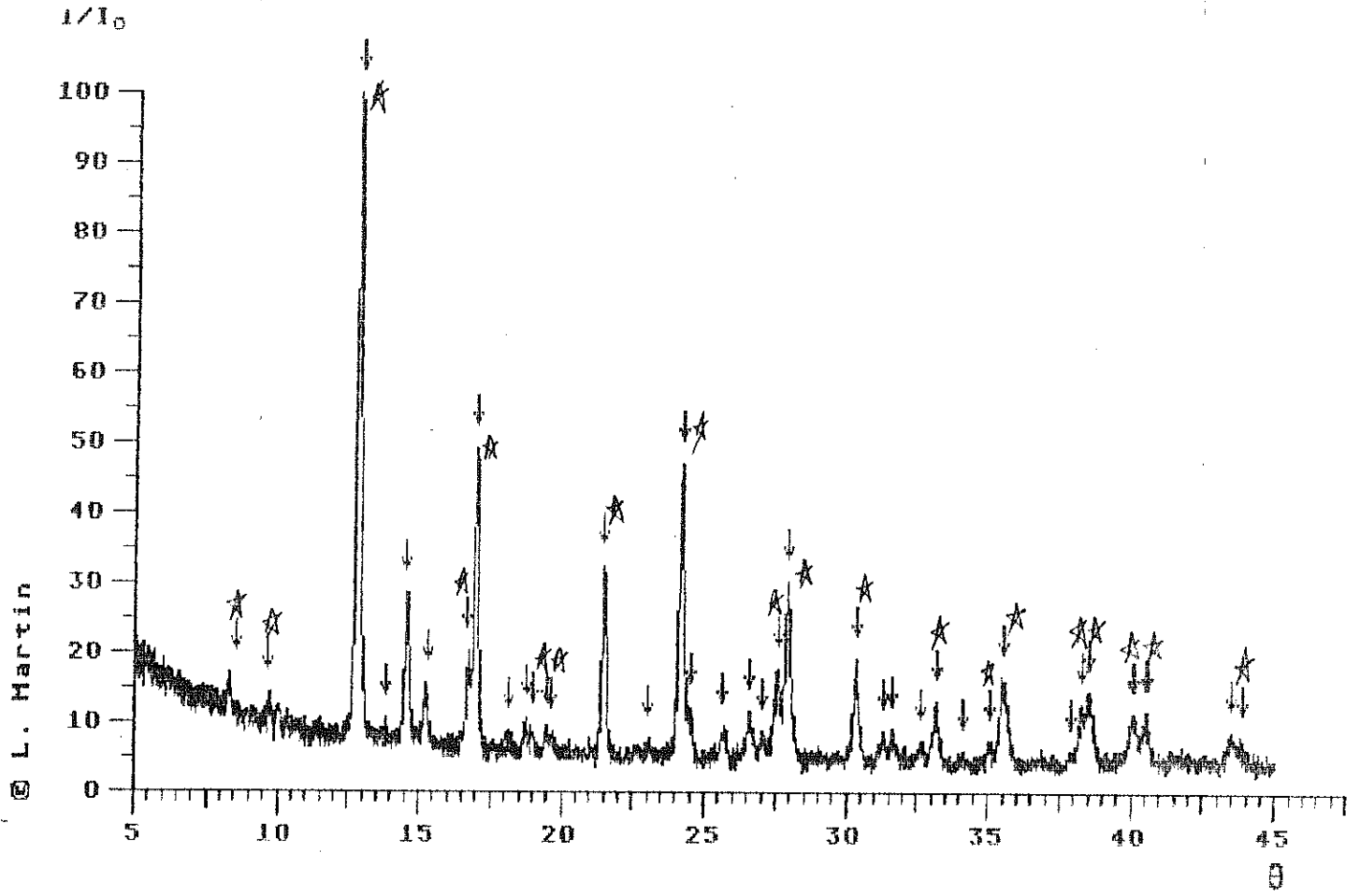
Nr.	E Imp	rel.Int.	θ	2θ	d [Å]
1	1838	15.7	8.1778	16.3556	5.4153
2	1653	14.1	9.9111	19.8222	4.4754
3	11679	100.0	12.9000	25.8000	3.4504
4	2098	18.0	14.6889	29.3778	3.0378
5	671	5.7	15.2778	30.5556	2.9234
6	1182	10.1	16.8111	33.6222	2.6634
7	4827	41.3	17.0667	34.1333	2.6247
8	986	8.4	18.3556	36.7111	2.4461
9	489	4.2	18.7667	37.5333	2.3944
10	608	5.2	19.1000	38.2000	2.3541
11	301	2.6	19.6000	39.2000	2.2963
12	218	1.9	19.7889	39.5778	2.2753
13	2598	22.2	21.6111	43.2222	2.0915
14	5026	43.0	24.3000	48.6000	1.8719
15	793	6.8	25.5000	51.0000	1.7893
16	472	4.0	25.7222	51.4444	1.7748
17	628	5.4	26.6333	53.2667	1.7183
18	618	5.3	27.1222	54.2444	1.6897
19	1250	10.7	27.5778	55.1556	1.6639
20	2893	24.8	28.0222	56.0444	1.6396
21	612	5.2	29.1111	58.2222	1.5833
22	681	5.8	29.7000	59.4000	1.5547
23	1441	12.3	30.4333	60.8667	1.5207
24	1857	15.9	31.5778	63.1556	1.4710
25	545	4.7	32.6778	65.3556	1.4267
26	1238	10.6	33.2222	66.4444	1.4059
27	671	5.7	35.1556	70.3111	1.3378
28	1630	14.0	35.6444	71.2889	1.3218
29	659	5.6	38.3511	76.7022	1.2415
30	1397	11.9	38.5667	77.1333	1.2356
31	773	6.6	40.1222	80.2444	1.1953
32	1571	13.4	40.5444	81.0889	1.1850
33	1567	13.4	43.5667	87.1333	1.1177

Şekil-E1.14: $x=0.357$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



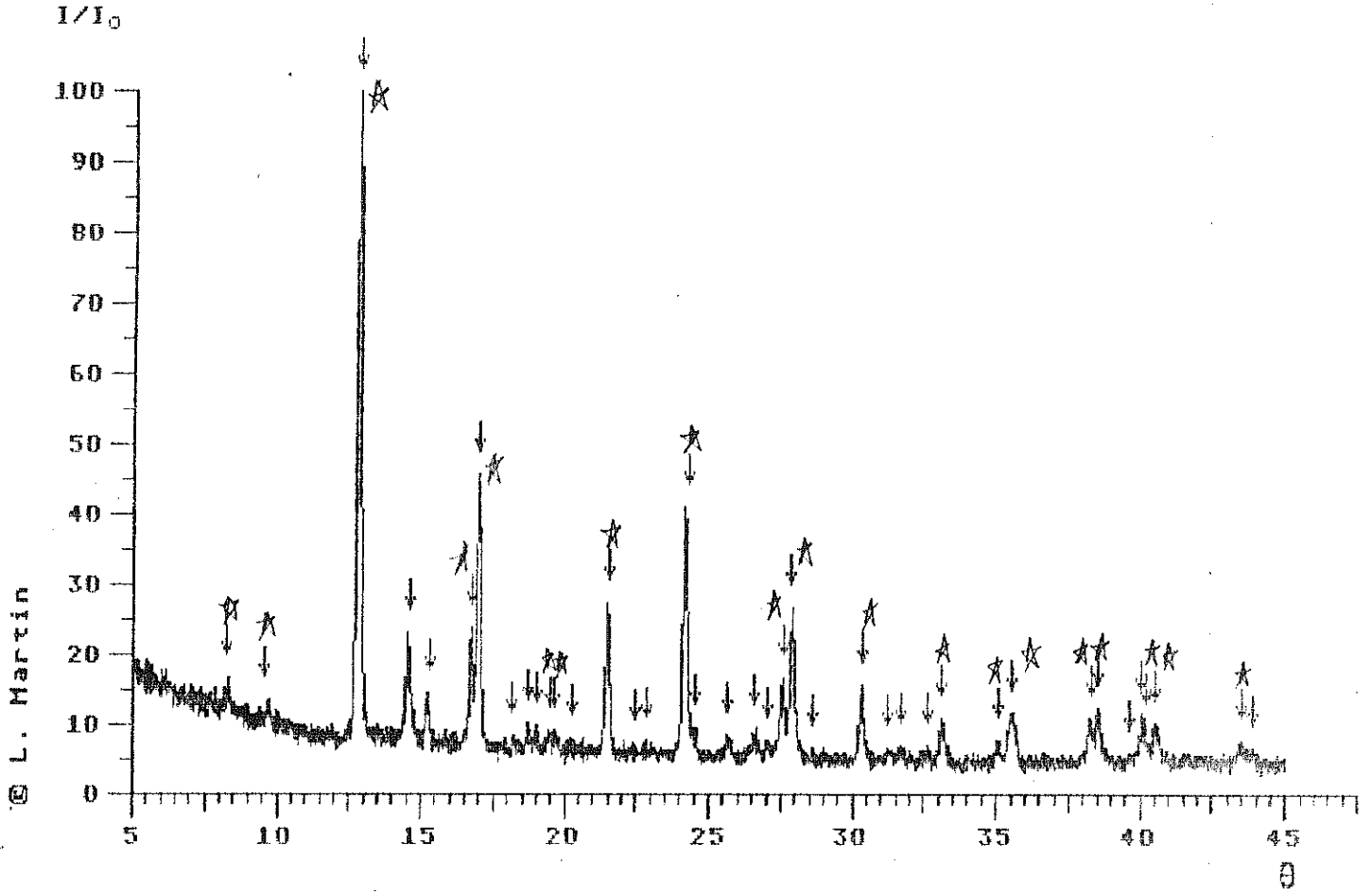
Nr.	E Imp	rel.Int.	θ	2θ	d [Å]
1	2159	9.0	8.1222	16.2444	5.4521
2	3364	14.0	9.6889	19.3778	4.5770
3	24094	100.0	12.7097	25.4193	3.5012
4	5846	24.3	14.4511	28.9021	3.0867
5	1861	7.7	15.1255	30.2510	2.9521
6	2757	11.4	16.6173	33.2346	2.6936
7	9337	38.8	16.8559	33.7118	2.6565
8	1502	6.2	18.0667	36.1333	2.4839
9	679	2.8	18.6333	37.2667	2.4109
10	710	2.9	18.8889	37.7778	2.3794
11	3033	12.6	19.3667	38.7333	2.3229
12	5144	21.4	21.3718	42.7436	2.1138
13	1741	7.2	22.8989	45.7778	1.9805
14	9348	38.8	24.0488	48.0977	1.8902
15	1019	4.2	24.3887	48.7774	1.8655
16	405	1.7	25.2111	50.4222	1.8084
17	519	2.2	25.5475	51.0950	1.7862
18	937	3.9	26.5248	53.0497	1.7249
19	236	1.0	26.8994	53.7989	1.7026
20	2268	9.4	27.4434	54.8869	1.6714
21	5628	23.4	27.7974	55.5949	1.6518
22	156	0.6	28.5889	57.1778	1.6097
23	3002	12.5	30.1667	60.3333	1.5329
24	371	1.5	31.1667	62.3333	1.4884
25	740	3.1	31.5778	63.1556	1.4710
26	502	2.1	32.4778	64.9556	1.4345
27	2613	10.8	33.0333	66.0667	1.4131
28	209	0.9	34.9667	69.9333	1.3441
29	3410	14.2	35.4444	70.8889	1.3293
30	3675	15.3	38.4111	76.8222	1.2396
31	1167	4.8	39.9959	79.9919	1.1985
32	1449	6.0	40.3778	80.7556	1.1891
33	1612	6.7	43.3556	86.7111	1.1220

Şekil-E1.15: $x=0.363$ bileşimli Sineğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



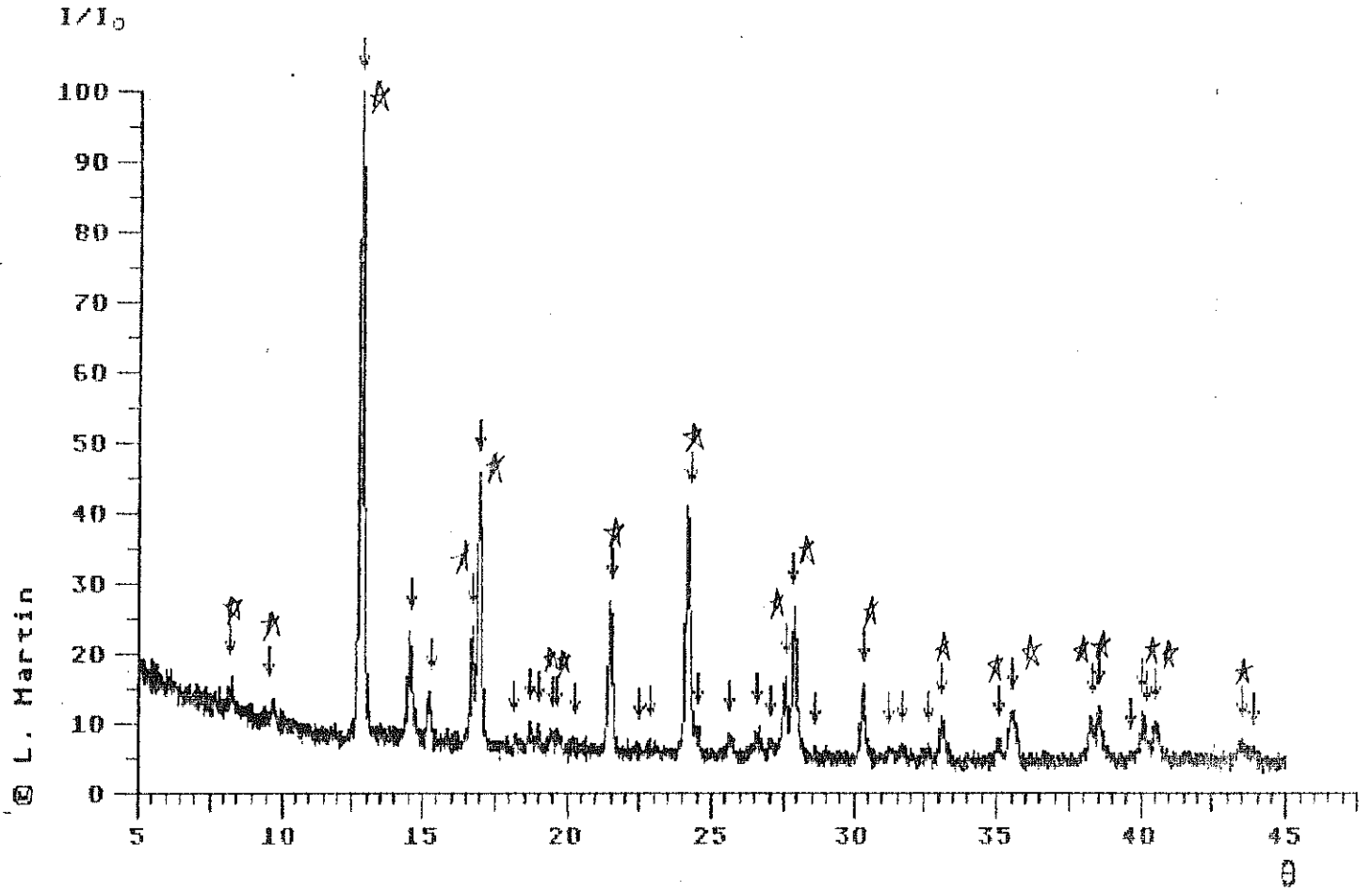
Nr.	Σ Imp	rel. Int.	θ	2θ	d [Å]
1	1626	8.1	8.5778	17.1556	5.1645
2	2342	11.6	9.6556	19.3111	4.5926
3	20190	100.0	12.8444	25.6889	3.4651
4	294	1.5	13.7889	27.5778	3.2319
5	4305	21.3	14.5597	29.1194	3.0642
6	1444	7.2	15.2778	30.5556	2.9234
7	2321	11.5	16.6778	33.3556	2.6841
8	9176	45.4	16.9889	33.9778	2.6363
9	893	4.4	18.1667	36.3333	2.4706
10	896	4.4	18.7556	37.5111	2.3957
11	341	1.7	19.0111	38.0222	2.3647
12	396	2.0	19.4556	38.9111	2.3127
13	403	2.0	19.6778	39.3556	2.2876
14	5386	26.7	21.4667	42.9333	2.1049
15	374	1.9	23.0556	46.1111	1.9669
16	8478	42.0	24.1788	48.3576	1.8807
17	392	1.9	24.4889	48.9778	1.8593
18	866	4.3	25.6444	51.2889	1.7799
19	1372	6.8	26.5973	53.1945	1.7205
20	793	3.9	27.0444	54.0889	1.6942
21	2700	13.4	27.5564	55.1129	1.6651
22	6325	31.3	27.9062	55.8123	1.6459
23	3370	16.7	30.3333	60.6667	1.5253
24	743	3.7	31.3111	62.6222	1.4822
25	1249	6.2	31.5778	63.1556	1.4710
26	441	2.2	32.6524	65.3048	1.4277
27	1985	9.8	33.1408	66.2815	1.4090
28	1045	5.2	34.0889	68.1778	1.3744
29	259	1.3	35.0270	70.0539	1.3421
30	4884	24.2	35.5222	71.0444	1.3258
31	504	2.5	37.8778	75.7556	1.2546
32	787	3.9	38.2889	76.5778	1.2432
33	1613	8.0	38.5556	77.1111	1.2359
34	665	3.3	40.0402	80.0804	1.1974
35	416	2.1	40.1240	80.2481	1.1953
36	495	2.4	40.4846	80.9693	1.1865
37	608	3.0	40.5866	81.1732	1.1840

Şekil-E1.16: $x=0.375$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



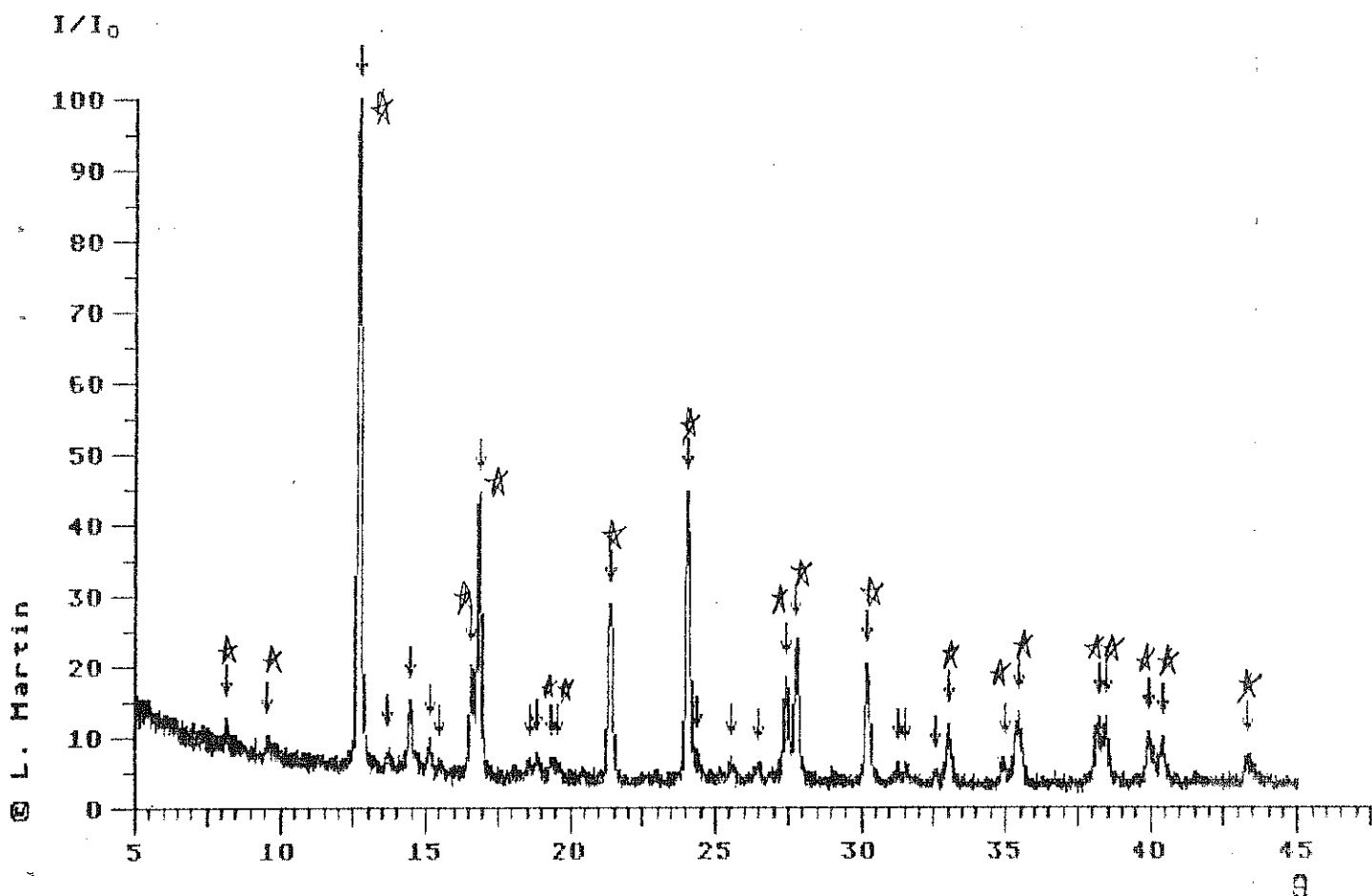
Nr.	E Imp	rel. Int.	θ	2 θ	d [Å]
1	2843	11.4	8.1889	16.3778	5.4080
2	3332	13.4	9.5667	19.1333	4.6349
3	24923	100.0	12.7778	25.5556	3.4828
4	6361	25.5	14.6333	29.2667	3.0491
5	1306	5.2	15.2889	30.5778	2.9213
6	4150	16.7	16.7000	33.4000	2.6806
7	9509	38.2	16.9641	33.9283	2.6401
8	892	3.6	18.1556	36.3111	2.4721
9	1742	7.0	18.6667	37.3333	2.4067
10	1858	7.5	19.0111	38.0222	2.3647
11	1222	4.9	19.4778	38.9556	2.3102
12	1392	5.6	19.6222	39.2444	2.2938
13	2058	8.3	20.2333	40.4667	2.2273
14	5431	21.8	21.5222	43.0444	2.0997
15	353	1.4	22.4333	44.8667	2.0186
16	1099	4.4	22.8889	45.7778	1.9805
17	10952	43.9	24.2444	48.4889	1.8759
18	755	3.0	24.5090	49.0179	1.8569
19	1407	5.6	25.6111	51.2222	1.7820
20	2560	10.3	26.3556	53.1111	1.7230
21	1214	4.9	27.0667	54.1333	1.6929
22	2960	11.9	27.5667	55.1333	1.6645
23	6039	24.2	27.8444	55.6889	1.6492
24	1097	4.4	28.6000	57.2000	1.6092
25	2461	9.9	30.3333	60.6667	1.5253
26	835	3.3	31.2111	62.4222	1.4865
27	1512	6.1	31.7000	63.4000	1.4659
28	543	2.2	32.6111	65.2222	1.4293
29	1755	7.0	33.1163	66.2326	1.4099
30	1344	5.4	35.0556	70.1111	1.3411
31	2851	11.4	35.5202	71.0403	1.3258
32	1593	6.4	38.2637	76.5273	1.2439
33	1942	7.8	38.5609	77.1218	1.2358
34	231	0.9	39.6222	79.2444	1.2079
35	1407	5.6	40.0222	80.0444	1.1978

Şekil-E1.16: $x=0.373$ bileşimli örneğin 49 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



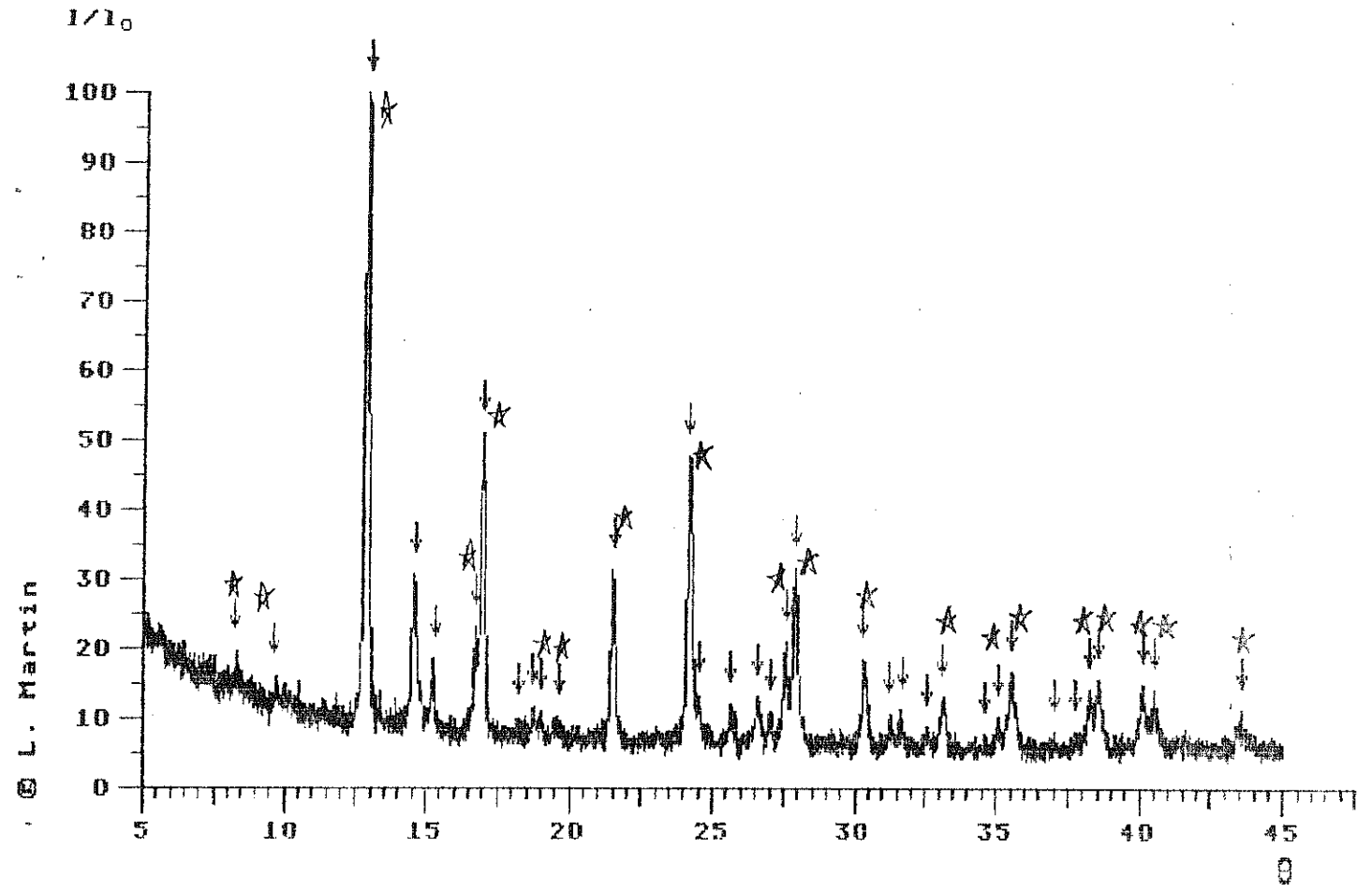
Nr.	E Imp	rel.Int.	9	20	d [Å]
1	2843	11.4	8.1889	16.3778	5.4080
2	3332	13.4	9.5667	19.1333	4.6349
3	24923	100.0	12.7778	25.5556	3.4828
4	6361	25.5	14.6333	29.2667	3.0491
5	1306	5.2	15.2889	30.5778	2.9213
6	4150	16.7	16.7000	33.4000	2.6806
7	9509	38.2	16.9641	33.9283	2.6401
8	892	3.6	18.1556	36.3111	2.4721
9	1742	7.0	18.6667	37.3333	2.4067
10	1858	7.5	19.0111	38.0222	2.3647
11	1222	4.9	19.4778	38.9556	2.3102
12	1392	5.6	19.6222	39.2444	2.2938
13	2058	8.3	20.2333	40.4667	2.2273
14	5431	21.8	21.5222	43.0444	2.0997
15	353	1.4	22.4333	44.8667	2.0186
16	1099	4.4	22.8889	45.7778	1.9805
17	10952	43.9	24.2444	48.4889	1.8759
18	755	3.0	24.5090	49.0179	1.8569
19	1407	5.6	25.6111	51.2222	1.7820
20	2560	10.3	26.5556	53.1111	1.7230
21	1214	4.9	27.0667	54.1333	1.6929
22	2960	11.9	27.5667	55.1333	1.6645
23	6039	24.2	27.8444	55.6889	1.6492
24	1097	4.4	28.6000	57.2000	1.6092
25	2461	9.9	30.3333	60.6667	1.5253
26	835	3.3	31.2111	62.4222	1.4865
27	1512	6.1	31.7000	63.4000	1.4659
28	543	2.2	32.6111	65.2222	1.4293
29	1755	7.0	33.1163	66.2326	1.4099
30	1344	5.4	35.0556	70.1111	1.3411
31	2851	11.4	35.5202	71.0403	1.3258
32	1593	6.4	38.2637	76.5273	1.2439
33	1942	7.8	38.5609	77.1218	1.2358
34	231	0.9	39.6222	79.2444	1.2079
35	1407	5.6	40.0222	80.0444	1.1978

Şekil-E1.17: $x=0.394$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



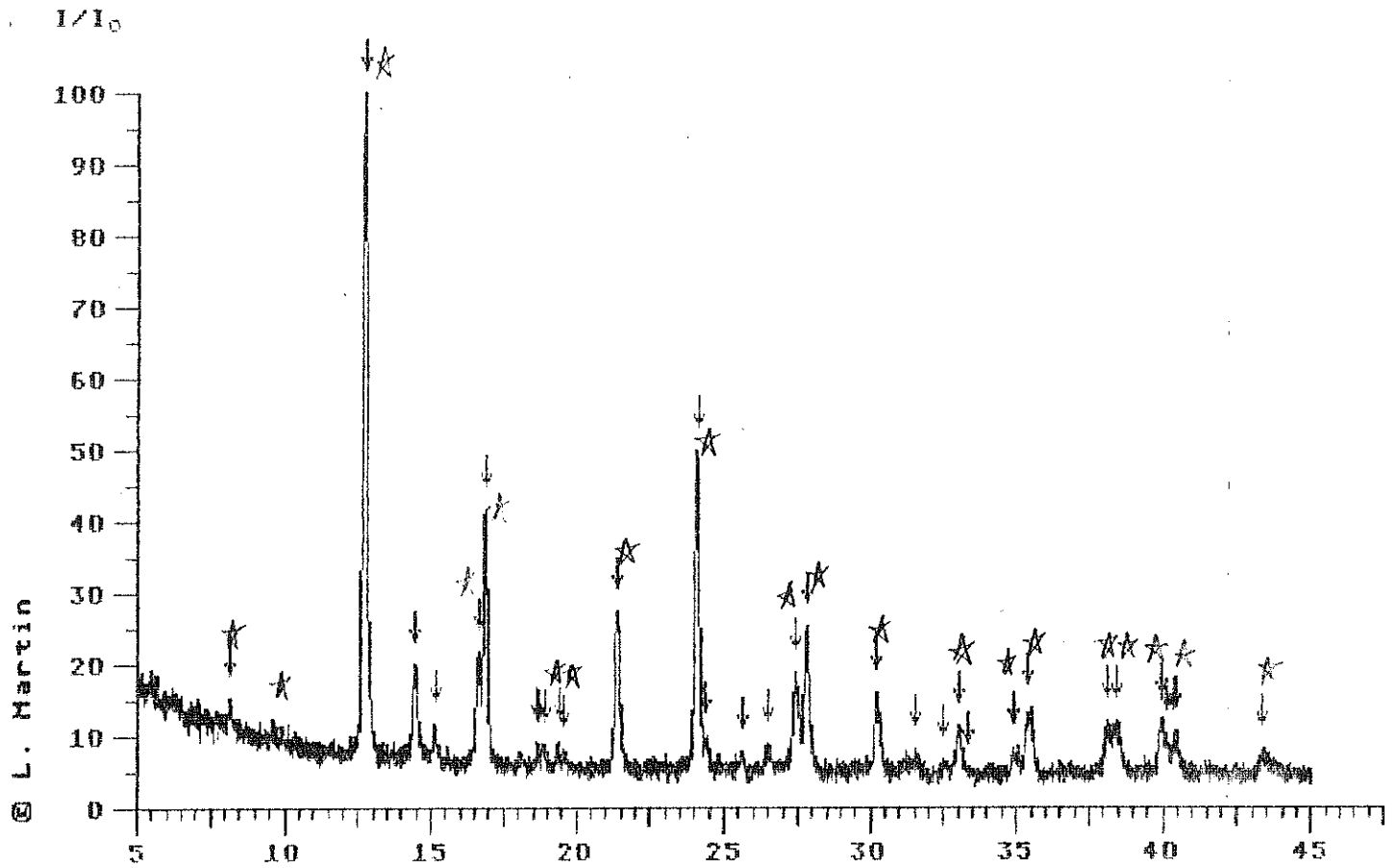
Nr.	Σ Imp	rel.Int.	θ	2θ	d [Å]
1	542	2.1	8.1778	16.3556	5.4153
2	301	1.2	9.6000	19.2000	4.6190
3	25387	100.0	12.6931	25.3863	3.5057
4	500	2.0	13.6582	27.3165	3.2622
5	2091	8.2	14.4725	28.9450	3.0822
6	779	3.1	15.1366	30.2732	2.9500
7	993	3.9	15.4889	30.9778	2.8845
8	3757	14.8	16.6057	33.2113	2.6954
9	10749	42.3	16.8694	33.7387	2.6545
10	358	1.4	18.6444	37.2889	2.4095
11	533	2.1	18.8494	37.6987	2.3842
12	1035	4.1	19.3444	38.6889	2.3255
13	1546	6.1	19.5556	39.1111	2.3013
14	6704	26.4	21.3889	42.7778	2.1122
15	11905	46.9	24.0566	48.1132	1.8977
16	479	1.9	24.3771	48.7541	1.8663
17	699	2.8	25.5668	51.1336	1.7849
18	578	2.3	26.5007	53.0015	1.7263
19	2837	11.2	27.4556	54.9111	1.6707
20	4574	18.0	27.7641	55.5281	1.6536
21	4751	18.7	30.2182	60.4363	1.5305
22	1318	5.2	31.2667	62.5333	1.4841
23	685	2.7	31.5000	63.0000	1.4743
24	763	3.0	32.5333	65.0667	1.4323
25	2239	8.8	33.0047	66.0094	1.4142
26	616	2.4	34.9519	69.9038	1.3446
27	3735	14.7	35.4678	70.9357	1.3275
28	1896	7.5	38.1778	76.3556	1.2462
29	2441	9.6	38.4222	76.8444	1.2395
30	2342	9.2	39.9333	79.8667	1.2000
31	1103	4.3	40.4000	80.8001	1.1885
32	1544	6.1	43.3333	86.6667	1.1225

Şekil-E1.18: $x=0.4$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



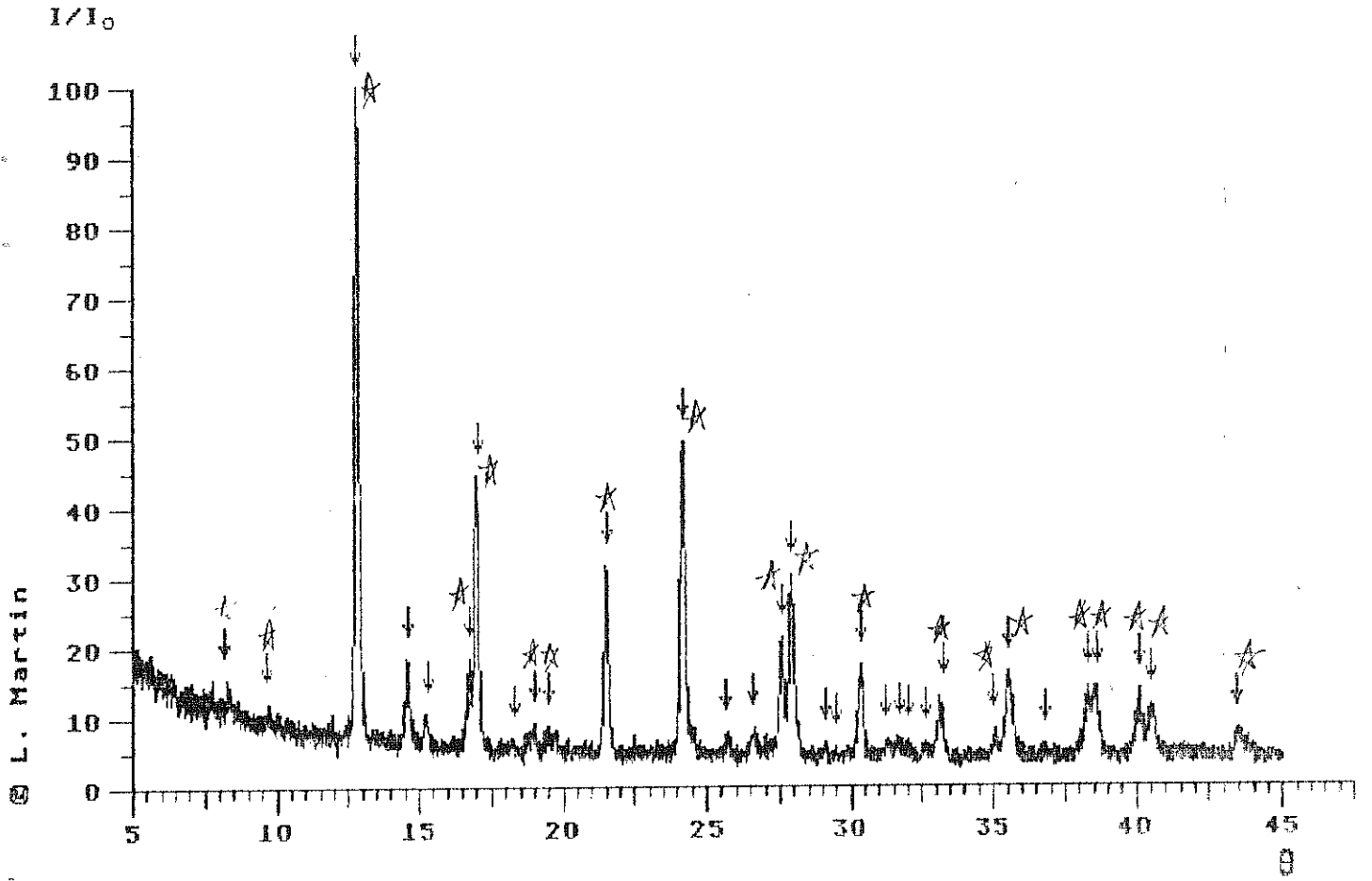
Nr.	E Imp	rel. Int.	θ	2θ	d [Å]
1	2543	14.3	8.2444	16.4889	5.3718
2	2706	15.2	9.6111	19.2222	4.6137
3	17840	100.0	12.8333	25.6667	3.4680
4	4416	24.8	14.6333	29.2667	3.0491
5	1542	8.6	15.3000	30.6000	2.9192
6	1855	10.4	16.7222	33.4444	2.6771
7	7765	43.5	16.9778	33.9556	2.6380
8	463	2.6	18.1889	36.3778	2.4677
9	659	3.7	18.7000	37.4000	2.4026
10	1067	6.0	18.9889	37.9778	2.3674
11	1124	6.3	19.6333	39.2667	2.2926
12	4435	24.9	21.5333	43.0667	2.0987
13	8507	47.7	24.1333	48.2667	1.8840
14	760	4.3	24.4849	48.9699	1.8586
15	413	2.3	25.6222	51.2444	1.7813
16	999	5.6	26.5630	53.1259	1.7226
17	1670	9.4	27.0222	54.0444	1.6954
18	2656	14.9	27.5889	55.1778	1.6633
19	5212	29.2	27.9000	55.8000	1.6462
20	3417	19.2	30.3000	60.6000	1.5268
21	406	2.3	31.2409	62.4818	1.4852
22	482	2.7	31.6889	63.3778	1.4664
23	1019	5.7	32.5667	65.1333	1.4310
24	1314	7.4	33.1111	66.2222	1.4101
25	826	4.6	34.5889	69.1778	1.3569
26	641	3.6	35.0444	70.0889	1.3415
27	2852	16.0	35.5444	71.0889	1.3251
28	1410	7.9	37.0000	74.0000	1.2800
29	898	5.0	37.7111	75.4222	1.2593
30	1363	7.6	38.2228	76.4457	1.2450
31	1775	10.0	38.5333	77.0667	1.2365
32	1692	9.5	40.0771	80.1542	1.1965
33	1068	6.0	40.4896	80.9793	1.1863
34	1736	9.7	43.6000	87.2000	1.1170

Şekil-E1.19: $x=0.416$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



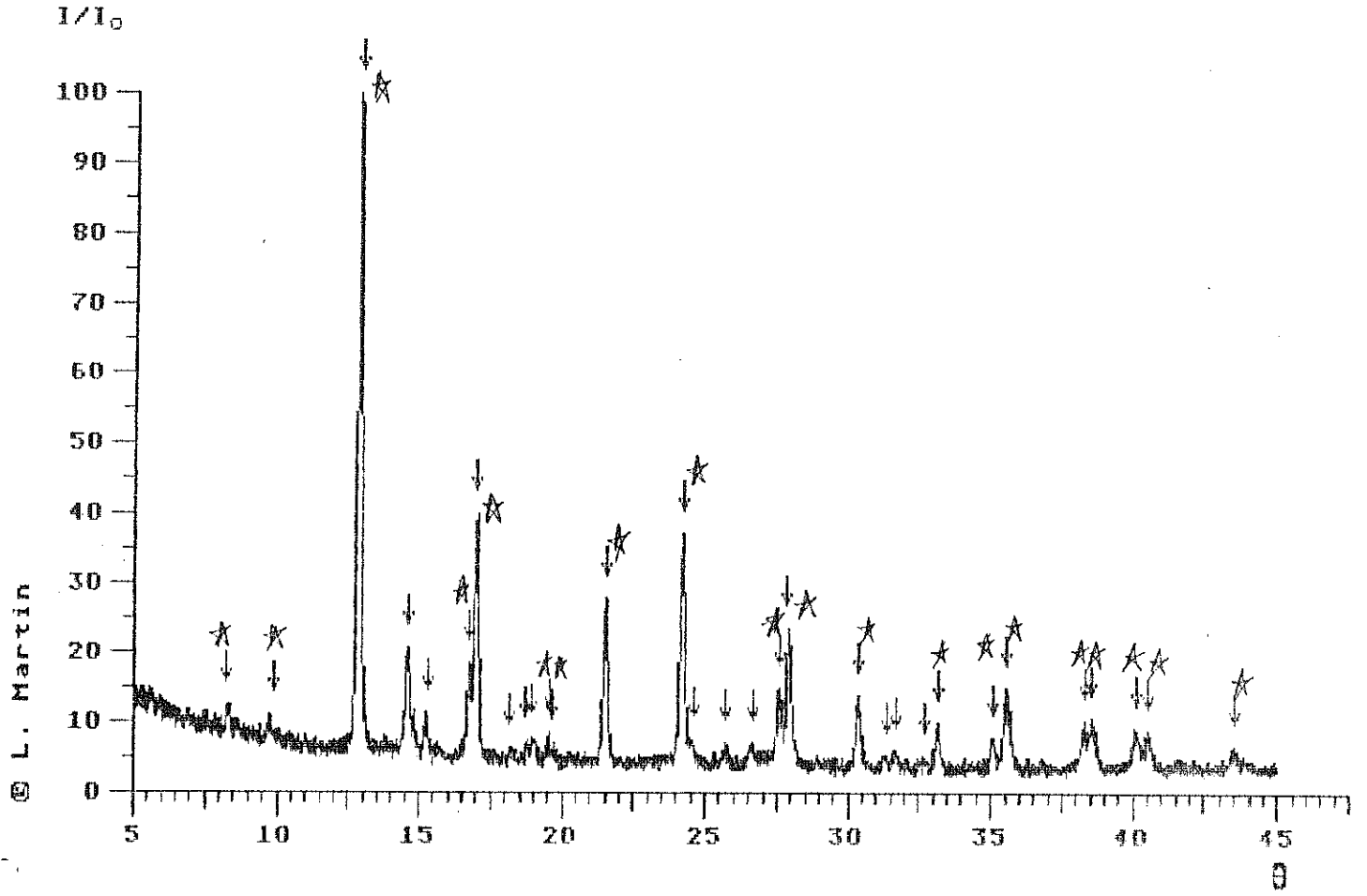
Nr.	Σ Imp	rel.int.	θ	2θ	d [Å]
1	3810	17.1	8.1556	16.3111	5.4300
2	22325	100.0	12.6945	25.3889	3.5053
3	2846	12.7	14.4566	28.9133	3.0856
4	771	3.5	15.1212	30.2423	2.9529
5	2994	13.4	16.6217	33.2435	2.6929
6	8237	36.9	16.8515	33.7031	2.6572
7	207	0.9	18.5988	37.1975	2.4152
8	209	0.9	18.6917	37.3834	2.4036
9	515	2.3	18.8943	37.7887	2.3788
10	253	1.1	19.3651	38.7301	2.3231
11	518	2.3	19.5889	39.1778	2.2976
12	5100	22.8	21.3679	42.7359	2.1141
13	11229	50.3	24.0900	48.1801	1.8872
14	807	3.6	24.3742	48.7484	1.8665
15	1442	6.5	25.6333	51.2667	1.7806
16	2134	9.6	26.5222	53.0444	1.7250
17	3654	16.4	27.4324	54.8647	1.6720
18	6198	27.8	27.7984	55.5967	1.6517
19	2817	12.6	30.2014	60.4028	1.5313
20	2618	11.7	31.5000	63.0000	1.4743
21	855	3.8	32.4889	64.9778	1.4341
22	1965	8.8	32.9896	65.9792	1.4147
23	57	0.3	33.3335	66.6670	1.4018
24	1622	7.3	34.9333	69.8667	1.3452
25	2563	11.5	35.4184	70.8368	1.3292
26	751	3.4	38.1400	76.2800	1.2473
27	2788	12.5	38.4333	76.8667	1.2392
28	1829	8.2	39.9468	79.8937	1.1997
29	513	2.3	40.0958	80.1916	1.1960
30	506	2.3	40.3400	80.6799	1.1900
31	648	2.9	40.4096	80.8193	1.1883
32	1761	7.9	43.3667	86.7333	1.1218

Şekil-E1.20: $x=0.43$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



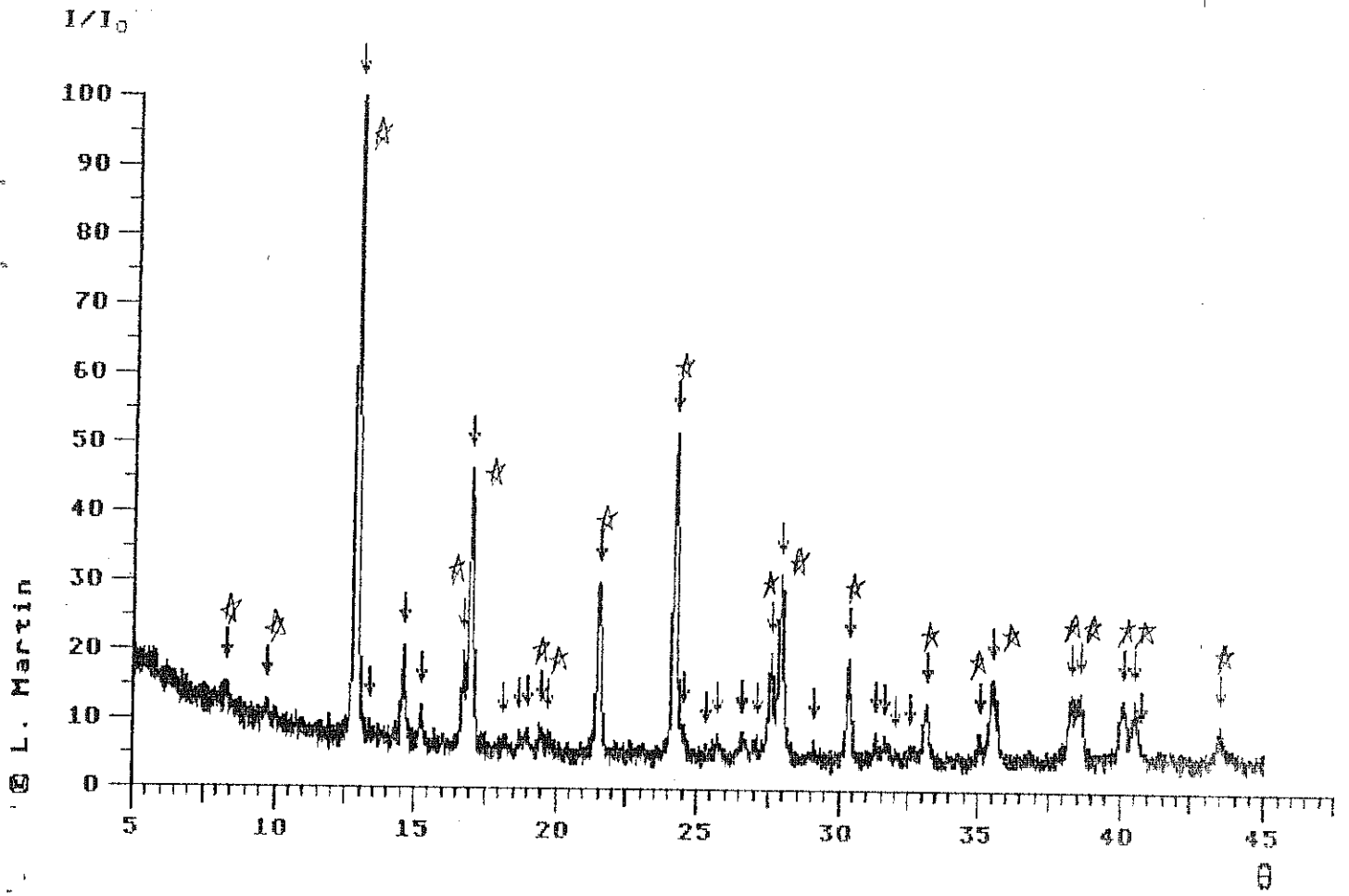
Nr.	Σ Imp	rel. Int.	θ	2θ	μ (Å)
1	4390	21.5	8.1222	16.2444	5.4521
2	4740	23.2	9.6444	19.2889	4.5979
3	20459	100.0	12.7778	25.5556	3.4828
4	2335	11.4	14.5667	29.1333	3.0627
5	786	3.8	15.3333	30.6667	2.9130
6	2445	12.0	16.7444	33.4889	2.6737
7	8825	43.1	17.0333	34.0667	2.6297
8	1800	8.8	18.3000	36.6000	2.4532
9	1941	9.5	19.0333	38.0667	2.3620
10	1599	7.8	19.4444	38.8889	2.3140
11	6187	30.2	21.4889	42.9778	2.1028
12	10249	50.1	24.2222	48.4444	1.8775
13	1395	6.8	25.5889	51.1778	1.7835
14	420	2.1	26.5556	53.1111	1.7230
15	3731	18.2	27.5667	55.1333	1.6645
16	6855	33.5	27.9222	55.8444	1.6450
17	2301	11.2	29.0667	58.1333	1.5855
18	691	3.4	29.4778	58.9556	1.5654
19	3119	15.2	30.3333	60.6667	1.5253
20	863	4.2	31.1889	62.3778	1.4875
21	1009	4.9	31.6444	63.2889	1.4682
22	1021	5.0	31.9889	63.9778	1.4541
23	1035	5.1	32.6333	65.2667	1.4284
24	1991	9.7	33.2222	66.4444	1.4059
25	343	1.7	35.0111	70.0222	1.3426
26	3396	16.6	35.5000	71.0000	1.3265
27	796	3.9	36.8111	73.6222	1.2856
28	1352	6.6	38.2556	76.5111	1.2441
29	2302	11.3	38.6222	77.2444	1.2341
30	2032	9.9	40.1111	80.2222	1.1956
31	1321	6.5	40.5000	81.0000	1.1861
32	1366	6.7	43.4111	86.8222	1.1209

Şekil-E1.21: $x=0.437$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



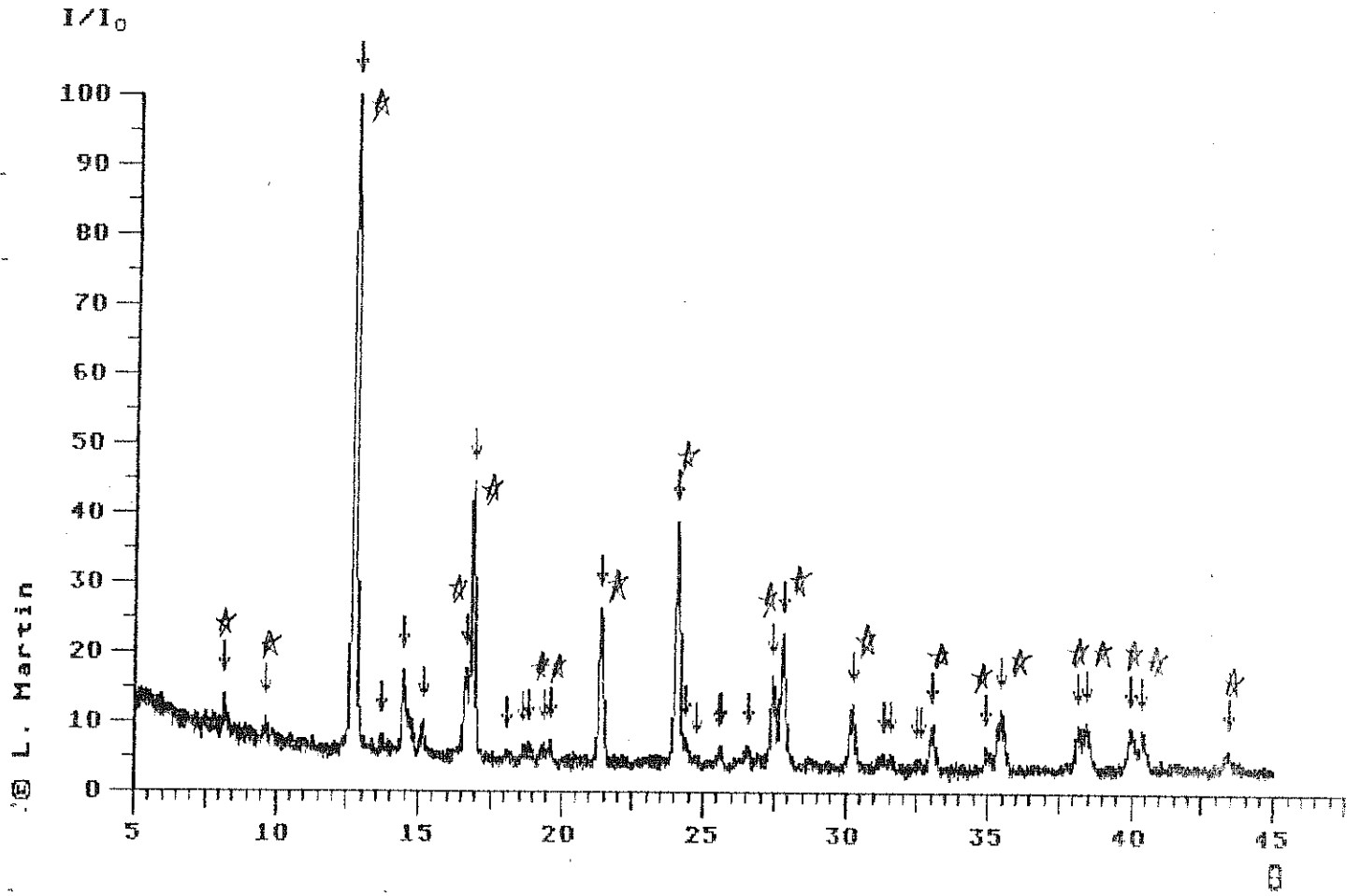
Nr.	E Imp	rel.Int.	θ	2θ	d [Å]
1	2351	8.4	8.2000	16.4000	5.4007
2	3337	12.0	9.8778	19.7556	4.4903
3	27820	100.0	12.8556	25.7111	3.4621
4	3190	11.5	14.6333	29.2667	3.0471
5	1273	4.6	15.3222	30.6444	2.9151
6	3272	11.8	16.7222	33.4444	2.6771
7	10821	38.9	16.9774	33.9548	2.6381
8	1124	4.0	18.1444	36.2889	2.4736
9	1198	4.3	18.6889	37.3778	2.4040
10	1431	5.1	18.9556	37.9111	2.3714
11	842	3.0	19.5333	39.0667	2.3038
12	774	2.8	19.6778	39.3556	2.2876
13	7454	26.8	21.4955	42.9911	2.1022
14	11151	40.1	24.2333	48.4667	1.8767
15	657	2.4	24.5889	49.1778	1.8512
16	742	2.7	25.6889	51.3778	1.7770
17	661	2.4	26.6111	53.2222	1.7197
18	3451	12.4	27.6222	55.2444	1.6614
19	6792	24.4	27.8556	55.7111	1.6486
20	3366	12.1	30.3667	60.7333	1.5237
21	549	2.0	31.3556	62.7111	1.4804
22	338	1.2	31.7000	63.4000	1.4655
23	1484	5.3	32.6778	65.3556	1.4267
24	1709	6.1	33.1461	66.2922	1.4088
25	1232	4.4	35.0419	70.0837	1.3416
26	5157	18.5	35.5633	71.1265	1.3244
27	488	1.8	38.3001	76.6003	1.2429
28	1514	5.4	38.5111	77.0222	1.2371
29	1110	4.0	40.0806	80.1613	1.1964
30	946	3.4	40.4889	80.9778	1.1864
31	1657	6.0	43.4889	86.9778	1.1173

Sekil-E1.22: $x=0.44$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



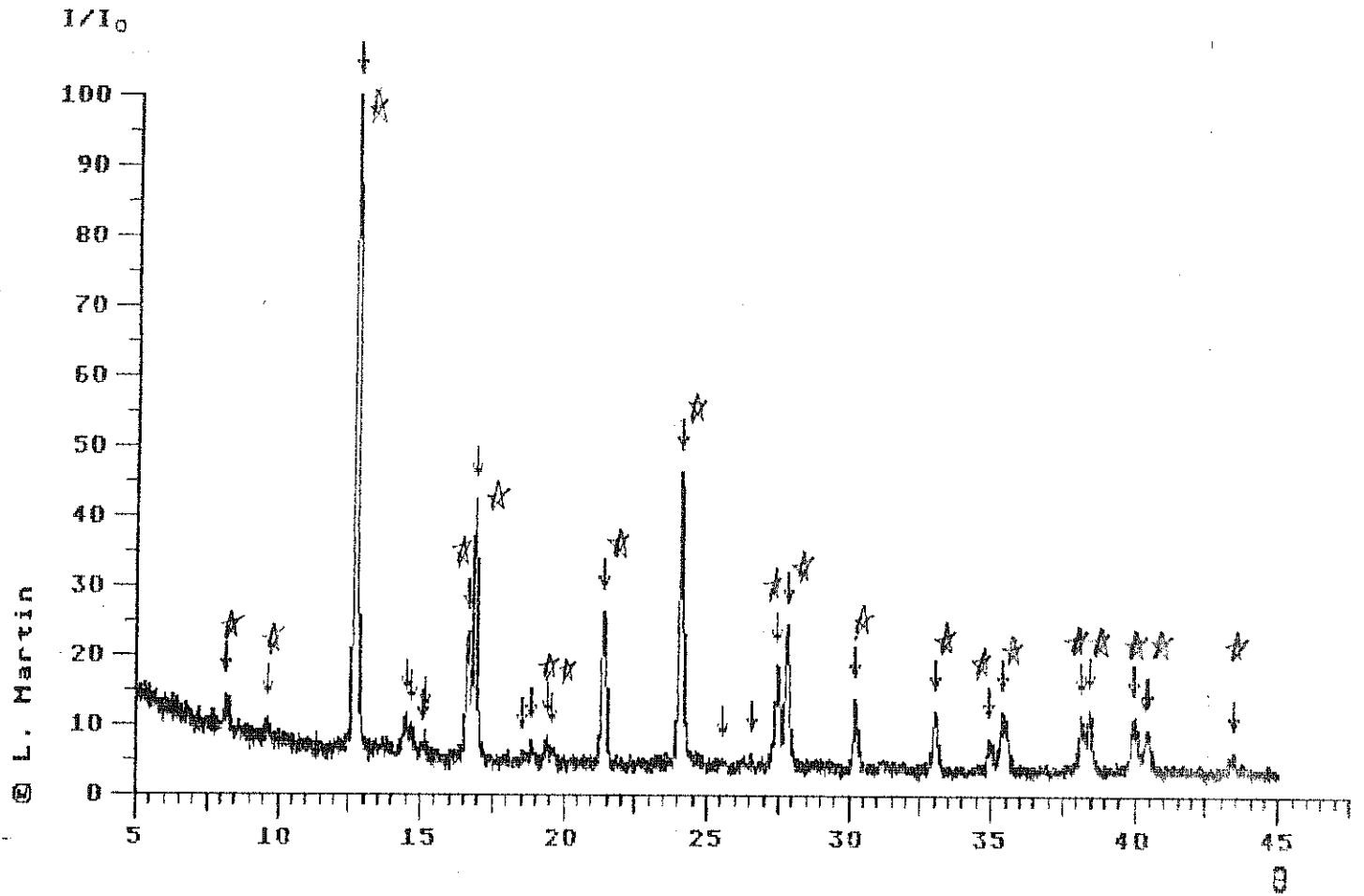
Nr.	Σ Imp	rel.Int.	θ	2θ	d [Å]
1	938	5.3	8.2667	16.5333	5.3575
2	728	4.1	9.7556	19.5111	4.5460
3	17595	100.0	12.8222	25.6444	3.4710
4	138	0.8	13.3444	26.6889	3.3375
5	2188	12.4	14.5778	29.1556	3.0605
6	431	2.5	15.2556	30.5111	2.9275
7	2131	12.1	16.7333	33.4667	2.6754
8	7739	44.0	16.9778	33.9556	2.6380
9	771	4.4	18.1778	36.3556	2.4692
10	327	1.9	18.7333	37.4667	2.3985
11	679	3.9	18.9778	37.9556	2.3687
12	445	2.5	19.4444	38.8889	2.3140
13	223	1.3	19.7000	39.4000	2.2851
14	5141	29.2	21.5000	43.0000	2.1018
15	9995	56.8	24.1835	48.3669	1.8803
16	637	3.6	24.4889	48.9778	1.8583
17	560	3.2	25.3222	50.6444	1.8010
18	335	1.9	25.7282	51.4564	1.7745
19	125	0.7	26.5265	53.0531	1.7248
20	422	2.4	26.5957	53.1914	1.7206
21	511	2.9	27.1333	54.2667	1.6890
22	2935	16.7	27.5674	55.1349	1.6645
23	6084	34.6	27.9262	55.8525	1.6448
24	293	1.7	29.0778	58.1556	1.5850
25	2760	15.7	30.3293	60.6586	1.5254
26	614	3.5	31.3000	62.6000	1.4827
27	500	2.8	31.6000	63.2000	1.4701
28	576	3.3	32.0333	64.0667	1.4523
29	407	2.3	32.5444	65.0889	1.4319
30	1860	10.6	33.1538	66.3077	1.4085
31	513	2.9	35.0444	70.0889	1.3415
32	3868	22.0	35.5444	71.0889	1.3251
33	696	4.0	38.2778	76.5556	1.2435
34	1461	8.3	38.5889	77.1778	1.2350
35	2243	12.8	40.0789	80.1577	1.1964
36	1868	10.6	40.4928	80.9856	1.1863

Şekil-E1.23: $x=0.46$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



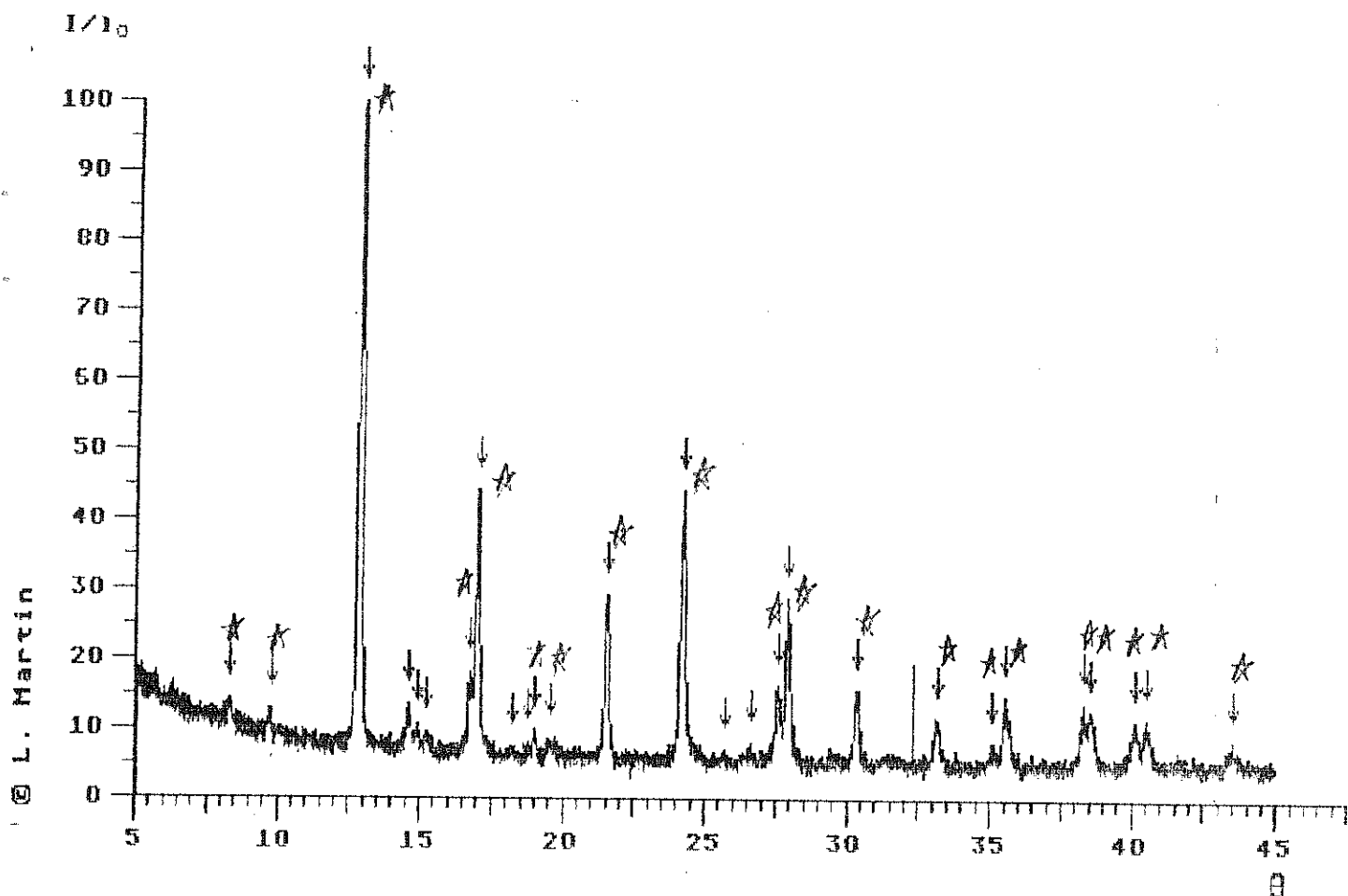
Nr.	Σ Imp	rel. Int.	θ	2θ	d [Å]
1	616	2.2	8.1625	16.3250	5.4254
2	1766	7.0	9.6333	19.2667	4.6031
3	28206	100.0	12.7215	25.4430	3.4980
4	744	2.6	13.6222	27.2444	3.2706
5	4675	16.6	14.4580	28.9160	3.0853
6	1797	6.4	15.1222	30.2444	2.9527
7	2947	10.4	16.6372	33.2744	2.6904
8	11485	40.7	16.8689	33.7378	2.6545
9	760	2.7	18.1000	36.2000	2.4794
10	437	1.8	18.6444	37.2889	2.4095
11	1578	5.6	18.8889	37.7778	2.3794
12	1897	6.7	19.4000	38.8000	2.3191
13	1327	4.7	19.6111	39.2222	2.2951
14	6765	24.0	21.4077	42.8154	2.1104
15	12123	43.0	24.0762	48.1524	1.8882
16	611	2.2	24.3401	48.6802	1.8690
17	730	2.6	24.7333	49.4667	1.8411
18	298	1.1	25.5243	51.0485	1.7877
19	333	1.2	25.6166	51.2332	1.7817
20	607	2.2	26.5262	53.0524	1.7249
21	4496	15.9	27.4542	54.9084	1.6708
22	7207	25.6	27.8058	55.6116	1.6513
23	3140	11.1	30.2265	60.4530	1.5301
24	809	2.9	31.2556	62.5111	1.4846
25	559	2.0	31.5444	63.0889	1.4724
26	200	0.7	32.4815	64.9629	1.4344
27	179	0.6	32.6240	65.2481	1.4288
28	2175	7.7	33.0310	66.0620	1.4132
29	1513	5.4	34.9000	69.8000	1.3463
30	2561	9.1	35.4444	70.8889	1.3283
31	2286	8.1	38.1622	76.3244	1.2467
32	3007	10.7	38.4417	76.8834	1.2390
33	2622	9.3	39.9719	79.9438	1.1991
34	2394	8.5	40.3689	80.7377	1.1893
35	97	0.3	43.3778	86.7556	1.1216

Şekil-E1.24: x=0.465 bileşimli örneğin 49 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



Nr.	E Imp	rel. Int.	θ	2θ	d [Å]
1	840	3.4	8.1814	16.3629	5.4129
2	3170	13.0	9.6111	19.2222	4.6137
3	24373	100.0	12.7214	25.4427	3.4980
4	1068	4.4	14.4975	28.9951	3.0770
5	501	2.1	14.6874	29.3748	3.0381
6	151	0.6	15.0563	30.1126	2.9653
7	284	1.2	15.1631	30.3263	2.9449
8	4398	18.0	16.6828	33.3655	2.6833
9	9446	38.8	16.8904	33.7808	2.6513
10	276	1.2	18.5667	37.1333	2.4197
11	567	2.3	18.8667	37.7333	2.3821
12	547	2.2	19.3985	38.7970	2.3192
13	269	1.1	19.5676	39.1351	2.3000
14	6043	24.8	21.3964	42.7927	2.1115
15	11554	47.4	24.0788	48.1575	1.8880
16	487	2.0	25.5444	51.0889	1.7864
17	1110	4.6	26.5444	53.0889	1.7237
18	4180	17.2	27.4527	54.9053	1.6709
19	6267	25.7	27.7954	55.5908	1.6519
20	2633	10.8	30.2111	60.4222	1.5308
21	2581	10.6	33.0511	66.1023	1.4124
22	1307	5.4	34.9172	69.8344	1.3458
23	2765	11.3	35.4111	70.8222	1.3294
24	2385	9.8	38.1527	76.3055	1.2469
25	2379	9.8	38.4694	76.9388	1.2382
26	2350	9.6	39.9460	79.8921	1.1997
27	756	3.1	40.3020	80.6041	1.1909
28	1035	4.2	40.4362	80.8724	1.1876
29	1606	6.6	43.4000	86.8000	1.1211

Şekil-E1.25: $x=0.47$ bileşimli örneğin 48 saat ve 700 °C için toz deseni ve verileri



Nr.	E Imp	rel.Int.	θ	2θ	d [Å]
1	2185	10.2	8.3000	16.6000	5.3361
2	427	2.0	9.7667	19.5333	4.5409
3	21436	100.0	12.8412	25.6824	3.4659
4	1796	8.4	14.6000	29.2000	3.0559
5	653	3.0	14.8778	29.7556	3.0001
6	647	3.0	15.2222	30.4444	2.9338
7	2660	12.4	16.7291	33.4582	2.6761
8	8562	39.9	17.0063	34.0125	2.6337
9	389	1.8	18.2222	36.4444	2.4634
10	524	2.4	18.7444	37.4889	2.3971
11	776	3.6	19.0111	38.0222	2.3647
12	1219	5.7	19.5667	39.1333	2.3001
13	5741	26.8	21.5286	43.0573	2.0991
14	9637	45.0	24.1900	48.3801	1.8799
15	971	4.5	25.7333	51.4667	1.7741
16	1132	5.3	26.6111	53.2222	1.7197
17	2875	13.4	27.5654	55.1307	1.6646
18	5717	26.7	27.9073	55.8146	1.6458
19	2523	11.8	30.3441	60.6883	1.5248
20	1813	8.5	33.1680	66.3360	1.4080
21	636	3.0	35.0667	70.1333	1.3408
22	2460	11.5	35.5667	71.1333	1.3243
23	1652	7.7	38.2556	76.5111	1.2441
24	1438	6.7	38.5444	77.0889	1.2362
25	1750	8.2	40.0728	80.1455	1.1966
26	1700	7.9	40.4927	80.9855	1.1863
27	1947	9.1	43.5111	87.0222	1.1188

EK-2

- Şekil-E2.1: $x=0.53$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri
- Şekil-E2.2: $x=0.538$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri
- Şekil-E2.3: $x=0.55$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri
- Şekil-E2.4: $x=0.562$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri
- Şekil-E2.5: $x=0.571$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri
- Şekil-E2.6: $x=0.583$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri
- Şekil-E2.7: $x=0.592$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri
- Şekil-E2.8: $x=0.6$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri
- Şekil-E2.9: $x=0.615$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri
- Şekil-E2.10: $x=0.625$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri
- Şekil-E2.11: $x=0.636$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri
- Şekil-E2.12: $x=0.642$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri
- Şekil-E2.13: $x=0.66$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri
- Şekil-E2.14: $x=0.7$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri

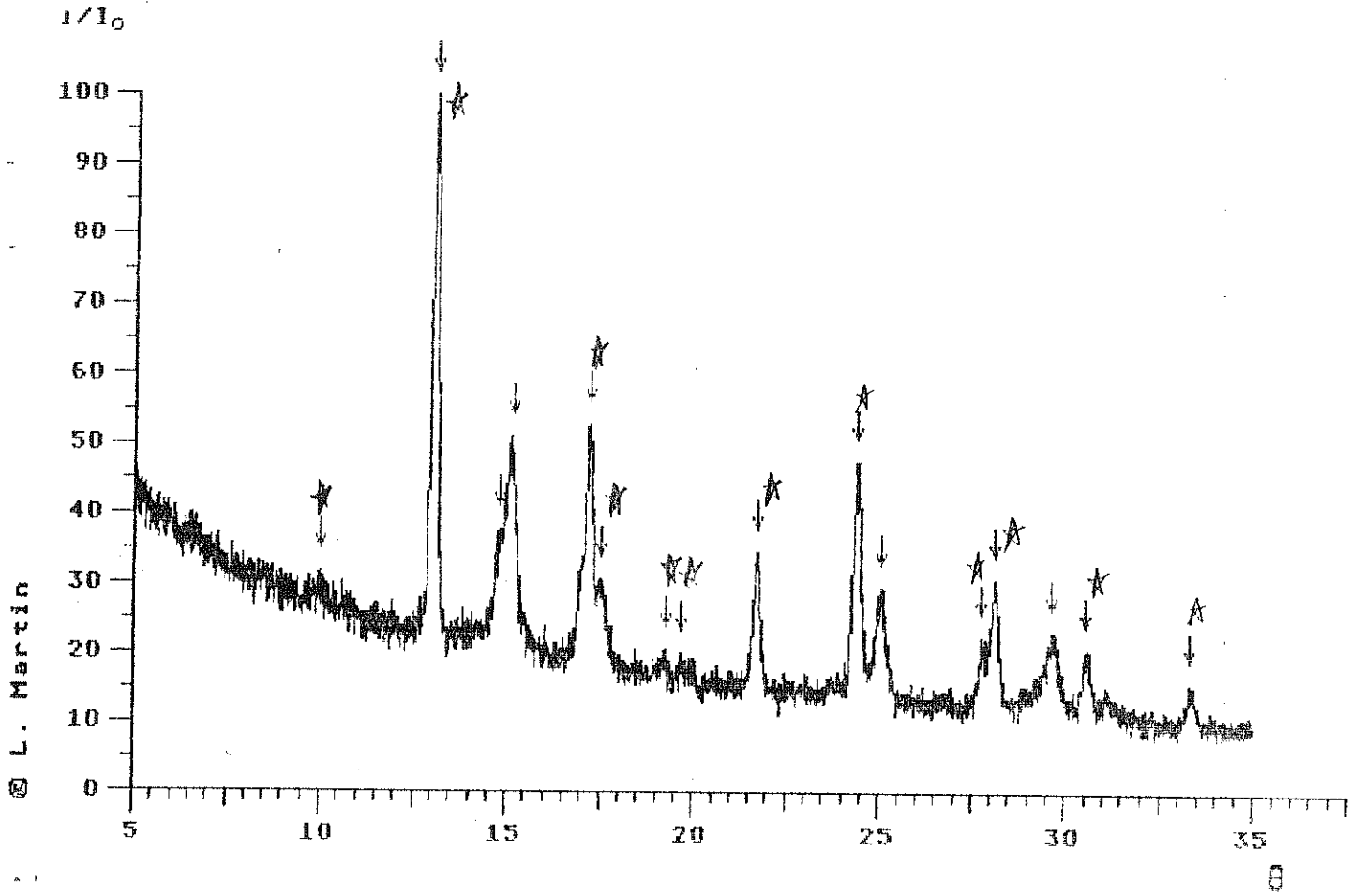
Şekil-E2.15: $x=0.714$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için
toz deseni ve verileri

Şekil-E2.16: $x=0.727$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için
toz deseni ve verileri

Şekil-E2.17: $x=0.75$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için
toz deseni ve verileri

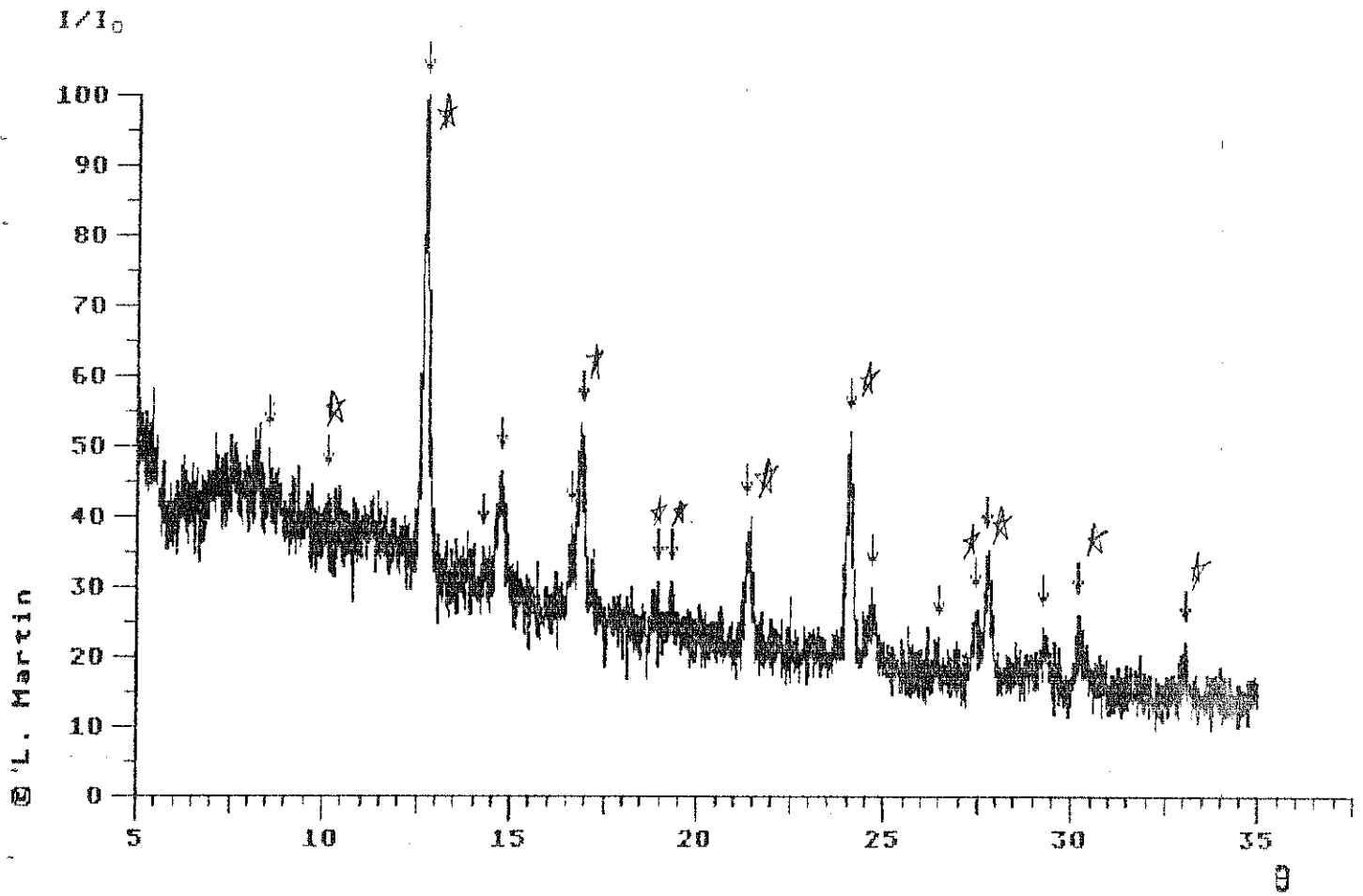
Şekil-E2.18: $x=0.77$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için
toz deseni ve verileri

Şekil-E2.1: $x=0.53$ bileşimli örneğin 24 saat ve 300 °C için toz deseni ve verileri



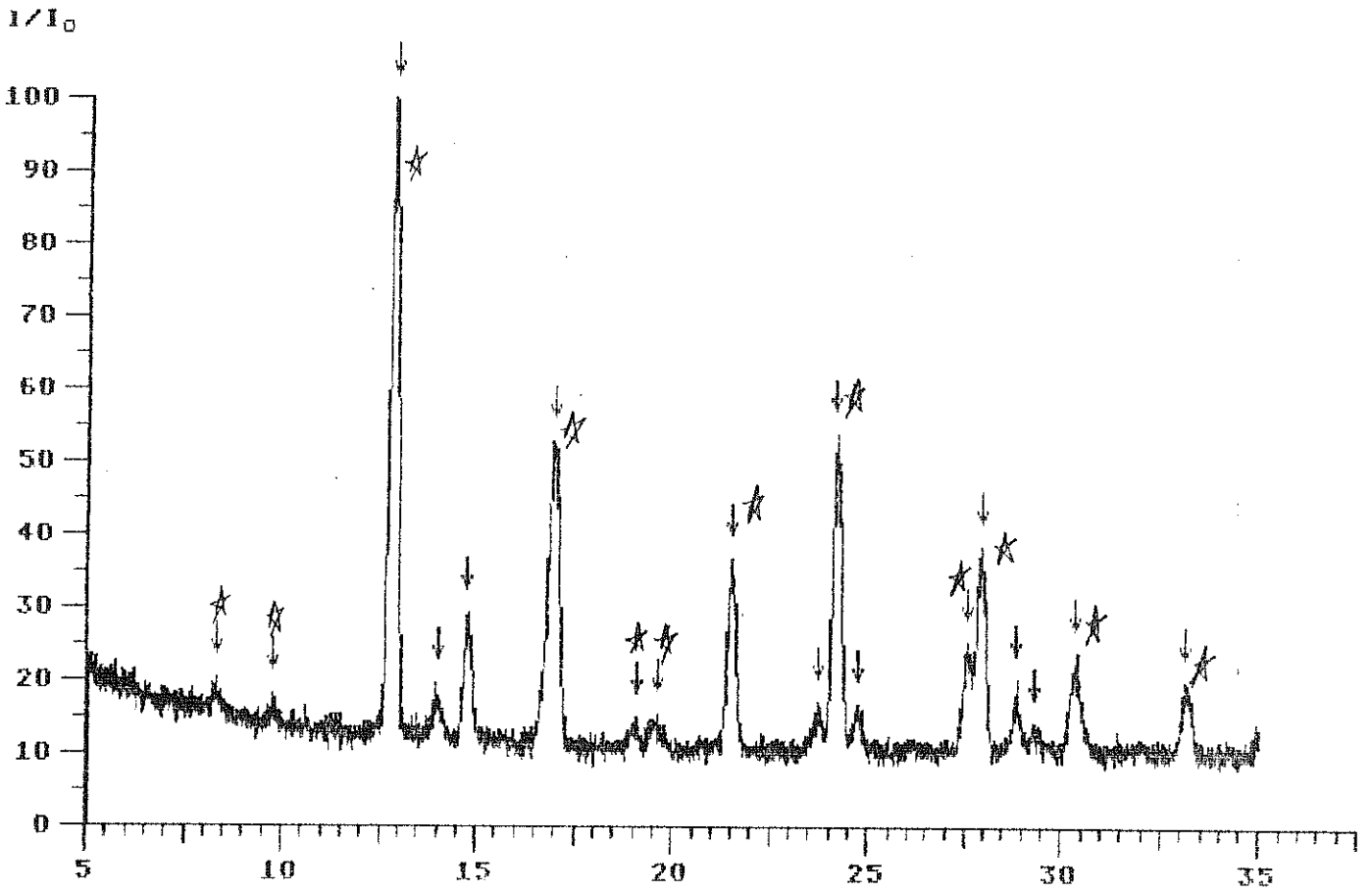
Nr.	Σ Imp	rel. int.	θ	2θ	d (Å)
1	1259	5.5	10.0111	20.0222	4.4311
2	23069	100.0	13.0567	26.1134	3.4097
3	2489	10.8	14.8333	29.6667	3.0089
4	6576	28.5	15.1444	30.2889	2.9485
5	14594	63.3	17.1954	34.3908	2.6056
6	1223	5.3	17.5111	35.0222	2.5601
7	1452	6.3	19.2556	38.5111	2.3358
8	3493	15.1	19.6889	39.3778	2.2863
9	6557	28.4	21.7246	43.4493	2.0811
10	11548	50.1	24.3540	48.7080	1.8651
11	5070	22.0	25.0561	50.1122	1.8197
12	1804	7.8	27.7556	55.5111	1.6541
13	3685	16.0	28.1229	56.2459	1.6342
14	3473	15.1	29.6333	59.2667	1.5579
15	2765	12.0	30.5386	61.0771	1.5160
16	1771	7.7	33.3111	66.6222	1.4026

Şekil-E2.2: $x=0.538$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri



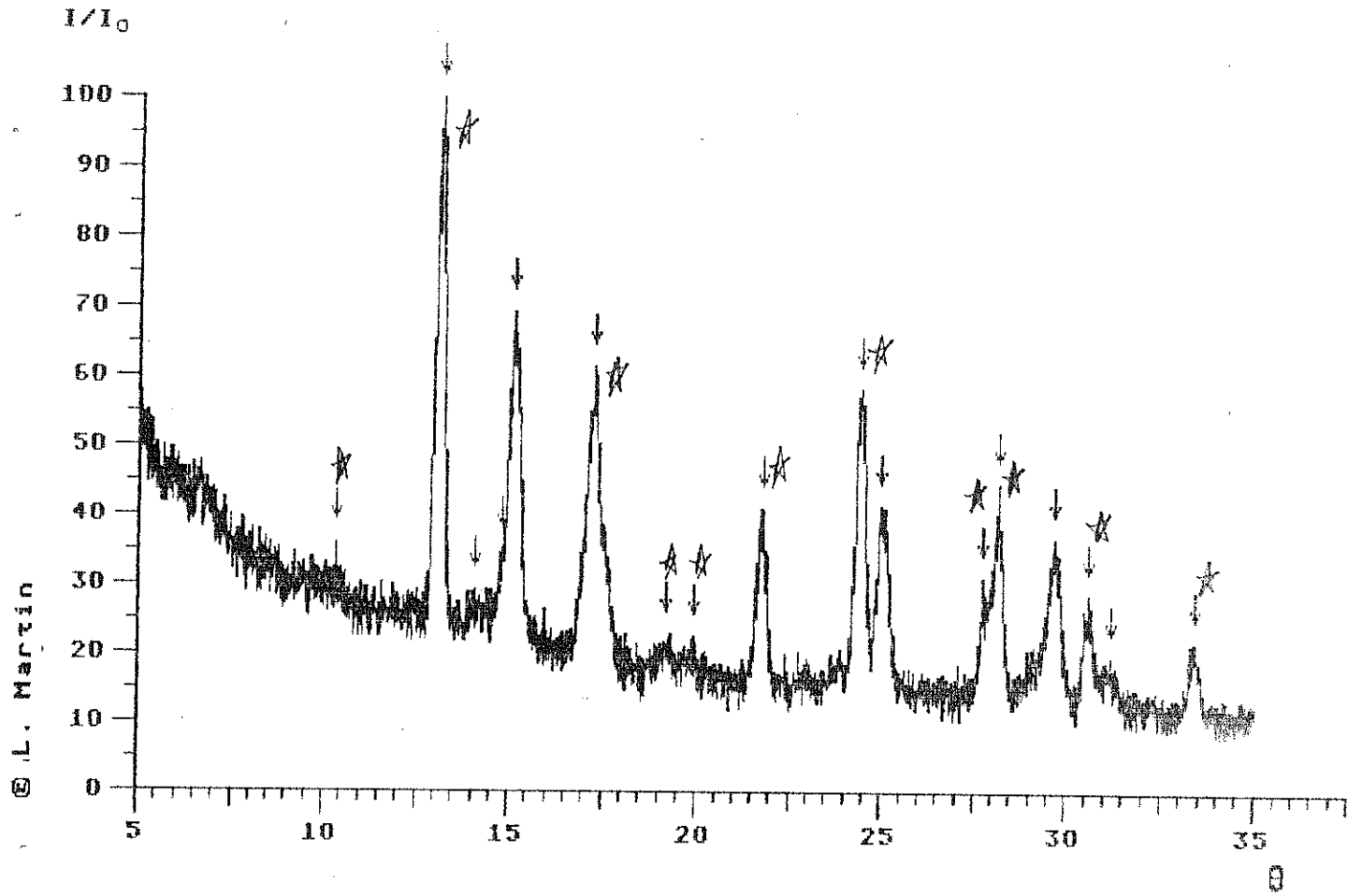
Nr.	h	Imp	rel. Int.	θ	2θ	d [Å]
1	909	16.4	8.5556	17.1111	5.1778	
2	913	16.4	10.1222	20.2444	4.3830	
3	5553	100.0	12.7387	25.4775	3.4933	
4	432	7.8	14.2556	28.5111	3.1282	
5	2104	37.9	14.7778	29.5556	3.0199	
6	582	10.5	16.6000	33.2000	2.6963	
7	1439	25.9	16.8872	33.7743	2.6517	
8	453	8.2	18.9556	37.9111	2.3714	
9	903	16.3	19.3444	38.6889	2.3255	
10	1346	24.2	21.3356	42.6712	2.1172	
11	2623	47.2	24.0822	48.1644	1.9870	
12	865	15.6	24.6556	49.3111	1.9465	
13	177	3.2	26.4778	52.9556	1.7277	
14	548	9.9	27.4418	54.8836	1.6715	
15	1417	25.5	27.7750	55.5500	1.6530	
16	651	11.7	29.2556	58.5111	1.5762	
17	705	12.7	30.1444	60.2889	1.5339	
18	292	5.3	33.0444	66.0889	1.4126	

Saxil-E2.3: x=0.55 bileşimli örneğin 24 saat ve 900 °C için toz deseni ve verileri



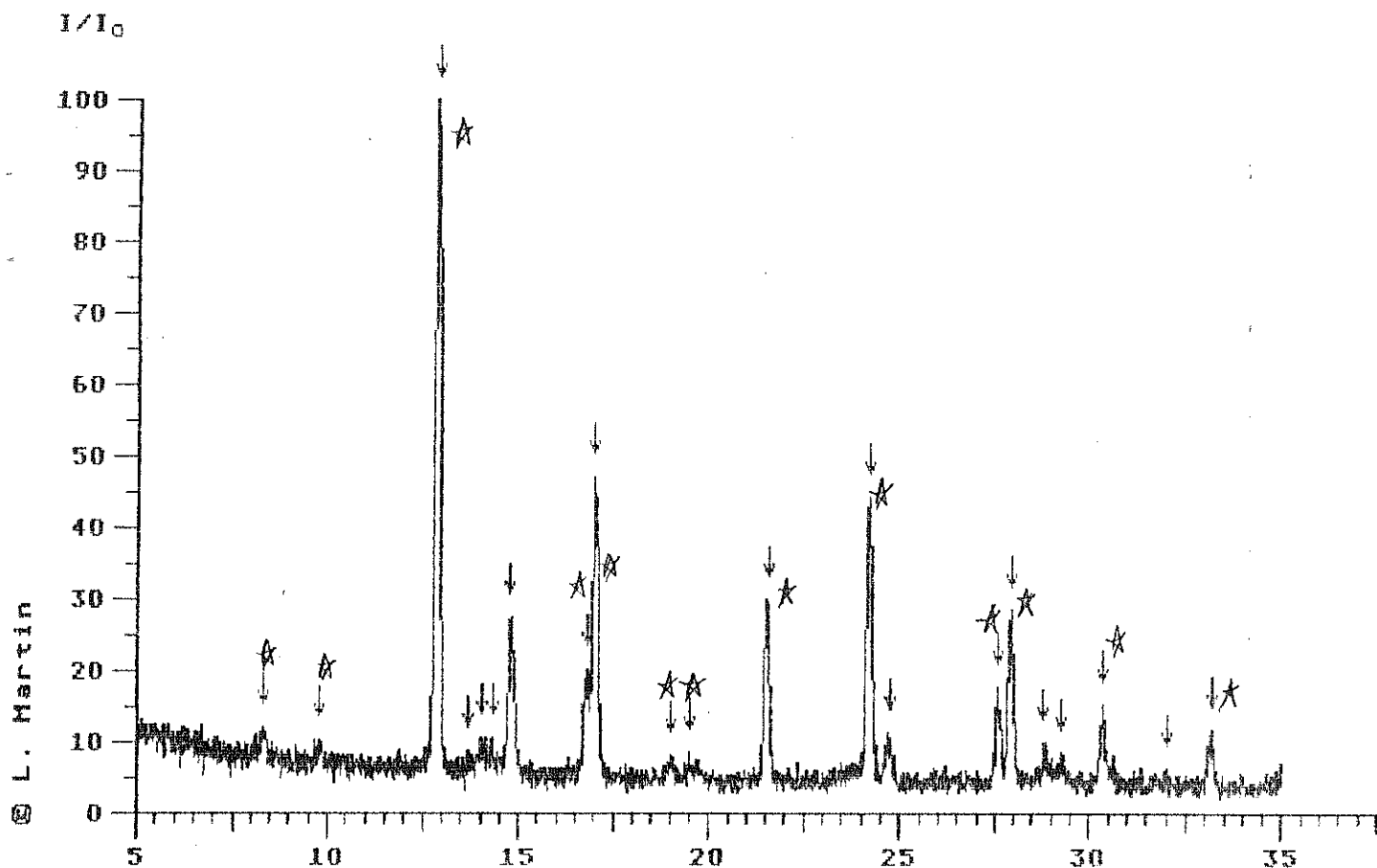
Nr.	E Imp	rel.Int.	θ	2θ	d [Å]
1	836	2.2	8.2889	16.5778	5.3432
2	1843	4.8	9.7778	19.5556	4.5358
3	38658	100.0	12.8630	25.7260	3.4601
4	1833	4.7	14.0035	28.0070	3.1833
5	7154	18.5	14.7717	29.5435	3.0212
6	24616	63.8	16.9559	33.9118	2.6413
7	1040	2.7	19.0889	38.1778	2.3554
8	3439	8.9	19.6000	39.2000	2.2963
9	10512	27.2	21.5152	43.0304	2.1003
10	860	2.2	23.7333	47.4667	1.9139
11	18798	48.6	24.1667	48.3333	1.8816
12	2227	5.8	24.7667	49.5333	1.8388
13	5542	14.3	27.5485	55.0970	1.6655
14	13602	35.2	27.9313	55.8626	1.6445
15	2808	7.3	28.8630	57.7261	1.5958
16	1556	4.0	29.3111	58.6222	1.5735
17	5081	13.1	30.3513	60.7026	1.5244
18	6502	16.8	33.1333	66.2667	1.4093

Şekil-E2.4: $x=0.562$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri



Nr.	Σ Imp	rel. Int.	θ	2θ	d [Å]
1	2164	13.0	10.3667	20.7333	4.2807
2	16378	98.4	13.1199	26.2399	3.3935
3	874	5.3	14.1111	28.2222	3.1595
4	696	4.2	14.7870	29.5740	3.0181
5	12327	74.1	15.1124	30.2248	2.9546
6	16636	100.0	17.2889	34.5778	2.5919
7	1240	7.5	19.2333	38.4667	2.3384
8	147	0.9	19.9111	39.8222	2.2619
9	4841	29.1	21.7720	43.5440	2.0768
10	9913	59.6	24.4226	48.8452	1.8630
11	5070	30.5	25.0000	50.0000	1.8227
12	1339	8.1	27.7667	55.5333	1.6535
13	2728	16.4	28.1889	56.3778	1.6307
14	5231	31.4	29.6667	59.3333	1.5563
15	1795	10.8	30.5889	61.1778	1.5137
16	906	5.4	31.1667	62.3333	1.4884
17	2241	13.5	33.4111	66.8222	1.3989

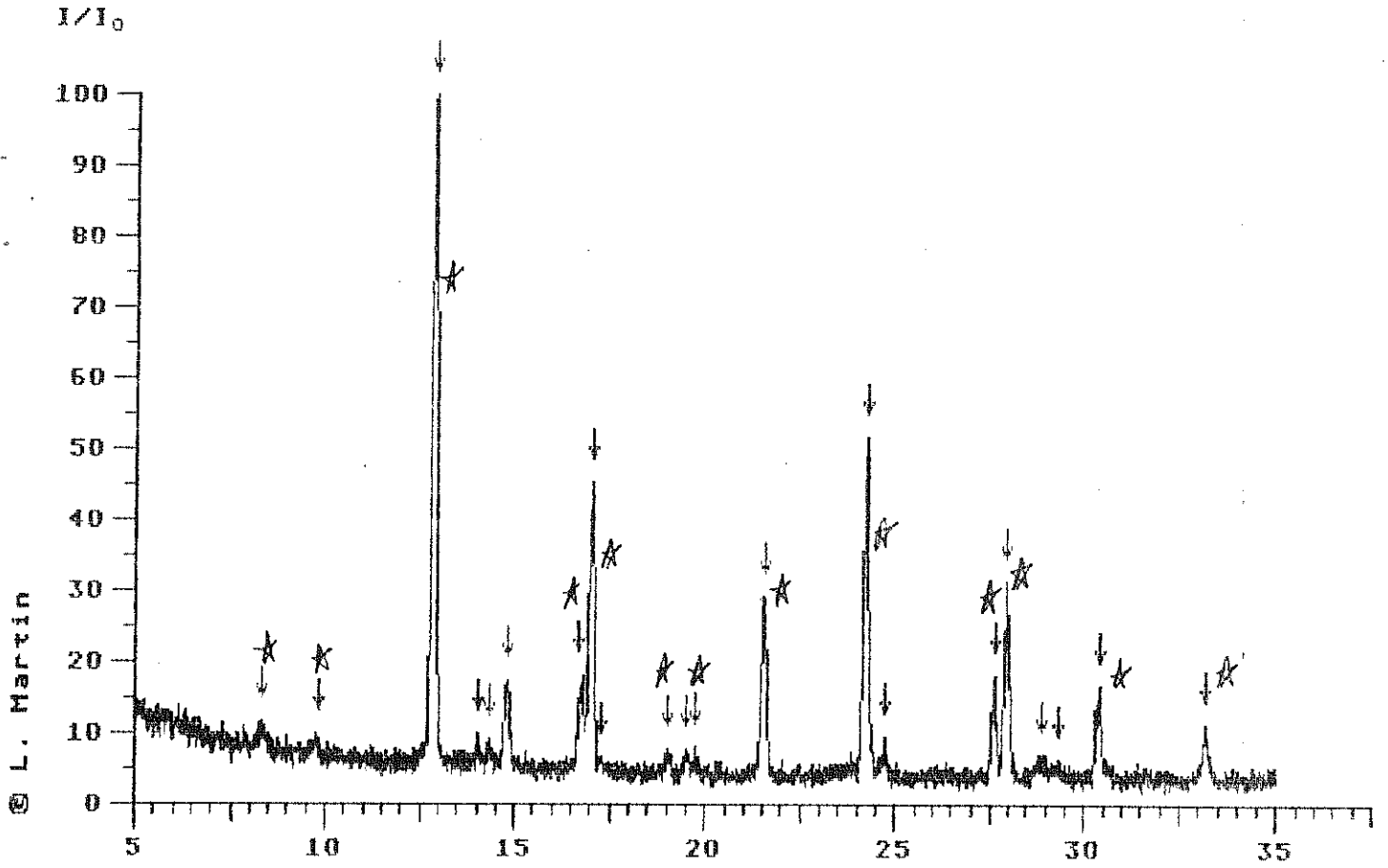
Şekil-E2.5: x=0.571 bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri



9

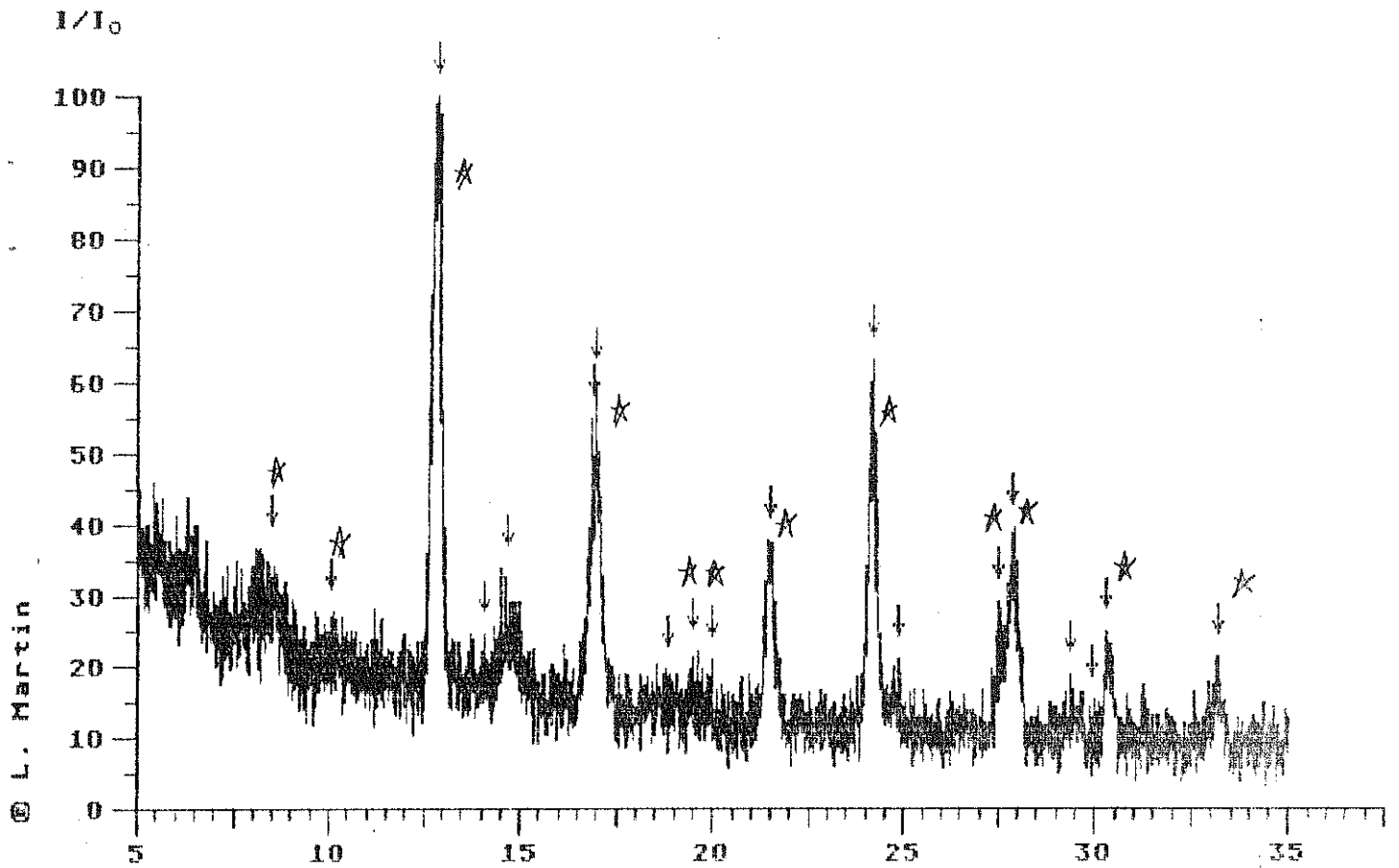
Nr.	Σ Imp	rel. Int.	θ	2θ	d [Å]
1	347	2.9	8.3275	16.6550	5.3186
2	300	2.5	9.7556	19.5111	4.5460
3	12097	100.0	12.8556	25.7111	3.4621
4	427	3.5	13.6889	27.3778	3.2550
5	106	0.9	14.0333	28.0667	3.1767
6	145	1.2	14.3444	28.6889	3.1092
7	3144	26.0	14.7778	29.5556	3.0199
8	1937	16.0	16.7940	33.5880	2.6660
9	5901	48.8	17.0013	34.0026	2.6345
10	692	5.7	19.0111	38.0222	2.3647
11	185	1.5	19.5111	39.0222	2.3064
12	3134	25.9	21.5240	43.0480	2.0995
13	5235	43.3	24.1889	48.3778	1.8799
14	767	6.3	24.7376	49.4752	1.8408
15	1330	11.0	27.5556	55.1111	1.6651
16	2824	23.3	27.9239	55.8477	1.6449
17	383	3.2	28.8000	57.6000	1.5989
18	423	3.5	29.2667	58.5333	1.5757
19	1054	8.7	30.3354	60.6708	1.5252
20	559	4.6	32.0444	64.0889	1.4518
21	1001	8.3	33.1444	66.2889	1.4089

Şekil-E2.6: $x=0.593$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri



Nr.	Δ Imp	rel.int.	θ	2θ	d [Å]
1	920	6.9	8.3222	16.6444	5.3220
2	260	1.9	9.7889	19.5778	4.5307
3	13418	100.0	12.8718	25.7436	3.4578
4	324	2.4	14.0444	28.0889	3.1742
5	199	1.5	14.3319	28.6639	3.1118
6	1677	12.5	14.8037	29.6074	3.0148
7	1555	11.6	16.6916	33.3832	2.6819
8	5730	42.7	17.0259	34.0518	2.6308
9	56	0.4	17.2674	34.5348	2.5951
10	608	4.5	19.0111	38.0222	2.3647
11	445	3.3	19.4778	38.9556	2.3102
12	172	1.3	19.7333	39.4667	2.2814
13	3533	26.3	21.5350	43.0700	2.0985
14	6598	49.2	24.2311	48.4621	1.8769
15	427	3.2	24.7252	49.4504	1.8416
16	1766	13.2	27.6111	55.2222	1.6620
17	3486	26.0	27.9512	55.9023	1.6434
18	965	7.2	28.8778	57.7556	1.5950
19	385	2.9	29.3111	58.6222	1.5735
20	1478	11.0	30.3800	60.7599	1.5231
21	1016	7.6	33.1909	66.3819	1.4071

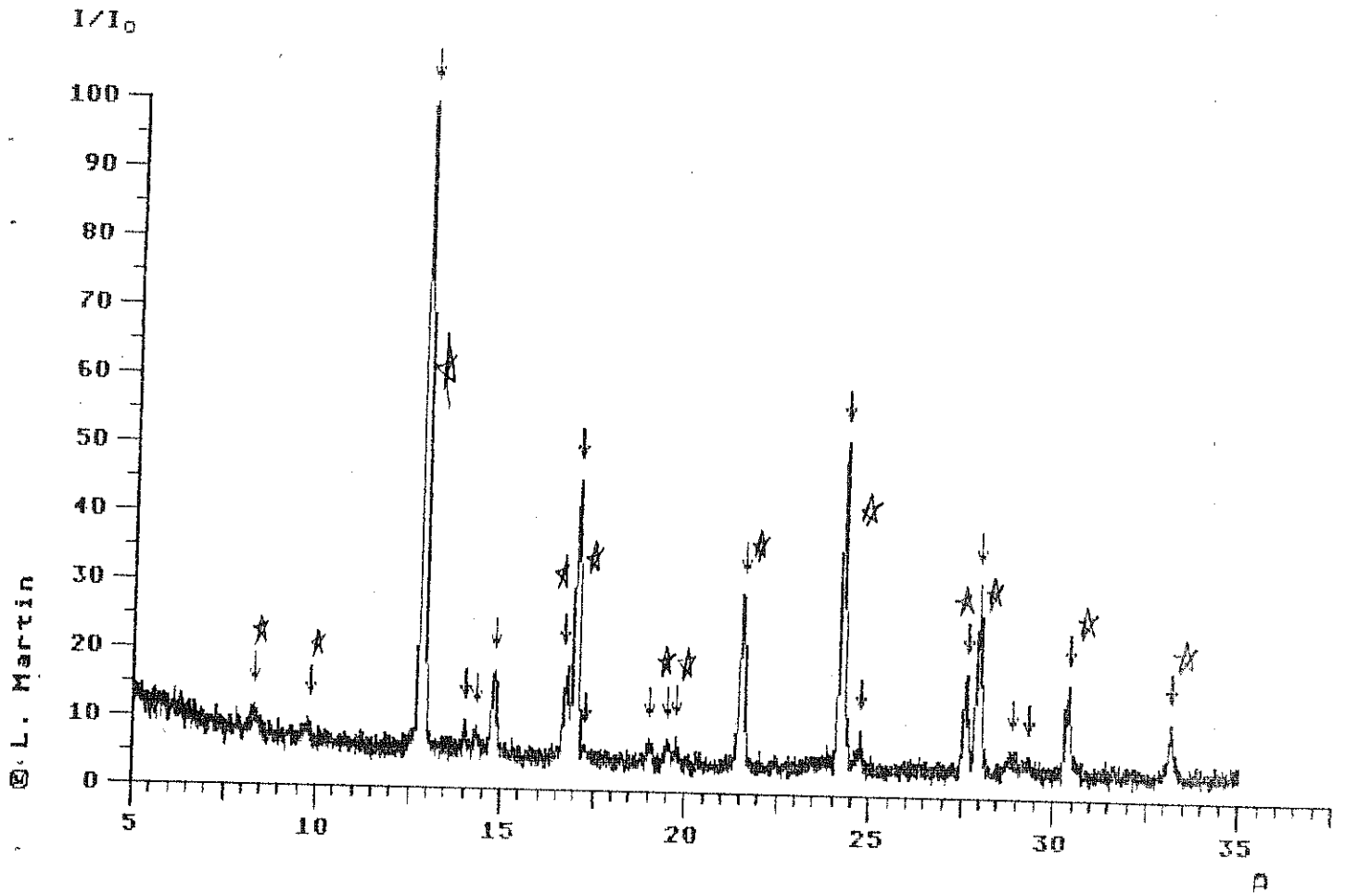
Şekil-E2.7: $x=0.592$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri



9

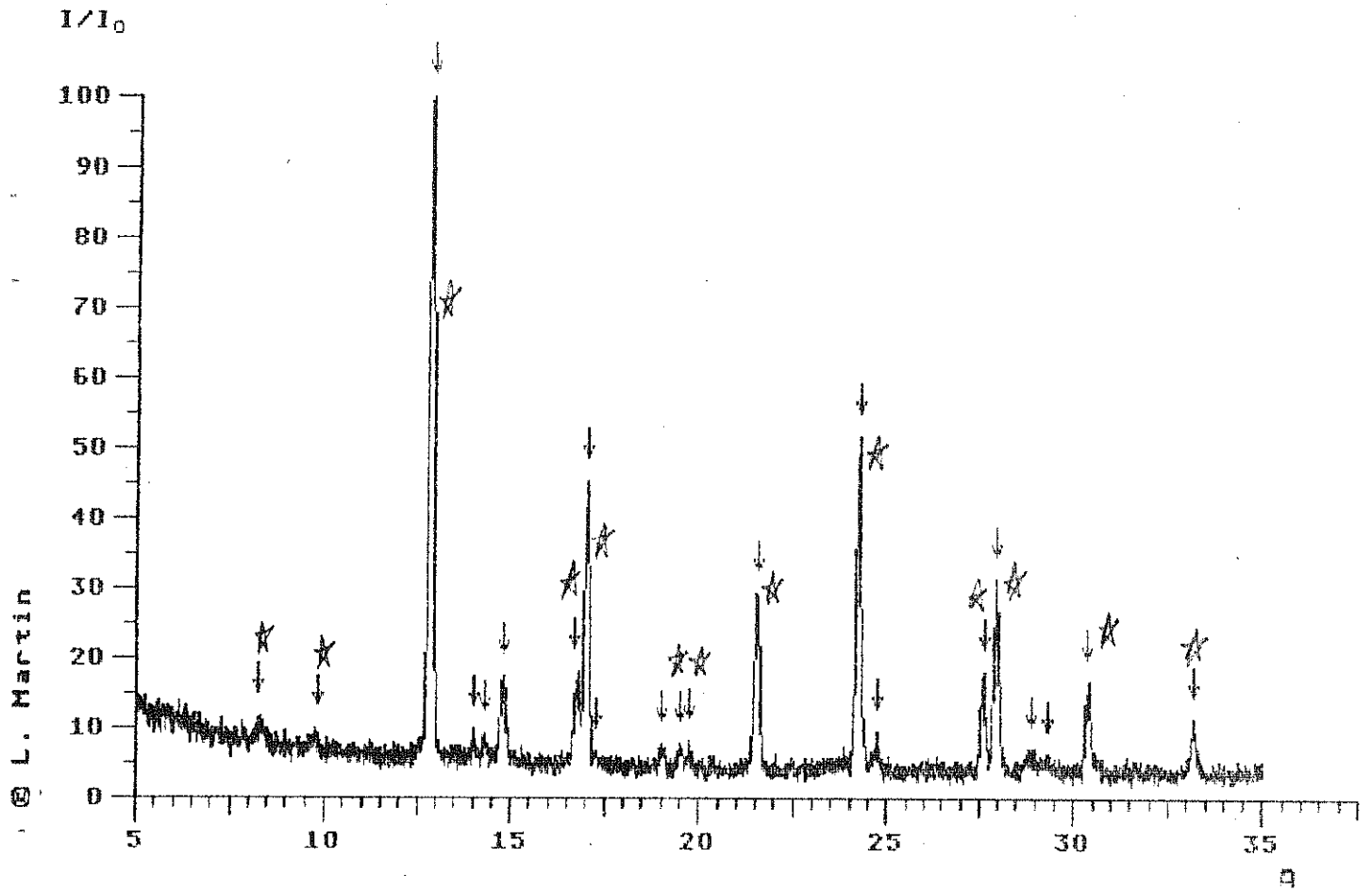
Nr.	Σ Imp	rel. int.	θ	2θ	d [Å]
1	648	16.7	8.5111	17.0222	5.2047
2	390	10.0	10.0333	20.0667	4.4214
3	3889	100.0	12.8716	25.7432	3.4579
4	420	10.8	14.0889	28.1778	3.1644
5	465	11.9	14.6889	29.3778	3.0378
6	1055	27.1	16.8920	33.7840	2.6510
7	1225	31.5	16.9744	33.9488	2.6385
8	156	4.0	18.8222	37.6444	2.3875
9	237	6.1	19.5000	39.0000	2.3076
10	35	0.9	19.9778	39.9556	2.2546
11	1579	40.6	21.4667	42.9333	2.1049
12	2421	62.2	24.2111	48.4221	1.8783
13	395	10.1	24.8667	49.7333	1.8318
14	220	5.6	27.5222	55.0444	1.6670
15	742	19.1	27.9889	55.9778	1.6468
16	400	10.3	29.3556	58.7111	1.5713
17	197	5.1	29.9222	59.8444	1.5442
18	958	24.6	30.2556	60.5111	1.5288
19	912	23.4	33.1556	66.3111	1.4084

Şekil-E2.8: x=0.6 bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri



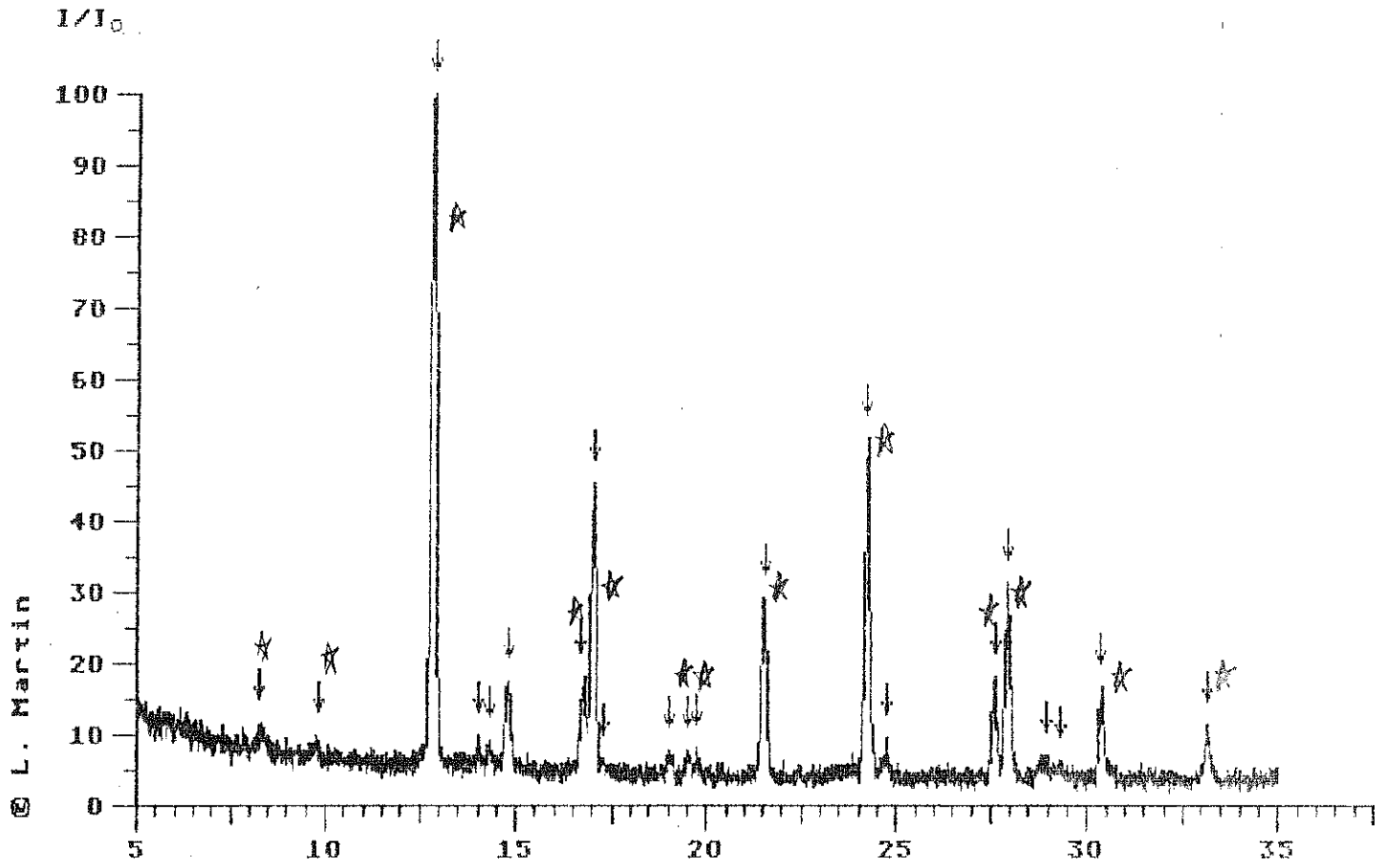
Nr.	2θ [deg]	rel. Int.	d [Å]	2θ	d [Å]
1	920	6.9	8.2778	16.5556	5.3503
2	260	1.9	9.7889	19.5778	4.5307
3	13418	100.0	12.8718	25.7436	3.4578
4	324	2.4	14.0444	28.0889	3.1742
5	199	1.5	14.3319	28.6639	3.1118
6	1677	12.5	14.8222	29.6444	3.0111
7	1555	11.6	16.6916	33.3832	2.6819
8	5730	42.7	17.0259	34.0518	2.6306
9	56	0.4	17.2778	34.5556	2.5936
10	608	4.5	19.0111	38.0222	2.3647
11	445	3.3	19.4778	38.9556	2.3102
12	172	1.3	19.7333	39.4667	2.2814
13	3533	26.3	21.5444	43.0889	2.0976
14	6598	49.2	24.2311	48.4621	1.8769
15	427	3.2	24.7444	49.4889	1.8403
16	1766	13.2	27.6111	55.2222	1.6620
17	3484	24.0	27.9512	55.9023	1.6434
18	965	7.2	28.8778	57.7556	1.5950
19	395	2.9	29.3111	58.6222	1.5735
20	1478	11.0	30.3667	60.7333	1.5237
21	1016	7.6	33.1909	66.3819	1.4071

Şekil-E2.9: $x=0.615$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri



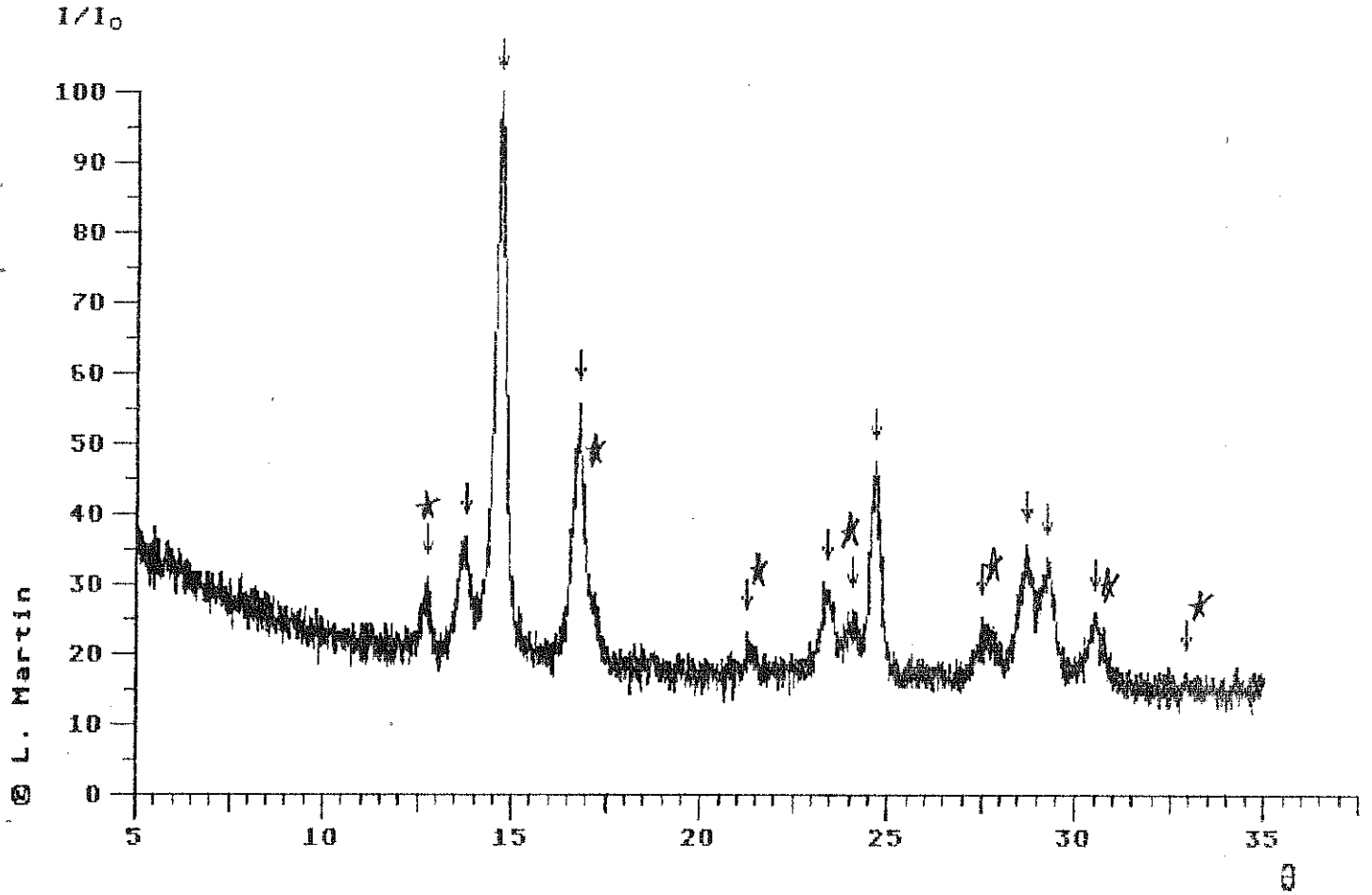
Nr.	Σ Imp	rel. Int.	θ	2θ	d [Å]
1	920	6.9	8.2778	16.5556	5.3503
2	260	1.9	9.7889	19.5778	4.5307
3	13418	100.0	12.8556	25.7111	3.4621
4	324	2.4	14.0444	28.0889	3.1742
5	199	1.5	14.3319	28.6639	3.1118
6	1677	12.5	14.8222	29.6444	3.0111
7	1555	11.6	16.6916	33.3832	2.6819
8	5730	42.7	17.0259	34.0518	2.6308
9	56	0.4	17.2778	34.5556	2.5936
10	608	4.5	19.0111	38.0222	2.3647
11	445	3.3	19.4778	38.9556	2.3102
12	172	1.3	19.7333	39.4667	2.2814
13	3533	26.3	21.5444	43.0889	2.0976
14	6558	49.2	24.2222	48.4444	1.8775
15	427	3.2	24.7444	49.4889	1.8403
16	1766	13.2	27.6111	55.2222	1.6620
17	3486	26.0	27.9333	55.8667	1.6444
18	565	7.2	28.9333	57.8667	1.5922
19	385	2.9	29.3111	58.6222	1.5735
20	1478	11.0	30.3667	60.7333	1.5237
21	1016	7.6	33.1667	66.3333	1.4080

Şekil-E2.10: $x=0.625$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri



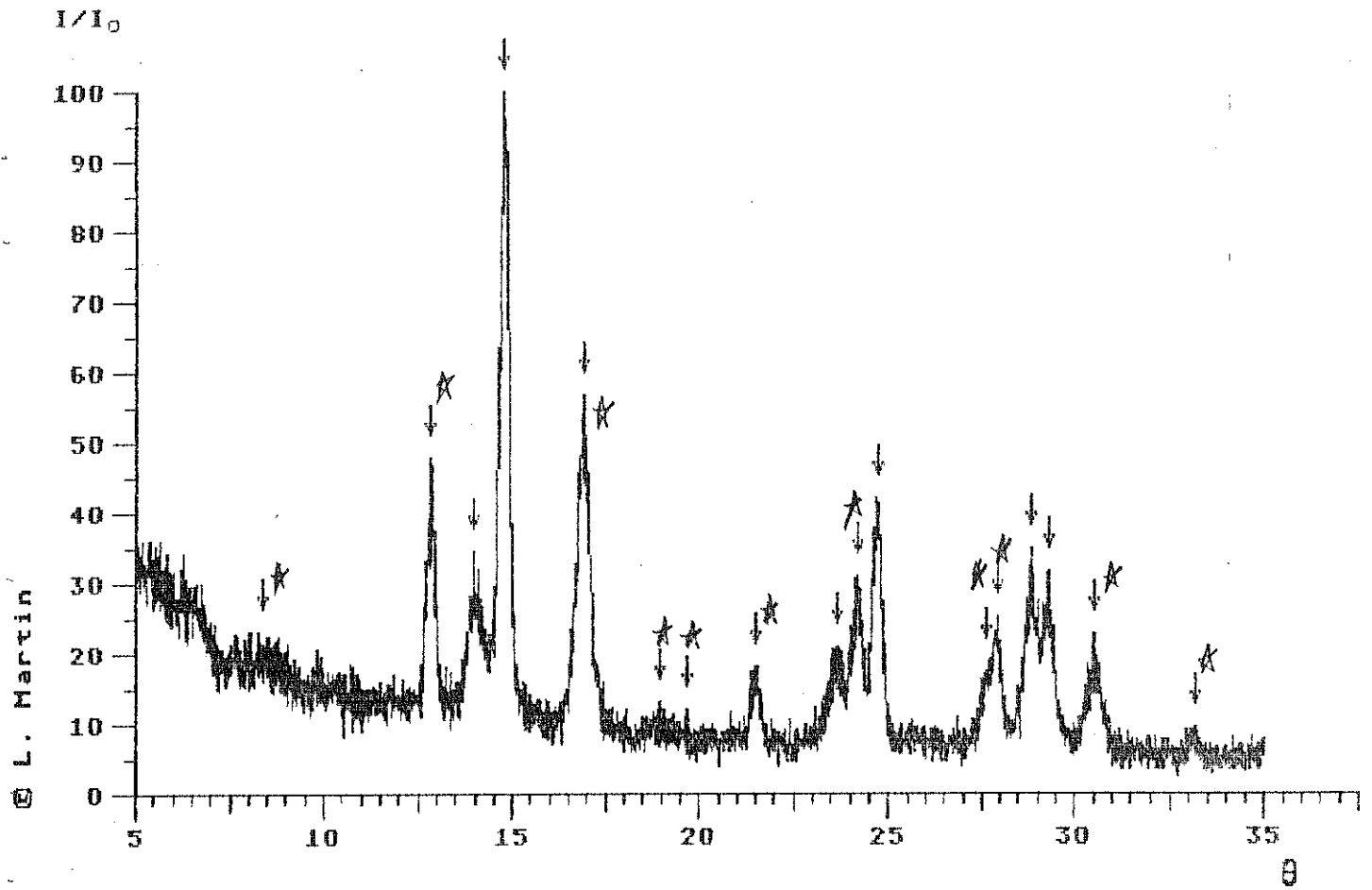
Nr.	Σ Imp	rel. Int.	θ	2θ	d [Å]
1	920	6.9	8.3444	16.6889	5.3079
2	260	1.9	9.7889	19.5778	4.5307
3	13418	100.0	12.8556	25.7111	3.4621
4	324	2.4	14.0444	28.0889	3.1742
5	199	1.5	14.3319	28.6639	3.1118
6	1677	12.5	14.8222	29.6444	3.0111
7	1555	11.6	16.6916	33.3832	2.6819
8	5730	42.7	17.0259	34.0518	2.6308
9	56	0.4	17.2778	34.5556	2.5936
10	608	4.5	19.0667	38.1333	2.3581
11	445	3.3	19.4778	38.9556	2.3102
12	172	1.3	19.7333	39.4667	2.2814
13	3533	26.3	21.5444	43.0889	2.0976
14	6598	49.2	24.2222	48.4444	1.8775
15	427	3.2	24.7889	49.5778	1.8372
16	1766	13.2	27.6111	55.2222	1.6620
17	3486	26.0	27.9333	55.8667	1.6444
18	965	7.2	28.9333	57.8667	1.5922
19	385	2.9	29.3111	58.6222	1.5735
20	1478	11.0	30.3444	60.6889	1.5248
21	1016	7.6	33.2111	66.4222	1.4064

Şekil-E2.11: $x=0.636$ bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri



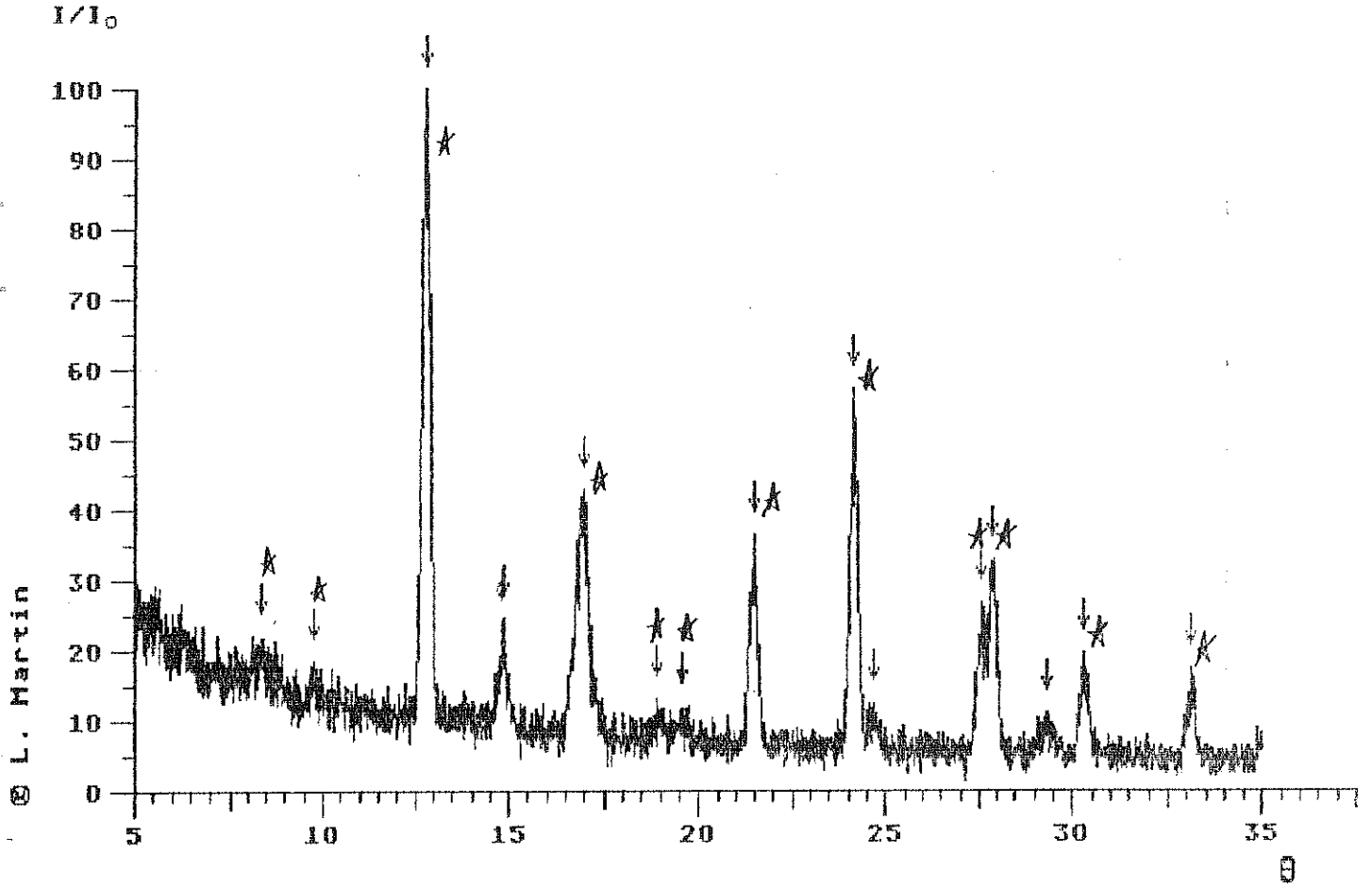
Nr.	Σ Imp	rel.Int.	θ	2θ	d [Å]
1	1507	4.9	12.7444	25.4889	3.4918
2	4430	14.5	13.7667	27.5333	3.2370
3	30592	100.0	14.6951	29.3901	3.0366
4	17216	56.3	16.7893	33.5785	2.6668
5	2960	9.7	21.2778	42.5556	2.1227
6	2201	7.2	23.4126	46.8253	1.9386
7	590	1.9	24.0667	48.1333	1.8989
8	9997	32.7	24.6931	49.3861	1.8439
9	1733	5.7	27.5333	55.0667	1.6664
10	3373	11.0	28.7222	57.4444	1.6027
11	3798	12.4	29.2667	58.5333	1.5757
12	5034	16.5	30.5111	61.0222	1.5172
13	990	3.2	32.9333	65.8667	1.4167

Şekil-E2.12: $x=0.642$ bileşimli $\text{Brn}\alpha$ için 24 saat ve 900 °C için toz deseni ve verileri



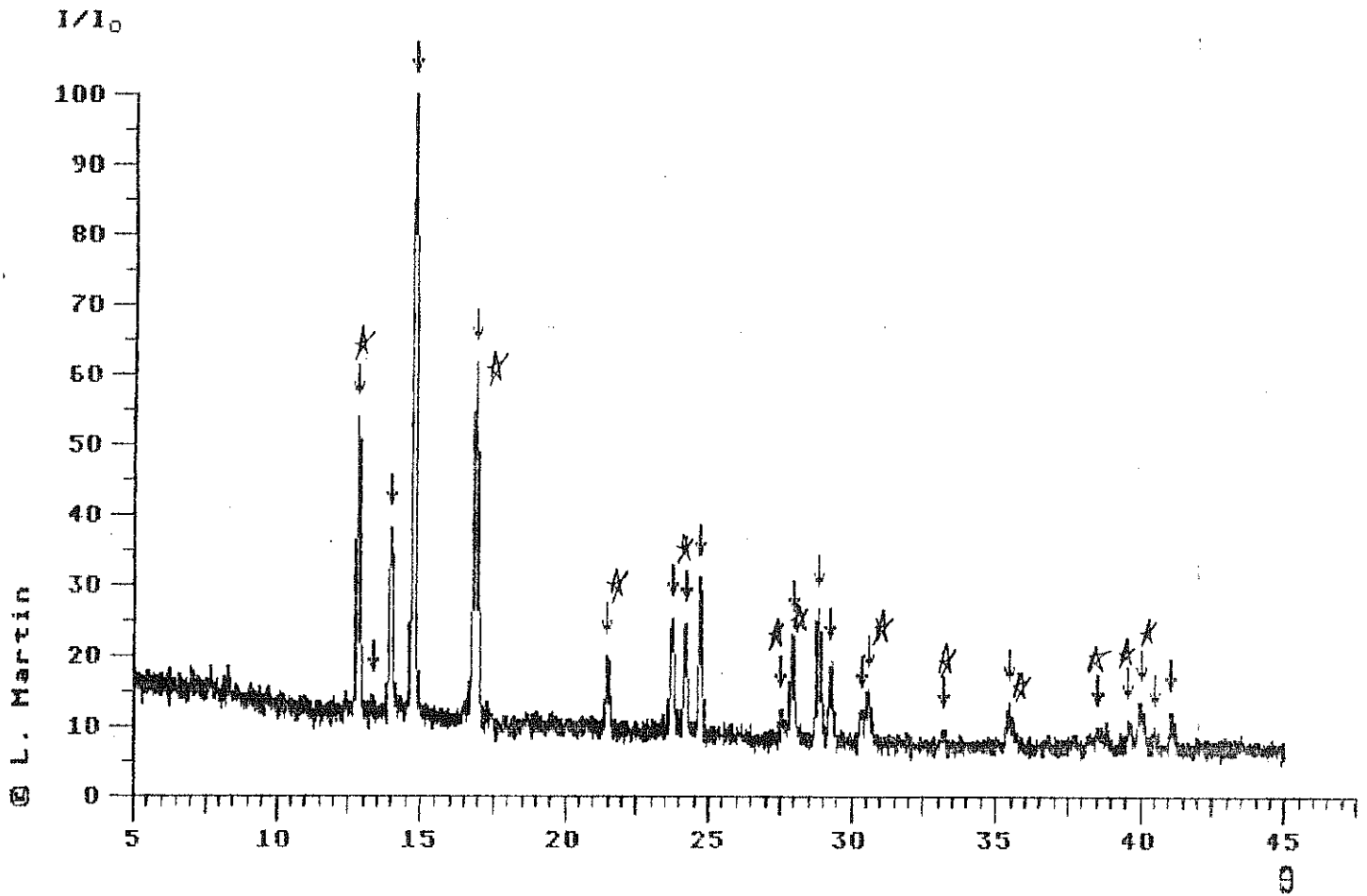
Nr.	h k l	rel. Int.	2θ	d [Å]
1	744	6.4	8.3444	16.6889
2	3457	29.6	12.8404	25.6809
3	1976	17.0	13.9444	27.8889
4	11658	100.0	14.7556	29.5111
5	8243	70.7	16.9333	33.8667
6	985	8.4	18.9889	37.9778
7	181	1.6	19.6556	39.3111
8	1404	12.0	21.5000	43.0000
9	1332	11.4	23.6667	47.3333
10	2160	18.5	24.1889	48.3778
11	4119	35.3	24.7302	49.4605
12	590	5.1	27.6000	55.2000
13	836	7.2	27.9145	55.8291
14	1656	14.2	28.8444	57.6889
15	1696	14.5	29.2889	58.5778
16	2773	23.8	30.5000	61.0000
17	815	7.0	33.1444	66.2889

Şekil-E2.13: x=0.65 bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri



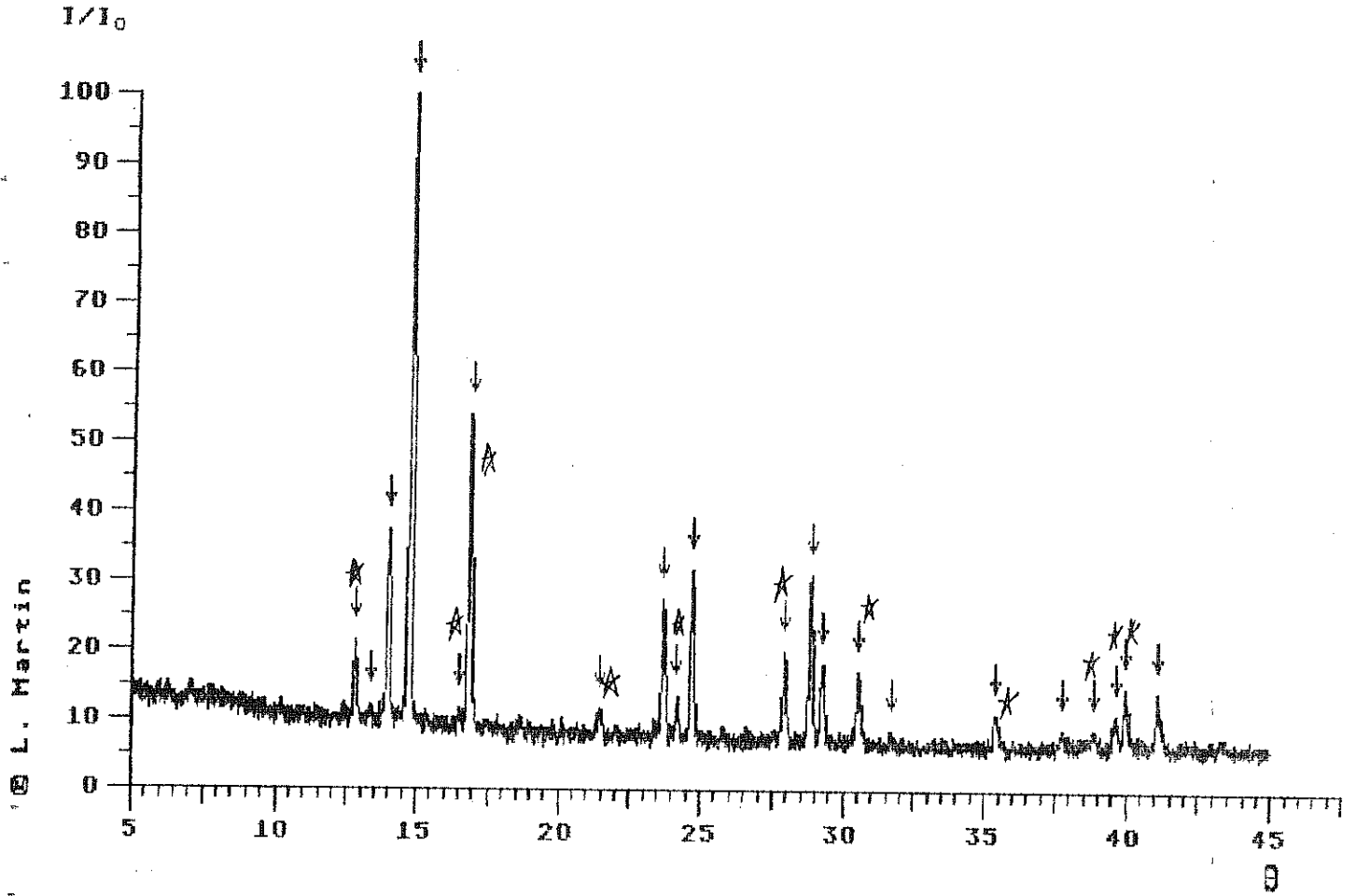
Nr.	E Imp	rel.Int.	θ	2θ	d [Å]
1	572	7.0	8.4000	16.8000	5.2730
2	1745	21.3	9.7778	19.5556	4.5358
3	8190	100.0	12.8002	25.6004	3.4768
4	502	6.1	14.8099	29.6198	3.0135
5	404	4.9	14.8774	29.7547	3.0002
6	4632	56.6	16.9556	33.9111	2.6414
7	183	2.2	18.9222	37.8444	2.3754
8	525	6.4	19.5556	39.1111	2.3013
9	2527	30.9	21.5000	43.0000	2.1018
10	4400	53.7	24.1557	48.3114	1.8824
11	545	6.7	24.7000	49.4000	1.8434
12	396	4.8	27.5667	55.1333	1.6645
13	1605	19.6	27.8667	55.7333	1.6480
14	642	7.8	29.2889	58.5778	1.5746
15	1059	12.9	30.2868	60.5736	1.5274
16	1091	13.3	33.1333	66.2667	1.4093

Şekil-E2.14: x=0.7 bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri



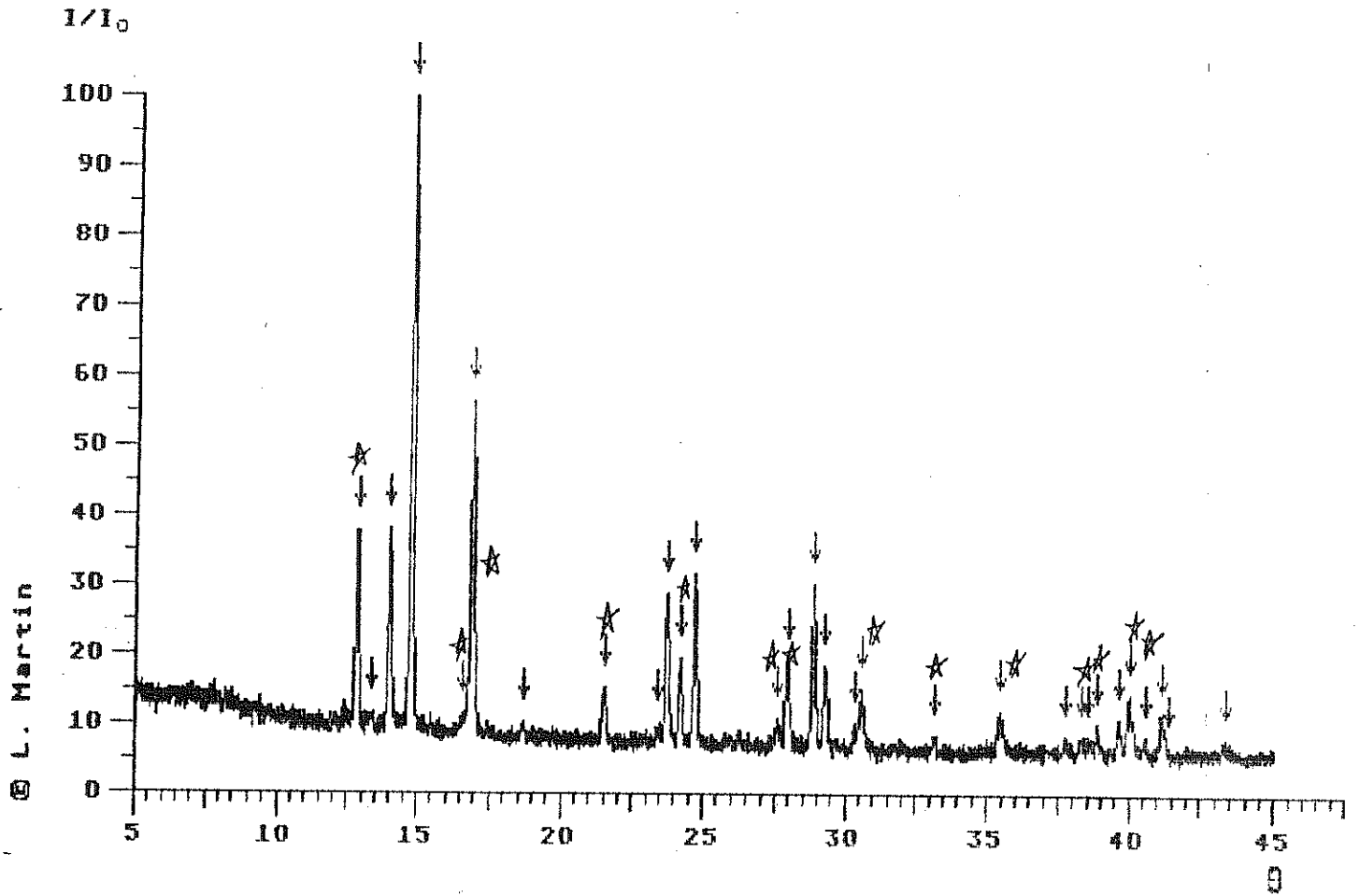
Nr.	E Imp	rel.Int.	θ	2θ	d [Å]
1	9789	46.4	12.8138	25.6275	3.4732
2	963	4.6	13.3444	26.6889	3.3375
3	6961	33.0	13.9756	27.9512	3.1895
4	21075	100.0	14.7512	29.5025	3.0253
5	15738	74.7	16.8762	33.7523	2.6534
6	2450	11.7	21.4778	42.9556	2.1038
7	4378	20.8	23.7222	47.4444	1.9147
8	3529	16.7	24.1782	48.3564	1.8807
9	4976	23.6	24.7125	49.4249	1.8425
10	790	3.7	27.5484	55.0967	1.6655
11	3695	17.5	27.9716	55.9432	1.6423
12	5664	26.9	28.8263	57.6527	1.5976
13	2668	12.7	29.2795	58.5590	1.5750
14	946	4.5	30.3294	60.6589	1.5254
15	2366	11.2	30.5394	61.0788	1.5159
16	357	1.7	33.1556	66.3111	1.4084
17	1990	9.4	35.4556	70.9111	1.3279
18	1604	7.6	38.5556	77.1111	1.2359
19	796	3.8	39.5889	79.1778	1.2087
20	2023	9.6	40.0000	80.0000	1.1984
21	521	2.5	40.5000	81.0000	1.1861
22	1237	5.9	41.0667	82.1333	1.1726

Şekil-E2.15: x=0.714 bileşimli örneğin 24 saat ve 900 °C için toz deseni ve verileri



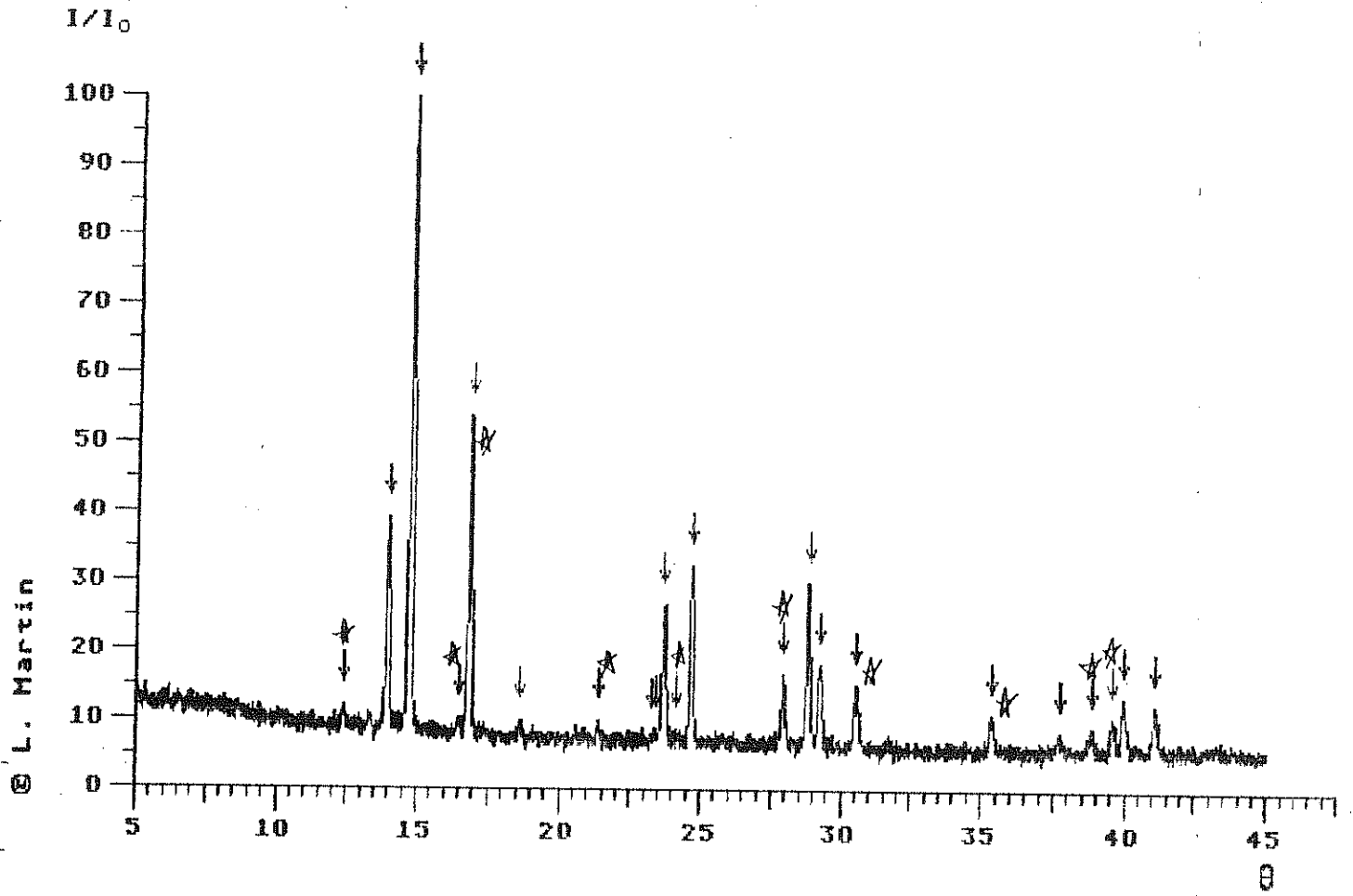
Nr.	E Imp	rel.Int.	θ	2θ	d [Å]
1	2559	10.5	12.7957	25.5914	3.4780
2	770	3.2	13.3111	26.6222	3.3457
3	7779	31.8	13.9685	27.9370	3.1911
4	24435	100.0	14.7363	29.4726	3.0283
5	464	1.9	16.5077	33.0155	2.7109
6	14322	58.6	16.8590	33.7179	2.6561
7	1974	8.1	21.4444	42.8889	2.1070
8	5283	21.6	23.6908	47.3816	1.9171
9	1060	4.3	24.1574	48.3147	1.8823
10	6990	28.6	24.6867	49.3734	1.8443
11	3462	14.2	27.9374	55.8748	1.6442
12	8922	36.5	28.8111	57.6222	1.5984
13	3291	13.5	29.2515	58.5029	1.5764
14	2624	10.7	30.5368	61.0736	1.5161
15	291	1.2	31.6538	63.3077	1.4678
16	1631	6.7	35.3753	70.7507	1.3306
17	1037	4.2	37.7111	75.4222	1.2593
18	593	2.4	38.8185	77.6371	1.2288
19	1612	6.6	39.6057	79.2113	1.2083
20	2779	11.4	39.9426	79.8852	1.1998
21	2076	8.5	41.0609	82.1218	1.1727

Şekil-E2.16: x=0.727 bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri



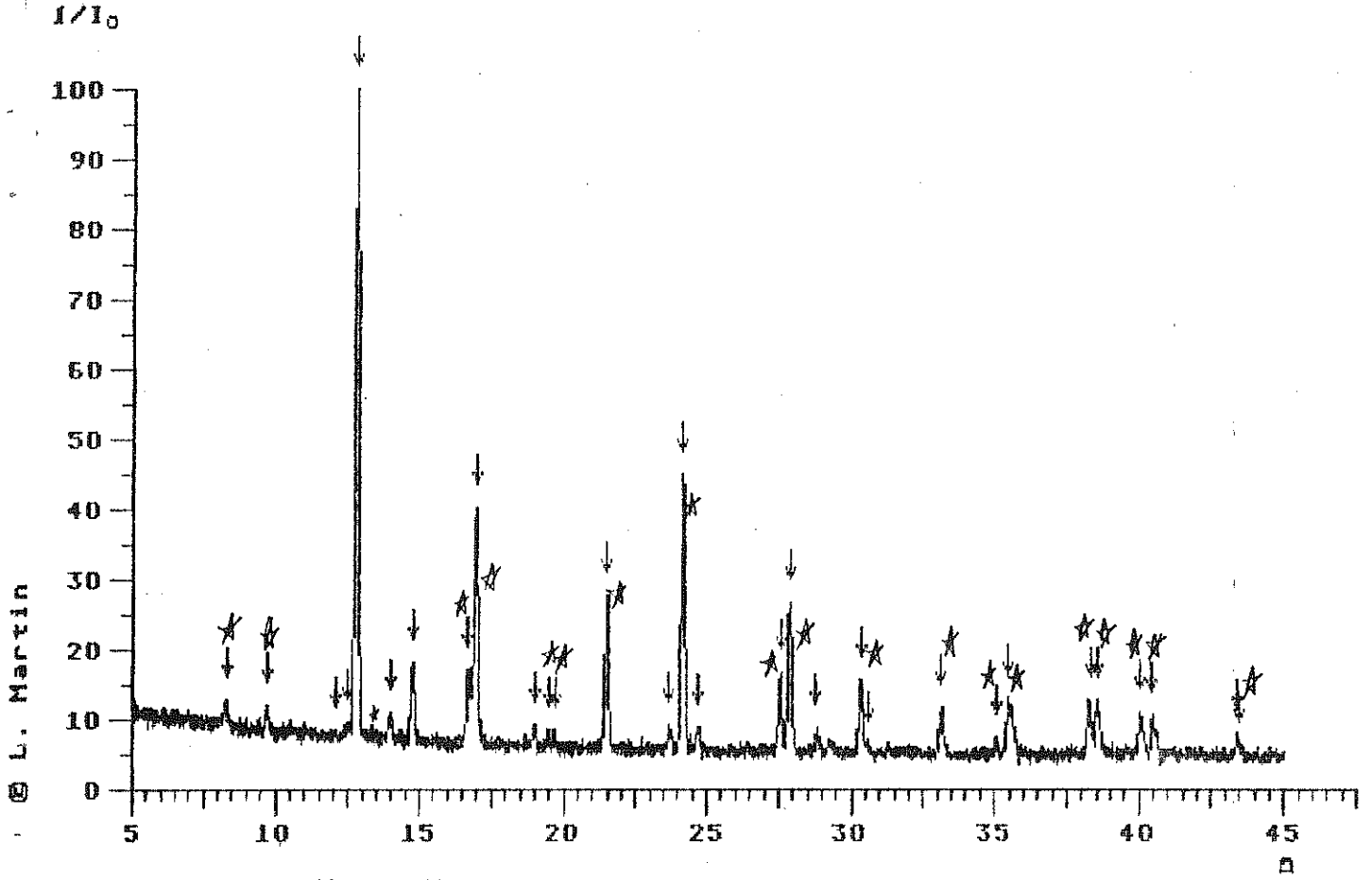
Nr.	h k l	rel.Int.	θ	2θ	d [Å]
1	7257	30.4	12.8366	25.6731	3.4672
2	1095	4.6	13.3444	26.6889	3.3375
3	7647	32.1	13.9924	27.9848	3.1858
4	23835	100.0	14.7696	29.5393	3.0216
5	324	1.4	16.5391	33.0783	2.7059
6	15697	65.8	16.8893	33.7786	2.6514
7	531	2.2	18.6667	37.3333	2.4067
8	2282	9.6	21.5111	43.0222	2.1007
9	401	1.7	23.4093	46.8186	1.9389
10	6080	25.5	23.7444	47.4889	1.9130
11	3037	12.7	24.2111	48.4222	1.8783
12	6430	27.0	24.7097	49.4193	1.8427
13	937	3.9	27.5954	55.1908	1.6629
14	4042	17.0	27.9475	55.8950	1.6436
15	6819	28.6	28.8459	57.6918	1.5966
16	3363	14.1	29.2769	58.5539	1.5752
17	628	2.6	30.3477	60.6954	1.5246
18	2389	10.0	30.5568	61.1136	1.5152
19	574	2.4	33.1623	66.3246	1.4082
20	1951	8.2	35.4317	70.8634	1.3287
21	1776	7.5	37.7222	75.4444	1.2590
22	564	2.4	38.2667	76.5333	1.2438
23	412	1.7	38.5340	77.0680	1.2365
24	462	1.9	38.8507	77.7014	1.2280
25	1438	6.0	39.6111	79.2222	1.2082
26	1012	4.2	39.9949	79.9898	1.1985
27	1369	5.7	40.5444	81.0889	1.1850
28	2316	9.7	41.0987	82.1974	1.1718
29	192	0.8	41.3772	82.7544	1.1653
30	1209	5.1	43.3222	86.6444	1.1227

Şekil-E2.17: x=0.75 bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri



Nr.	E Imp	rel.Int.	θ	2θ	d [Å]
1	1092	3.9	12.4111	24.8222	3.5840
2	9161	32.8	13.9614	27.9228	3.1927
3	27891	100.0	14.7325	29.4650	3.0290
4	751	2.7	16.4667	32.9333	2.7175
5	14777	53.0	16.8472	33.6944	2.6579
6	451	1.6	18.6009	37.2018	2.4149
7	303	1.1	21.3585	42.7170	2.1150
8	218	0.8	23.2743	46.5486	1.9495
9	363	1.3	23.3998	46.7997	1.9396
10	7344	26.3	23.6734	47.3467	1.9184
11	646	2.3	24.1333	48.2667	1.8840
12	8299	29.8	24.6043	49.2086	1.8445
13	2962	10.6	27.9244	55.8487	1.6449
14	9763	31.4	28.8294	57.6588	1.5975
15	4057	14.5	29.2266	58.4533	1.5776
16	3055	11.0	30.5332	61.0664	1.5162
17	1727	6.2	35.3667	70.7333	1.3308
18	1326	4.8	37.7111	75.4222	1.2593
19	859	3.1	38.8556	77.7111	1.2278
20	1173	4.2	39.5424	79.0849	1.2099
21	2493	8.9	39.9341	79.8682	1.2000
22	616	2.2	41.0275	82.0550	1.1735

Şekil-E2.18: x=0.77 bileşimli örneğin 24 saat ve 800 °C için toz deseni ve verileri



Nr.	Σ Imp	rel. Int.	θ	2θ	d [Å]
1	831	2.7	8.3079	16.6157	5.3311
2	848	2.8	9.6944	19.3889	4.5744
3	87	0.3	12.1155	24.2311	3.6701
4	2098	6.8	12.4556	24.9111	3.5715
5	30823	100.0	12.7956	25.5911	3.4781
6	1082	3.5	13.9892	27.9785	3.1865
7	3831	12.4	14.7370	29.4740	3.0281
8	3307	10.7	16.6871	33.3743	2.6826
9	12463	40.4	16.9495	33.8990	2.6423
10	1013	3.3	18.9778	37.9556	2.3687
11	924	3.0	19.4554	38.9109	2.3127
12	387	1.3	19.6792	39.3584	2.2874
13	7628	24.7	21.4595	42.9190	2.1055
14	826	2.7	23.6764	47.3528	1.9182
15	13012	42.2	24.1552	48.3103	1.8824
16	893	2.9	24.6842	49.3684	1.8445
17	3818	12.4	27.5581	55.1162	1.6650
18	8243	26.7	27.8938	55.7877	1.6465
19	920	3.0	28.8039	57.6079	1.5987
20	4029	13.1	30.3229	60.6458	1.5257
21	210	0.7	30.5993	61.1986	1.5133
22	2382	7.7	33.1025	66.2050	1.4104
23	588	1.9	35.0444	70.0889	1.3415
24	3943	12.8	35.4667	70.9333	1.3276
25	2929	9.5	38.2592	76.5185	1.2440
26	3060	9.9	38.5162	77.0325	1.2370
27	2441	7.9	40.0455	80.0909	1.1972
28	2354	7.6	40.4480	80.8959	1.1873
29	812	2.6	43.4098	86.8196	1.1209
30	320	1.0	43.5190	87.0380	1.1167

EK-3

Şekil-E3.1: $x=0.818$ bileşimli örneğin 48 saat ve 650 °C için
toz deseni ve verileri

Şekil-E3.2: $x=0.857$ bileşimli örneğin 24 saat ve 650 °C için
toz deseni ve verileri

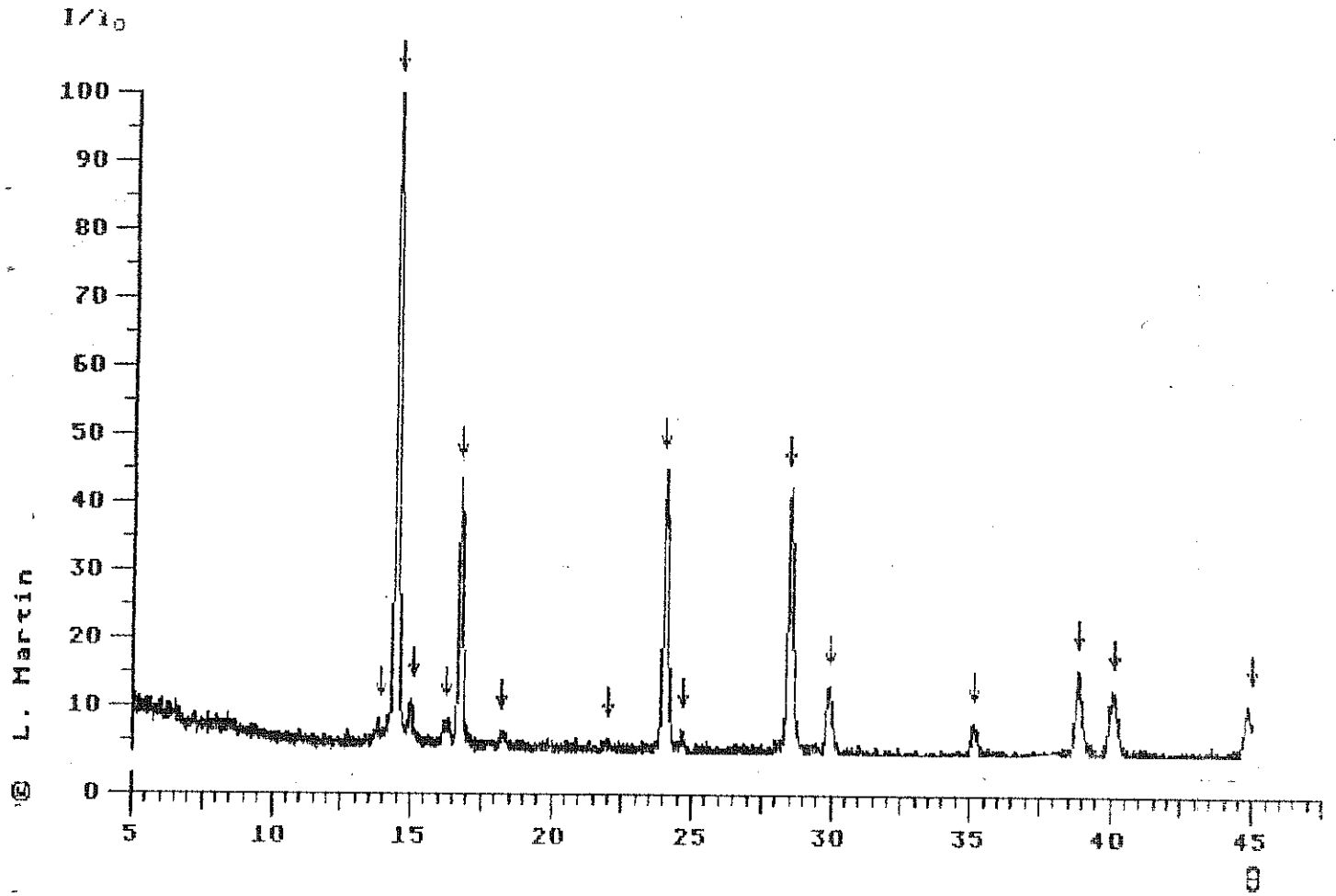
Şekil-E3.3: $x=0.87$ bileşimli örneğin 48 saat ve 650 °C için
toz deseni ve verileri

Şekil-E3.4: $x=0.875$ bileşimli örneğin 48 saat ve 650 °C için
toz deseni ve verileri

Şekil-E3.5: $x=0.88$ bileşimli örneğin 48 saat ve 650 °C için
toz deseni ve verileri

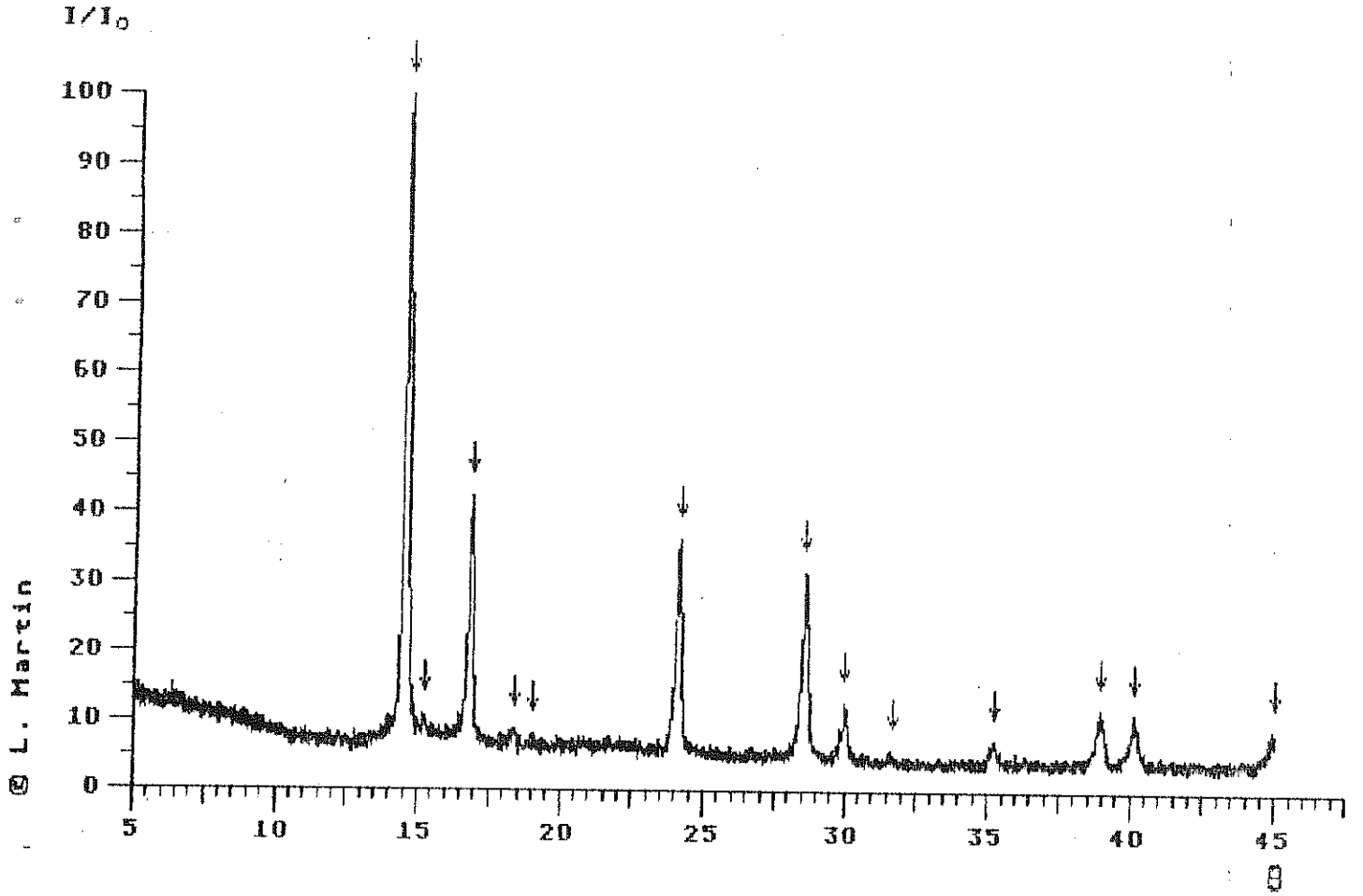
Şekil-E3.6: $x=0.9$ bileşimli örneğin 48 saat ve 650 °C için
toz deseni ve verileri

Şekil-E3.1: $x=0.818$ bileşimli örneğin 48 saat ve 650 °C için toz deseni ve verileri

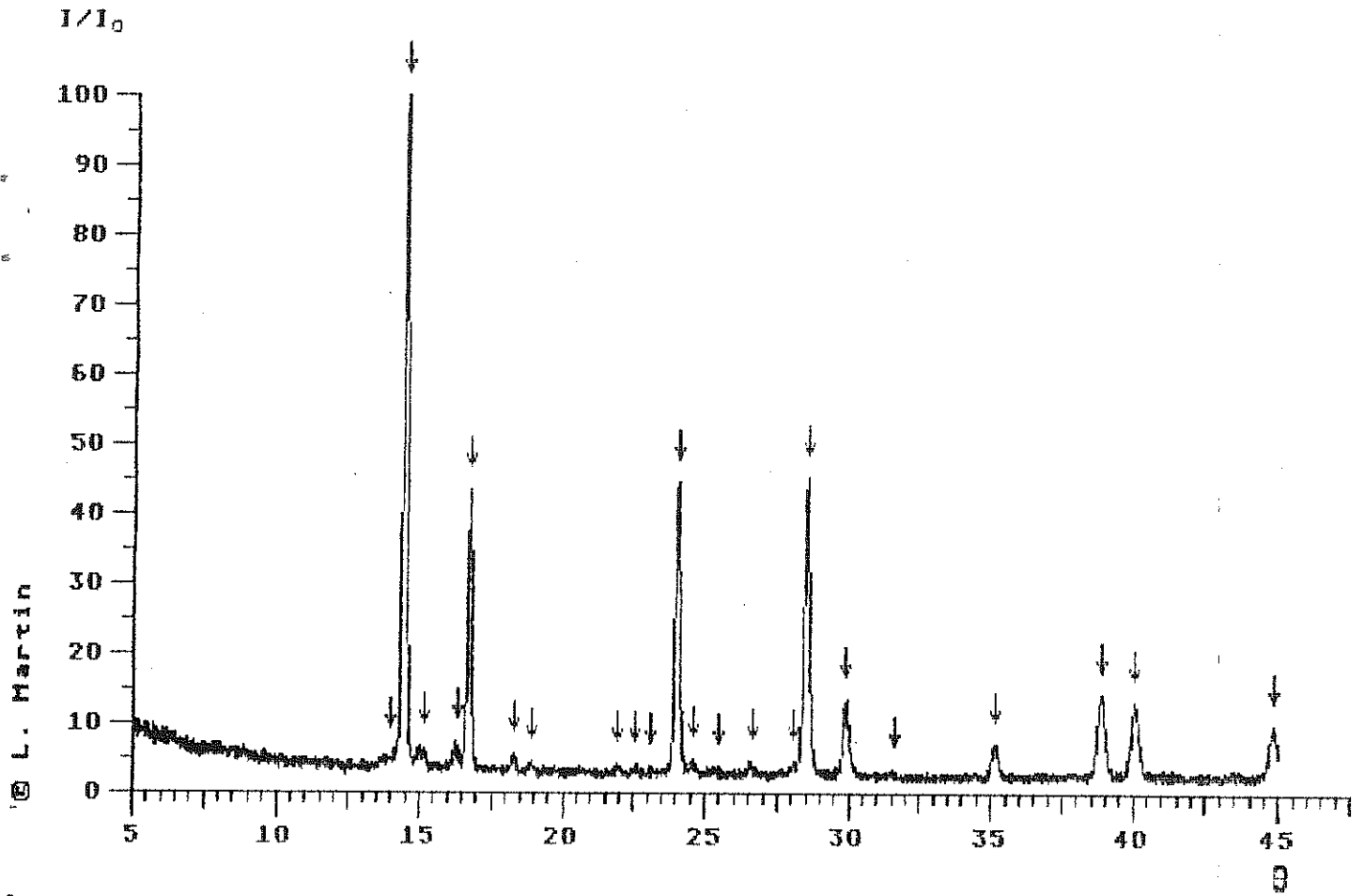


Int.	I/I_0	θ_{obs}	$\sin^2\theta_{obs}$	h	k	l	d_{obs}
154.6	4.0	13.8796	0.0575	2	3	1	3.2112
3841.0	100.0	14.4222	0.0620	0	0	3	3.0928
250.7	6.5	15.0926	0.0678	4	0	-2	2.9584
223.4	5.8	16.2778	0.0786	3	0	-3	2.7482
1448.3	37.7	16.7000	0.0826	3	1	-3	2.6806
336.0	8.7	18.2000	0.0976	2	4	-2	2.4663
132.1	3.4	22.0000	0.1403	4	0	-4	2.0563
1831.4	47.7	24.0000	0.1654	2	5	-3	1.8939
48.0	1.2	24.6556	0.1740	0	4	4	1.8465
1898.7	49.4	28.4889	0.2275	5	4	-4	1.6149
437.3	11.4	29.9111	0.2487	4	4	4	1.5448
192.1	5.0	35.1667	0.3317	9	2	2	1.3374
669.4	17.4	38.0333	0.3932	11	0	0	1.2284
612.3	15.9	40.0667	0.4143	5	7	-5	1.1967
154.7	4.0	44.9778	0.4996	1	8	-6	1.0898

Şekil-E3.2: $x=0.857$ bileşimli örneğin 24 saat ve 650 °C için toz deseni ve verileri

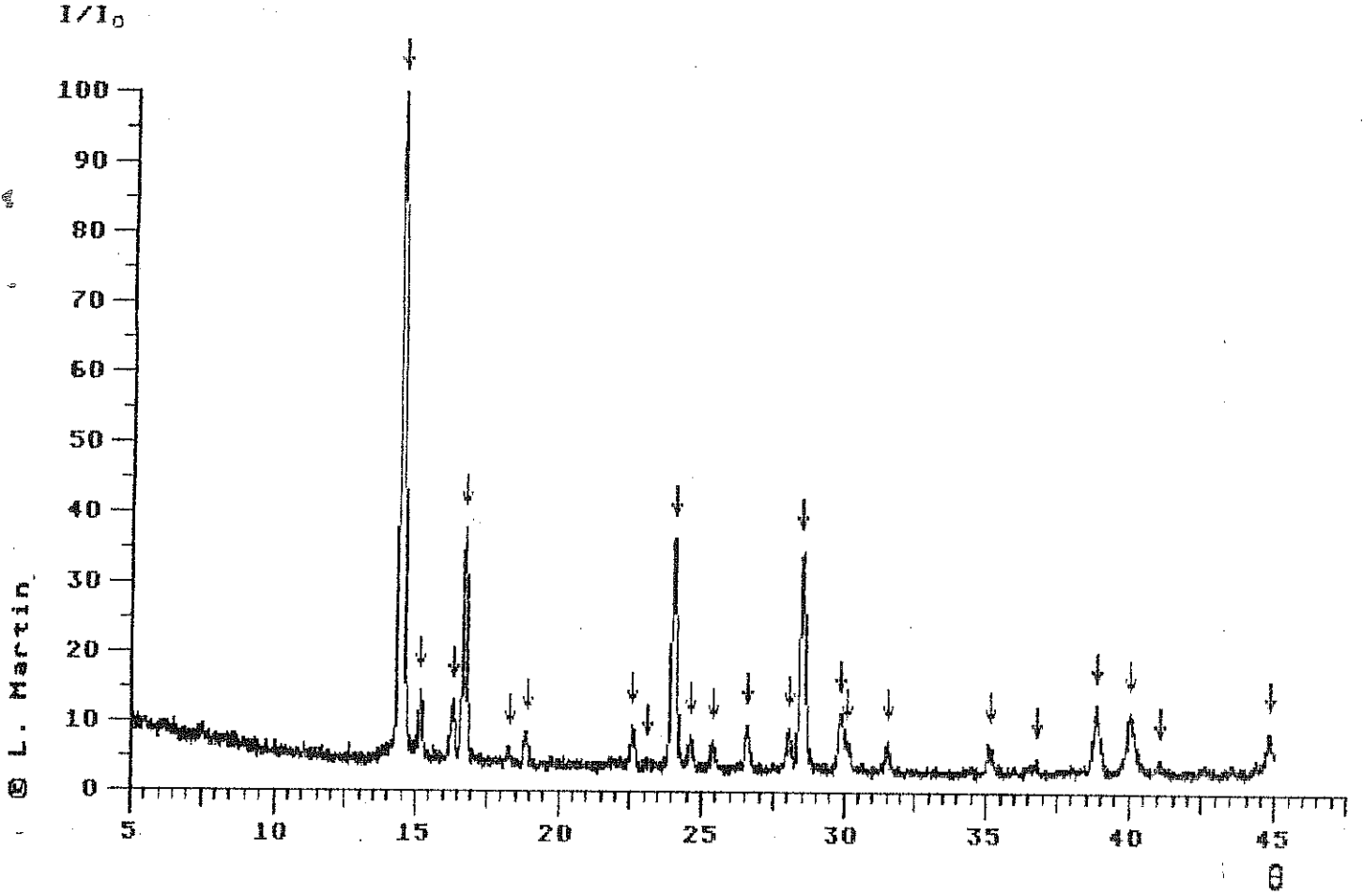


Şekil-E3.3: $x=0.87$ bileşimli örneğin 48 saat ve 650 °C için toz deseni ve verileri



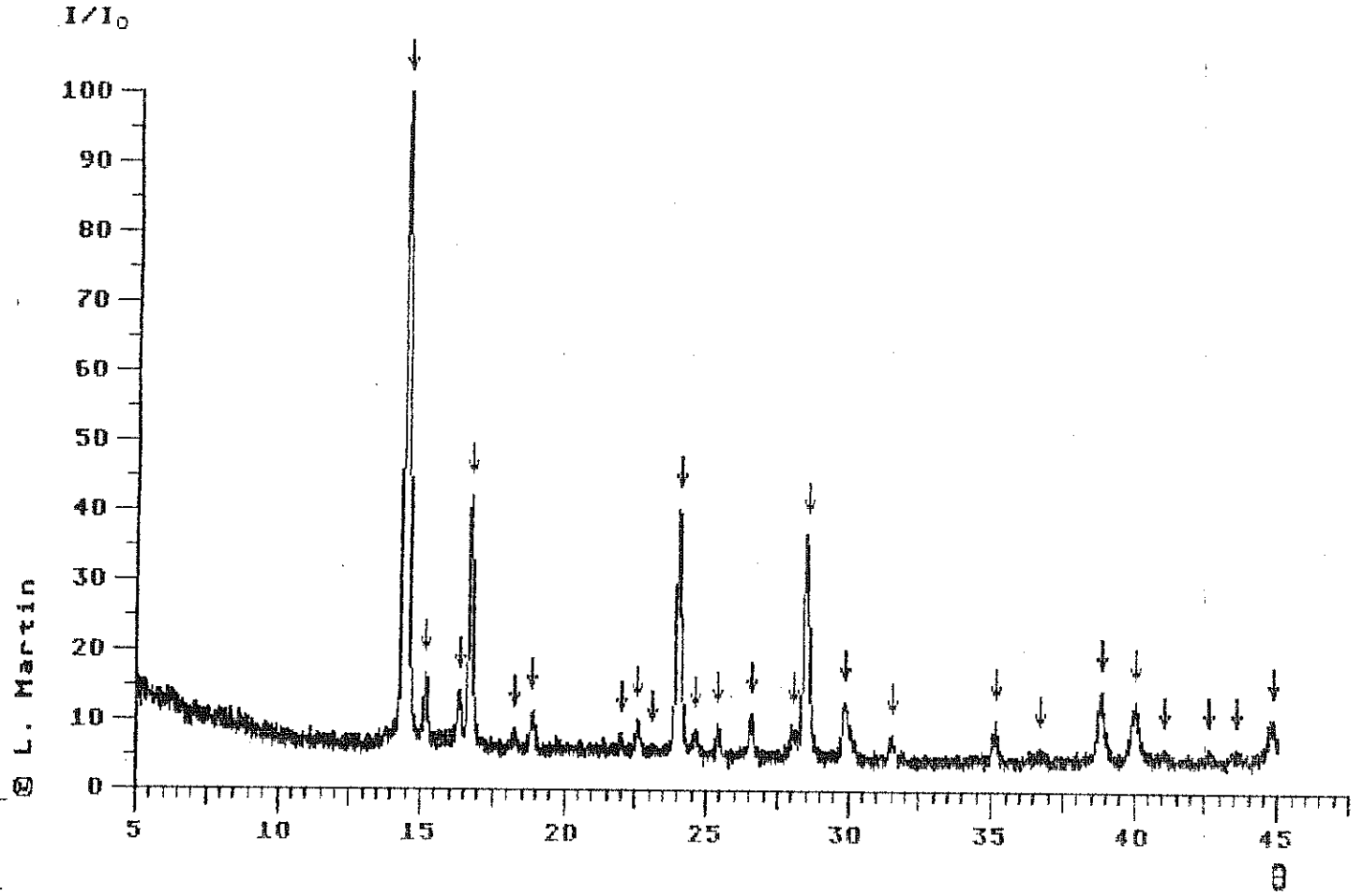
Int.	I/I ₀	θ_{obs}	$\sin^2\theta_{obs}$	h	k	l	d_{obs}
139.6	3.4	13.9444	0.0581	2	3	1	3.1965
4129.8	100.0	14.4370	0.0622	0	0	3	3.0897
212.2	5.1	15.1759	0.0685	4	0	-2	2.9425
125.0	3.0	16.3296	0.0791	3	0	-3	2.7397
1688.5	40.9	16.7315	0.0829	3	1	-3	2.6757
72.7	1.8	18.2741	0.0983	2	4	-2	2.4566
125.1	3.0	18.8944	0.1049	1	3	3	2.3788
28.8	0.7	21.9333	0.1395	3	3	3	2.0622
57.6	1.4	22.5667	0.1473	3	5	-2	2.0073
69.0	1.7	23.0685	0.1535	4	4	2	1.9659
2049.7	49.6	24.0222	0.1657	2	5	-3	1.8922
112.1	2.7	24.6222	0.1736	0	4	4	1.8489
84.6	2.0	25.4519	0.1847	4	0	4	1.7924
79.7	1.9	26.6056	0.2006	4	2	4	1.7200
62.9	1.5	28.0444	0.2210	5	5	2	1.6384
2193.0	53.1	28.5111	0.2278	5	4	-4	1.6138
555.4	13.5	29.8593	0.2479	4	4	4	1.5472
64.1	1.6	31.6000	0.2746	5	7	-1	1.4701
266.7	6.5	33.1717	0.3318	9	2	2	1.3373
833.4	20.2	38.8437	0.3934	11	0	0	1.2282
743.0	18.0	40.0249	0.4136	5	7	-5	1.1978
211.7	5.1	44.8218	0.4969	1	8	-6	1.0928

Şekil-E3.4: $x=0.875$ bileşimli örneğin 48 saat ve 650 °C için toz deseni ve verileri



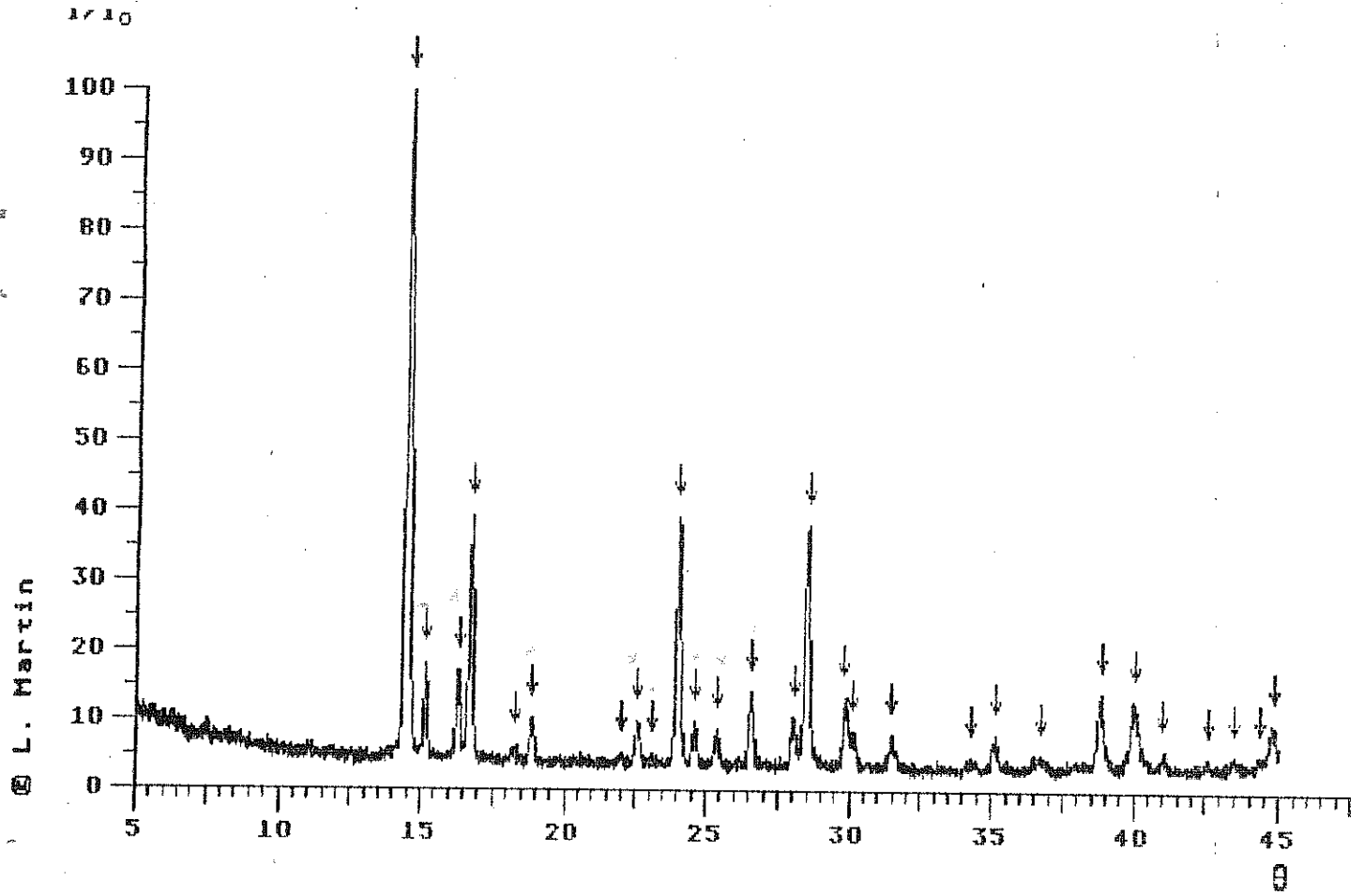
Int.	I/I ₀	θ_{obs}	$\sin^2\theta_{obs}$	h	k	l	d _{obs}
4945.1	100.0	14.4222	0.0620	0	0	3	3.0928
288.4	5.8	15.1667	0.0684	4	0	-2	2.9443
341.2	6.9	16.3111	0.0789	3	0	-3	2.7427
1477.3	29.9	16.7222	0.0828	3	1	-3	2.6771
55.8	1.1	18.2778	0.0984	2	4	-2	2.4561
191.5	3.9	18.9000	0.1049	1	3	3	2.3781
221.8	4.5	22.5889	0.1475	3	5	-2	2.0054
103.1	2.1	23.0989	0.1539	4	4	2	1.9643
1660.0	33.6	24.0333	0.1659	2	5	-3	1.8914
146.8	3.0	24.6222	0.1736	0	4	4	1.8489
143.8	2.9	25.4000	0.1840	4	0	4	1.7958
262.3	5.3	26.5667	0.2000	4	2	4	1.7223
253.6	5.1	28.0778	0.2215	5	5	2	1.6366
1750.3	35.4	28.4889	0.2275	5	4	-4	1.6149
434.5	8.8	29.8333	0.2475	4	4	4	1.5484
105.9	2.1	30.1444	0.2522	0	1	6	1.5339
246.3	5.0	31.5111	0.2732	3	7	-3	1.4738
225.8	4.6	35.1315	0.3311	9	2	2	1.3386
143.4	2.9	36.7630	0.3582	5	7	3	1.2870
608.2	12.3	38.9278	0.3931	11	0	0	1.2286
486.7	9.8	40.0333	0.4137	5	7	-5	1.1975
95.3	1.9	41.0222	0.4308	1	5	-7	1.1736
230.8	4.7	44.8333	0.4971	1	8	-6	1.0926

Şekil-E3.5: $x=0.88$ bileşimli örneğin 48 saat ve 650 °C için toz deseni ve verileri



Int.	I/I_0	θ_{obs}	$\sin^2\theta_{obs}$	h	k	l	d_{obs}
3663.4	100.0	14.4111	0.0619	0	0	3	3.0951
207.3	5.7	15.1667	0.0684	4	0	-2	2.9443
181.9	5.0	16.3111	0.0789	3	0	-3	2.7427
1122.8	30.6	16.7222	0.0828	3	1	-3	2.6771
103.6	2.9	18.2556	0.0981	2	4	-2	2.4590
138.4	3.8	18.8889	0.1048	1	3	3	2.3794
86.0	2.3	22.0111	0.1405	4	0	-4	2.0553
114.5	3.1	22.5667	0.1473	3	5	-2	2.0073
72.3	2.0	23.0667	0.1535	4	4	2	1.9660
1263.1	34.5	24.0111	0.1656	2	5	-3	1.8930
78.1	2.1	24.6219	0.1736	0	4	4	1.8489
95.0	2.6	25.4111	0.1841	4	0	4	1.7951
144.9	4.0	26.5556	0.1999	4	2	4	1.7230
68.0	1.9	28.0444	0.2210	5	5	2	1.6384
1298.2	35.4	28.5000	0.2277	5	4	-4	1.6143
216.5	5.9	29.8444	0.2477	4	4	4	1.5479
101.4	2.8	31.4889	0.2728	3	7	-3	1.4747
137.3	3.7	35.1180	0.3309	9	2	2	1.3390
132.7	3.6	36.7444	0.3579	5	7	3	1.2876
383.7	10.5	38.8333	0.3932	11	0	0	1.2284
375.9	10.3	40.0444	0.4139	5	7	-5	1.1973
40.4	1.1	41.0778	0.4318	1	5	-7	1.1723
117.2	3.2	42.6444	0.4589	12	0	-1	1.1371
114.7	3.1	43.5889	0.4754	1	6	-7	1.1172
240.2	6.6	44.8444	0.4973	1	8	-6	1.0923

Şekil-E3.6: x=0.9 bileşimli örneğin 48 saat ve 650 °C için toz-deseni ve verileri



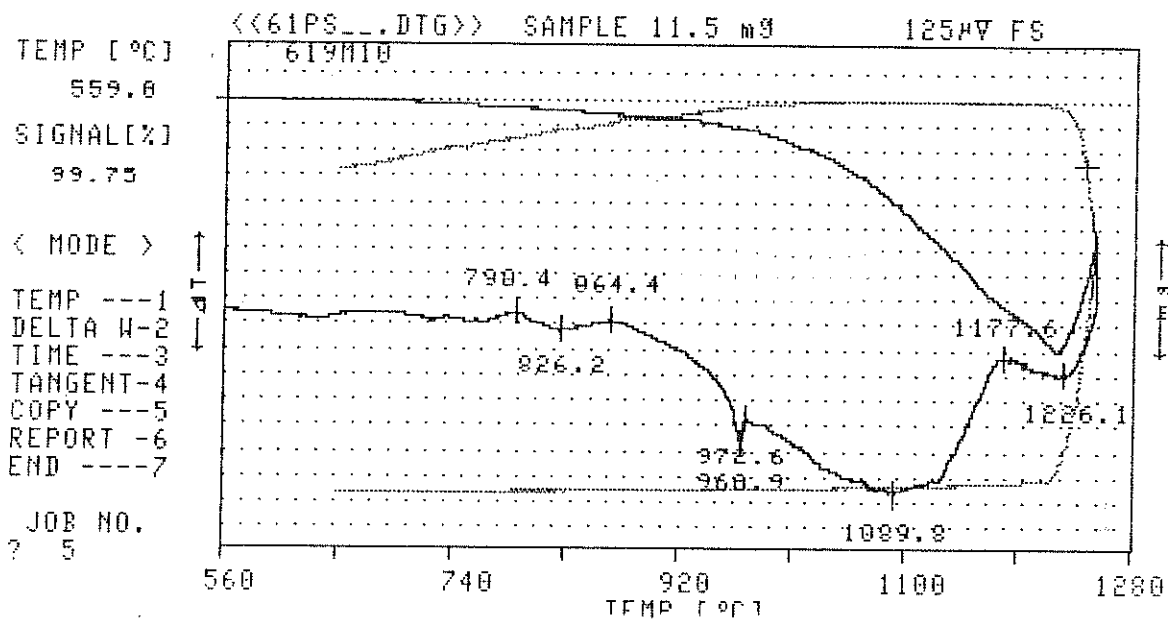
Int.	I/I₀	θ_{obs}	$\sin^2\theta_{obs}$	h	k	l	d_{obs}
4456.7	100.0	14.4111	0.0619	0	0	3	3.0951
367.0	8.2	15.1778	0.0685	4	0	-2	2.9422 *
430.6	9.7	16.3111	0.0789	3	0	-3	2.7427 *
1226.0	27.5	16.7111	0.0827	3	1	-3	2.6789
51.3	1.2	18.2778	0.0984	2	4	-2	2.4561
234.6	5.3	18.8778	0.1047	1	3	3	2.3809 *
83.0	1.9	22.0000	0.1403	4	0	-4	2.0563
234.2	5.3	22.5778	0.1474	3	5	-2	2.0063 *
112.7	2.5	23.0778	0.1536	4	4	2	1.9651 *
1459.4	32.7	24.0000	0.1654	2	5	-3	1.8939
211.3	4.7	24.6111	0.1734	0	4	4	1.8497 *
167.0	3.7	25.3889	0.1838	4	0	4	1.7966 *
329.7	7.4	26.5444	0.1997	4	2	4	1.7237 *
239.2	5.4	28.0556	0.2212	5	5	2	1.6378
1502.3	33.7	28.4735	0.2276	5	4	-4	1.6147
395.1	8.9	29.8222	0.2473	4	4	4	1.5489
184.7	4.1	30.1161	0.2518	0	1	6	1.5352
188.3	4.2	31.4778	0.2727	3	7	-3	1.4752
92.8	2.1	34.3000	0.3176	5	5	4	1.3669
185.5	4.2	35.1333	0.3312	9	2	2	1.3385
191.8	4.3	36.7000	0.3572	5	7	3	1.2889
503.8	11.3	38.8261	0.3931	11	0	0	1.2286
529.9	11.9	39.9954	0.4131	5	7	-5	1.1985
54.2	1.2	40.9889	0.4302	1	5	-7	1.1744
11.6	0.3	42.6111	0.4584	12	0	-1	1.1378
54.7	1.2	43.5000	0.4738	1	6	-7	1.1190
38.8	0.9	44.3444	0.4886	10	6	-3	1.1021
261.8	5.9	44.7889	0.4963	1	8	-6	1.0934

EK-4

Şekil-E4.1: $\text{Pb}_4\text{Sb}_2\text{O}_{11}$ bileşiğinin DTA/TG Diyagramı

Şekil-E4.2: $4\text{PbO} \cdot \text{Sb}_2\text{O}_3$ bileşiğinin DTA/TG Diyagramı

Şekil-E4.3: $7\text{PbO} \cdot \text{Sb}_2\text{O}_3$ bileşiğinin DTA/TG Diyagramı



Şekil-E4.1: x=0.857 bileşiğinin DTA/TG Diyagramı

<<41650_.DTG>> SAMPLE 10.2 m9

TEMP [°C]

791.6

SIGNAL[%]

94.34

< MODE >

TEMP ---1

DELTA W-2

TIME ---3

TANGENT-4

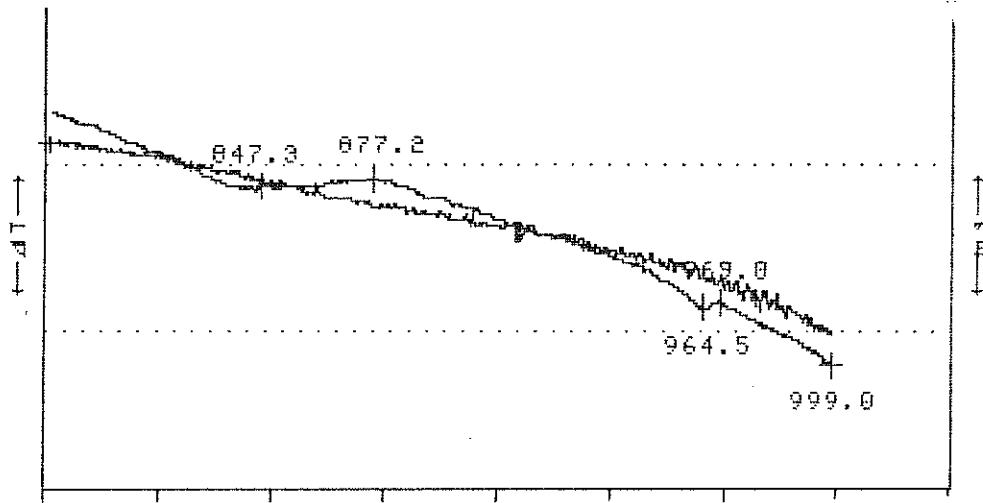
COPY ---5

REPORT -6

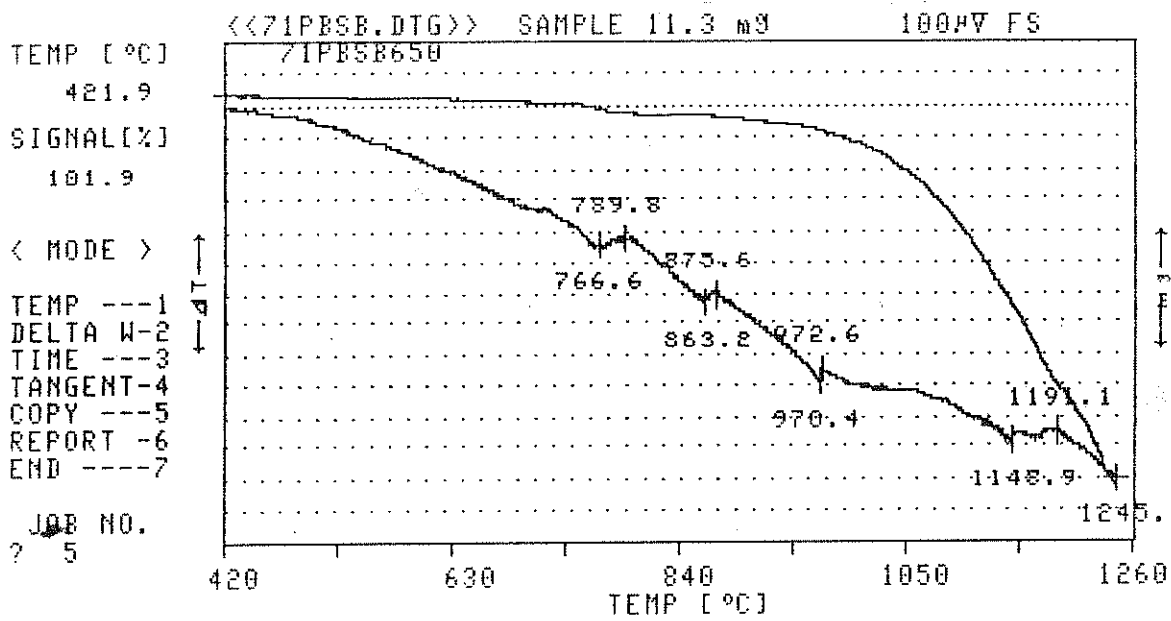
END ----7

JOB NO.

? 5



Şekil-E4.2: x=0.8 bileşiğinin DTA/TG Diyagramı



Şekil-E4.3: x=0.875 bileşiğinin DTA/TG Diyagramı