

M. ÖNCAN, 2023



T.C.

NİĞDE ÖMER HALİSDEMİR ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ
FİZİK ANABİLİM DALI

DOKTORA TEZİ

KALSİT, ASİDİK KIRMIZI-45 VE ANİLİN HALOJENÜR KATKILI
HİDROJELLERİN ELEKTRO-OPTİK ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ

NİĞDE ÖMER HALİSDEMİR ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

MEHMET ÖNCAN

HAZİRAN 2023

T.C.
NİĞDE ÖMER HALİSDEMİR ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ
FİZİK ANABİLİM DALI

KALSİT, ASİDİK KIRMIZI-45 VE ANİLİN HALOJENÜR KATKILI
HİDROJELLERİN ELEKTRO-OPTİK ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ

MEHMET ÖNCAN

Doktora Tezi

Danışman
Prof. Dr. Orhan YALÇIN

Haziran 2023

Mehmet ÖNCAN tarafından **Prof. Dr. Orhan YALÇIN** danışmanlığında hazırlanan **‘Kalsit, Asidik Kırmızı-45 ve Anilin Halojenür Katkılı Hidrojellerin Elektro-Optik Özelliklerinin İncelenmesi’** adlı bu çalışma jürimiz tarafından Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü **Fizik** Anabilim Dalı’nda Doktora tezi olarak kabul edilmiştir.

Başkan : Doç. Dr. Ahmet DEMİR, Düzce Üniversitesi

Üye : Prof. Dr. Orhan YALÇIN, Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi

Üye : Doç. Dr. Songül ÖZÜM, Hitit Üniversitesi

Üye : Doç. Dr. Muhittin ÖZTÜRK, Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi

Üye : Dr. Öğr. Üyesi Ömer GÖRGÜLÜER, Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi

ONAY:

Bu tez, Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulunca belirlenmiş olan yukarıdaki jüri üyeleri tarafından/....../2023 tarihinde uygun görülmüş ve Enstitü Yönetim Kurulu’nun/....../2023 tarih ve sayılı kararıyla kabul edilmiştir.

....../....../20..

Prof. Dr. Mustafa KARATEPE
MÜDÜR V.

TEZ BİLDİRİMİ

Tez içindeki bütün bilgilerin bilimsel ve akademik kurallar çerçevesinde elde edilerek sunulduğunu, ayrıca tez yazım kurallarına uygun olarak hazırlanan bu çalışmada bana ait olmayan her türlü ifade ve bilginin kaynağına eksiksiz atıf yapıldığını bildiririm.

Mehmet ÖNCAN



ÖZET

KALSİT, ASİDİK KIRMIZI-45 VE ANİLİN HALOJENÜR KATKILI HİDROJELLERİN ELEKTRO-OPTİK ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ

ÖNCAN, Mehmet

Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi

Fen Bilimleri Enstitüsü

Fizik Anabilim Dalı

Danışman : Prof. Dr. Orhan YALÇIN

Haziran 2023, 104 sayfa

Bu tez çalışmasında kalsit, asidik kırmızı-45, anilin halojenür katkılı hidrojeller sentezlendi. Bütün numunelerin yapısal, morfolojik, dielektrik, optik ve iletkenlik özellikleri teknolojik uygulamalardaki kullanılabilirliklerini belirlemek için incelendi. Bu amaçla bütün numunelerinin X-ışını kırınımı, taramalı elektron mikroskobu, enerji dağılımlı X-ışını, dielektrik ve UV-Vis spektroskopisi ölçümleri yapıldı. Bütün numunelerin dielektrik karakteristiğinin, düşük frekans bölgesinde elektrot ve arayüz polarizasyonu ile bağlantılı Maxwell-Wagner teorisi ile uyumlu olduğu bulundu. Yüksek frekans bölgesinde Koop teorisi ve Brownian hareketinin numunelerin iletkenlik mekanizmasında etkin olduğu belirlendi. KI, KII, AK-45, anilin ve anilin halojenür katkılı hidrojellerin hangi gevşeme modelleri ile uyumlu olduğu belirlendi. KI, KII ve AK-45 boya katkılı hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün düzlem grafiklerinin, anilin halojenür katkılı hidrojellerin ise karmaşık dielektrik sabitinin düzlem grafiklerinin farklı eşdeğer RC devrelerine karşılık geldiği görüldü. Böylece, katkılı hidrojellerin üretim sürecinin elektronik devre uygulamalarında son derece önemli olduğu tespit edildi.

Anahtar Sözcükler: Hidrojeller, Kalsit, İyonik boyalar, Dielektrik özellikler, Empedans spektroskopisi, Brown hareketi, Cole-Cole diyagramı

SUMMARY

INVESTIGATION OF THE ELECTRO-OPTICAL PROPERTIES OF CALCITE, ACETIC RED-45 AND ANILINE HALIDES LOADED HYDROGELS

ÖNCAN, Mehmet

Niğde Ömer Halisdemir University

Graduate School of Natural and Applied Sciences

Department of Physics

Supervisor : Prof. Dr. Orhan YALÇIN

June 2023, 104 pages

In this thesis work, calcite, acidic red-45, aniline halide doped hydrogels were synthesized. Structural, morphological, dielectrical, optical and conductivity properties of all samples were examined to determine their usage in technological applications. For this purpose, X-ray diffraction, scanning electron microscopy, energy dispersive X-ray, dielectric and UV-Vis spectroscopy measurements of all samples were performed. It was found that dielectric characteristic of all samples behaved in accordance with the Maxwell-Wagner theory associated with electrode and interface polarization in low frequency region. It has been determined that Koop theory and Brownian motion have an effect on conductivity mechanism of samples in the high frequency region. It was determined which relaxation models are compatible with CI, CII, AR-45, aniline halide doped hydrogels. It was determined plane plots of the complex electrical modulus of CI, CII and AR-45 dye doped/imprinted hydrogels, and plane plots of the complex dielectric constant of aniline and aniline halide imprinted hydrogels correspond to different equivalent RC circuits. Thus, it has been determined that production process of doped hydrogels is extremely important in electronic circuit applications.

Keywords: Hydrogels, Calcite, Ionic dyes, Dielectric properties, Impedance spectroscopy, Brownian motion, Cole-Cole diagram

ÖN SÖZ

Bu doktora tezinde, son zamanlarda bilim dünyasında ilgi gören hidrojeller, radikalik katılım polimerizasyon tekniği kullanılarak sentezlendi. Kalsit, asidik kırmızı-45 boya ve anilin ve anilin halojenür boya katkıları olarak sentezlenen bu hidrojel örneklerin dielektrik özellikleri empedans spektroskopisi tekniği ile incelendi. Bu numunelerin morfolojik karakterizasyonu Taramalı Elektron Mikroskop (TEM) tekniği ile elde edildi. X-ışını kırınım (XRD) yöntemi ile malzemelerin kristallografik yapısı, enerji dağılımlı X-ışını (EDX) spektrometresi ile elementel analizi yapıldı. Hem kalsit hem de asidik kırmızı-45 boya ve anilin ve anilin halojenür boya katkıları hidrojel numunelerinin karmaşık dielektrik sabiti, elektrik modülü ve empedansın Cole-Cole grafiklerinin eş zamanlı gözlemlenmesi nedeniyle opto-elektronik cihazlarda çok işlevli olarak kullanılabilmesi belirlenmiştir.

Çalışmalarına yön veren, doktora eğitimi süresince araştırmalarımın her aşamasında tüm bilgilerini benimle paylaşmaktan kaçınmayan, her türlü konuda yardım ve desteğini esirgemeyerek akademik ortamda olduğu kadar insan ilişkilerinde de engin fikirleriyle yetişmemde emeği olan hakkını hiçbir zaman ödeyemeyeceğim çok değerli danışman hocam sayın Prof. Dr. Orhan YALÇIN'a teşekkür ediyorum.

Tez çalışmam süresince hidrojellerin sentezlenmesi aşamasında büyük destek veren Bozok Üniversitesi Kimya Bölümü öğretim üyesi sayın Prof. Dr. Ramazan COŞKUN ve üretilen numunelerin Empedans Analizör ölçümlerinde yardımını hiçbir zaman esirgemeyen Siegen Üniversitesi Yüksek Frekans ve Kuantum Elektronik Enstitüsü Fizik Bölümü öğretim üyesi sayın Prof. Dr. Mustafa OKUTAN hocalarıma sonsuz teşekkür ediyorum.

Doktora tez çalışmam esnasında tecrübelerine başvurduğum, çalışmamın her aşamasında çok değerli fikirlerini esirgemeyen, verilerin analizi ve yorumlanmasında her zaman desteğini gördüğüm, tecrübeleriyle tezin oluşmasında önemli bir payı olan değerli tez izleme komitesi üyelerimden sayın Doç. Dr. Muhittin ÖZTÜRK'e müteşekkirim olduğumu ifade etmek isterim. Ayrıca, çalışma süresince desteklerini esirgemeyen tezimin değerli izleme komitesi üyelerinden Hitit Üniversitesi Alaca Avni Çelik Meslek Yüksekokulu

Elektronik ve Otomasyon Bölümü/Elektronik Haberleşme Teknolojisi Programı Öğretim üyesi sayın Doç. Dr. Songül ÖZÜM'e de ayrıca teşekkür etmek istiyorum.

Maddi ve manevi desteklerini benden esirgemeyen, hep yanımda olan, çalışmalarım süresince beni her zaman destekleyen ve bana güvenen annem Gülseren ÖNCAN ve babam Ali ÖNCAN'a en kalbi teşekkürlerimi sunarım.

Doktora tez çalışmamı en başından sonuna kadar enerjimin ve vaktimin önemli bir kısmını bu doğrultuda harcamama rağmen gerekli her türlü fedakârlığı ve sabrı gösteren, ne zaman yorulduğumu hissetMEM sıkılmadan derdimi dinleyen, moral ve motivasyonları ile her aşamada, her koşulda ve her konuda yanımda olan, hayatımın her aşamasında en büyük yardımcım ve destekçim, yol arkadaşım Emine ÖNCAN'a ithaf ediyorum.

İÇİNDEKİLER

ÖZET.....	iv
SUMMARY.....	v
ÖN SÖZ.....	vi
İÇİNDEKİLER.....	viii
ÇİZELGELER DİZİNİ.....	x
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	xi
FOTOĞRAFLAR DİZİNİ.....	xiv
SİMGE VE KISALTMALAR.....	xv
BÖLÜM I GİRİŞ.....	1
BÖLÜM II GENEL BİLGİLER.....	10
2.1 Dielektrik Malzeme.....	10
2.2 Dielektrik Özellikler.....	12
2.3 Empedans Özellikleri.....	16
2.4 Elektrik Modül Özellikleri.....	18
2.5 Optik Özellikler.....	19
2.6 Kutuplanma Mekanizmaları.....	20
2.6.1 Elektronik kutuplanma.....	21
2.6.2 Atomik kutuplanma.....	21
2.6.3 İyonik kutuplanma.....	21
2.6.4 Yönelme kutuplanması.....	22
2.6.5 Arayüzey-Uzay yük kutuplanması.....	22
2.7 Dielektrik Durulma Mekanizmaları.....	23
2.7.1 Cole-Cole durulma modeli.....	24
2.7.2 Debye durulma modeli.....	25
2.7.3 Cole-Davidson durulma modeli.....	26
2.7.4 Havriliak-Negami durulma modeli.....	27
2.8 Smith chart (Smith abağı).....	28

BÖLÜM III DENEYSEL KISIM	31
3.1 Saf Hidrojel Sentezi ve Kalsit Depolama	31
3.2 Hidrojellere Anyonik Boya Depolama	32
3.3 Hidrojellere Anilin ve Anilin Halojenür Depolama	32
3.4 Ölçüm Yöntemi.....	33
3.5 Kullanılan Deneysel Yöntemler.....	33
3.5.1 X-ışını kırınımı mikroskobu (XRD) analizi.....	33
3.5.2 Taramalı elektron mikroskobu (TEM) analizi.....	34
3.5.3 EDX (Enerji Dağılımlı X-ışını) analizi	35
3.5.4 Empedans spektroskopisi (ES) analizi	35
BÖLÜM IV DENEYSEL SONUÇLAR VE TARTIŞMA.....	37
4.1 X-ışını Kırınımı Mikroskobu (XRD) Analizi.....	37
4.2 Taramalı Elektron Mikroskobu (TEM) Analizi.....	38
4.3 Enerji Dağılımlı X-ışını (EDX) Spektroskopisi Analizi.....	40
4.4 Kalsit Katkılı Hidrojellerin Empedans Spektroskopisi Analizi.....	42
4.5 Asidik Kırmızı-45 Boya Katkılı Hidrojellerin Empedans Spektroskopisi Analizi	58
4.6 Anilin ve Anilin Halojenürler Katkılı Hidrojellerin Empedans Spektroskopisi Analizi	70
BÖLÜM V SONUÇ VE TARTIŞMA	83
5.1 Kalsit Katkılı Hidrojeller İçin Sonuç ve Tartışma	83
5.2 Asidik Kırmızı Boya (AK-45) Katkılı Hidrojeller İçin Sonuç ve Tartışma	84
5.3. Anilin ve Anilin Halojenür Boyaları Katkılı Hidrojeller İçin Sonuç ve Tartışma	84
KAYNAKLAR	87
ÖZ GEÇMİŞ.....	104
TEZ ÇALIŞMASINDAN ÜRETİLEN ESERLER	105

ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 2.1. “s” parametrelerine bağlı olarak oluşan iletkenlik mekanizmaları	14
Çizelge 4.1. Farklı proseslerle üretilen kalsit katkılı hidrojenlerin farklı bölgelerdeki s parametre değerleri.....	56
Çizelge 4.2. Farklı dozlarda AK-45 boya katkılı hidrojenlerin dielektrik parametreleri	61
Çizelge 4.3. Farklı derişimlerde AK-45 boya yüklü hidrojenlerin iletkenlik parametreleri	67
Çizelge 4.4. Anilin ve anilin halojenürler boya katkılı hidrojenlerin iletkenlik parametreleri	80
Çizelge 4.5. Oda sıcaklığında anilin ve anilin halojenür serisi numuneler için dielektrik parametreleri	80

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 2.1. Karmaşık empedans düzleminin grafiksel gösterimi	17
Şekil 2.2. Frekansa bağlı dielektrik kutuplanma çeşitleri.....	20
Şekil 2.3. Elektronik kutuplanma şematik gösterimi.....	21
Şekil 2.4. Tek durulma zamanlı karmaşık dielektrik sabit için için Cole-Cole çizgileri.....	24
Şekil 2.5. Cole-Davidson modelinin şematik çizimi	26
Şekil 2.6. Smith chart (Smith abağı).....	29
Şekil 4.1. 50 mg/L KI (a), AK5 (b) ve An (c) katkılı hidrojellerin XRD desenleri.....	37
Şekil 4.2. KI katkılı hidrojeller için seçilen alan l'in EDX modellerinin şematik gösterimi	40
Şekil 4.3. AK5 boya katkılı hidrojeller için seçilen alan l'in EDX modellerinin şematik gösterimi	41
Şekil 4.4. An boya katkılı hidrojeller için seçilen alan l'in EDX modellerinin şematik gösterimi	42
Şekil 4.5. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin gerçek kısmının frekansla değişimi.....	43
Şekil 4.6. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin sanal kısmının frekansla değişimi	44
Şekil 4.7. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojellerin tanjant faktörünün frekansla değişimi	45
Şekil 4.8. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojellerin karmaşık empedansının gerçek kısmının (rezistansının) frekansla değişimi	46
Şekil 4.9. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojellerin karmaşık empedansının sanal kısmının (reaktansının) frekansla değişimi.....	47
Şekil 4.10. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojellerin empedansının frekansla değişimi.....	48
Şekil 4.11. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojellerin faz açısının frekansla değişimi.....	49

Şekil 4.12. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmının frekansla değişimi	50
Şekil 4.13. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının frekansla değişimi.....	51
Şekil 4.14. (a) Farklı formdaki kalsit katkılı hidrojellerin karmaşık elektrik modülün deneysel düzlem çizgileri ve eşdeğer elektrik devreleri (b) ve onların Smith abağına uyarlanmış hali.....	52
Şekil 4.15. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojellerin kapasitansının frekansla değişimi.....	53
Şekil 4.16. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojellerin karmaşık iyonik iletkenliğinin frekansla değişimi.....	54
Şekil 4.17. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojellerin logaritmik iyonik iletkenliğinin ($\log(\sigma AC)$) frekansla değişimi	55
Şekil 4.18. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojellerin UV-vis soğurma spektrumlarının dalga boyu değişimi.....	57
Şekil 4.19. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojellerin optik bant aralığının değişimi.....	58
Şekil 4.20. Farklı dozdaki AK-45 katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin gerçek kısmının frekansla değişimi	59
Şekil 4.21. Farklı dozlarda AK-45 boya katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin sanal kısmının frekansla değişimi.....	60
Şekil 4.22. Farklı derişimlerde AK-45 boya katkılı hidrojellerin tanjant faktörünün frekansla değişimi	61
Şekil 4.23. Farklı derişimlerde AK-45 boya katkılı hidrojellerin karmaşık empedansının gerçek kısmının (rezistans) frekansla değişimi.....	62
Şekil 4.24. Farklı derişimlerde AK-45 boya katkılı hidrojellerin karmaşık empedansının sanal kısmının (reaktans) frekansla değişimi.....	63
Şekil 4.25. Farklı derişimlerde AK-45 boya yüklü hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmının frekansla değişimi	64
Şekil 4.26. Farklı derişimlerde AK-45 boya yüklü hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının frekansla değişimi.....	65
Şekil 4.27. Farklı derişimlerde AK-45 boya yüklü hidrojellerin kapasitansının frekansla değişimi.....	66

Şekil 4.28. Farklı derişimlerde AK-45 boya yüklü hidrojjelerin logaritmik iyonik iletkenliđinin ($\ln \sigma_{ac}(\omega)$) frekansla deđişimi.....	67
Şekil 4.29. (a) Farklı derişimlerde AK-45 boya yüklü hidrojjelerin elektrik modülün düzlem çizgileri ve (b) onların Smith abađına uyarlanmış hali	68
Şekil 4.30. AK-45 boya katkılı hidrojjeller için UV spektrumlarının dalga boyu varyasyonu	69
Şekil 4.31. Farklı derişimlerde AK-45 boya katkılı hidrojjeller için $(ahv)^2$ 'ye karşı (hv) grafiklerinin optik bant boşlukları	70
Şekil 4.32. Anilin ve anilin halojenürler katkılı hidrojjelerin karmaşık dielektrik sabitinin gerçek kısmının frekansla deđişimi	71
Şekil 4.33. Anilin ve anilin halojenürler katkılı hidrojjelerin karmaşık dielektrik sabitinin sanal kısmının frekansla deđişimi.....	72
Şekil 4.34. Anilin ve anilin halojenürler katkılı hidrojjelerin tanjant faktörünün frekansla olan deđişimi.....	73
Şekil 4.35. Anilin ve anilin halojenürler boya katkılı hidrojjelerin karmaşık empedansının gerçek kısmının (rezistans) frekansla deđişimi.....	74
Şekil 4.36. Anilin ve anilin halojenürler boya katkılı hidrojjelerin karmaşık empedansının sanal kısmının (reaktans) frekansla deđişimi.....	75
Şekil 4.37. Anilin ve anilin halojenürler boya katkılı hidrojjelerin kapasitansının frekansla deđişimi.....	76
Şekil 4.38. Anilin ve anilin halojenürler katkılı hidrojjelerin karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmının frekansla deđişimi	77
Şekil 4.39. Anilin ve anilin halojenürler katkılı hidrojjelerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının frekansla deđişimi.....	78
Şekil 4.40. Anilin ve anilin halojenürler katkılı hidrojjelerin logaritmik iyonik iletkenliđinin ($\ln \sigma_{ac}(\omega)$) frekansla deđişimi.....	79
Şekil 4.41. (a) Karmaşık dielektrik düzlem çizgileri ve bunların teorik Davidson-Cole çizgileri, (b) Anilin ve anilin halojenür boyaları katkılı hidrojjeller için Smith abađı eşdeđer empedans devresi.....	81

FOTOĞRAFLAR DİZİNİ

Fotoğraf 4.1. (a) KI katkılı (10.00 KX), (b) KII katkılı (10.10 K X) (c) An katkılı (10.05 K X) ve (d) AK5 katkılı (80.000 X) hidrojenlerin 2 µm ölçekli TEM görüntüleri (Bozok Üniversitesi Bilim ve Teknoloji Uygulama ve Araştırma Merkezi)..... 39



SİMGE VE KISALTMALAR

Simgeler	Açıklama
Ag	Gümüş
$CaCO_3$	Kalsiyum karbonat
An	Anilin
$FlAn$	Floroanilin
$ClAn$	Kloroanilin
$BrAn$	Bromoanilin
ϵ^*	Karmaşık dielektrik sabit
ϵ'	Karmaşık dielektrik sabitin gerçek kısmı
ϵ''	Karmaşık dielektrik sabitin sanal kısmı
M^*	Karmaşık elektrik modül
M'	Karmaşık elektrik modülün gerçek kısmı
M''	Karmaşık elektrik modülün sanal kısmı
Z^*	Karmaşık empedans
Z'	Karmaşık empedansın gerçek kısmı
Z''	Karmaşık empedansın sanal kısmı
σ^*	Karmaşık iyonik iletkenlik
σ'	Karmaşık iyonik iletkenliğin gerçek kısmı
σ''	Karmaşık iyonik iletkenliğin sanal kısmı
σ_{dc}	Doğru akım iletkenliği
f	Frekans
ω	Açısal frekans
C	Kapasitans
ϵ	Dielektik geçirgenlik
ϵ_0	Boşluğun dielektrik geçirgenliği
A	Yüzey alanı
V	Potansiyel fark

l	Plakalar arasındaki mesafe
B	Polarize edilebilirliğin gücünü belirleyen sabit
D	Akı yoğunluğu/ dielektrik yer değiştirme
D_0	Vakum ortamındaki dielektrik yer değiştirme
E	Uygulanan dış elektrik alanı
P	Polarizasyon
μ	Elektrik dipol momenti
d	Malzemenin kalınlığı
r	İki yük arasındaki mesafe
$\tan(\delta)$	Tanjant faktörü
δ	Kayıp açısı
τ	Sanal sayı birimi (Durulma zamanı)
α	Sıcaklığa bağlı soğurma sabiti
R	Rezistans
X	Reaktans
θ	Faz açısı
C_0	Vakum kapasitansı
T	Geçirgenlik
I	İletilen radyasyon yoğunluğu
I_0	Gelen radyasyon yoğunluğu
b	Yol uzunluğu
c	Soğurma konsantrasyonu
h	Plank sabiti
E_g	Optik bant aralığı
ϵ_∞	Düşük frekans dielektrik geçirgenlik
ϵ_s	Yüksek frekans dielektrik geçirgenlik
ac	Alternatif akım
$\log(\sigma_{ac})$	Logaritmik iletkenlik
σ_{AC}	AC iletkenlik
σ_T	Toplam iletkenlik
σ_0	Sınırlayıcı sıfır frekans iletkenliği

χ	Ortamın duyarlılığı
I_y	İdeal kapasitörün şarj akımı
Q	Depolanan yük
j	Sanal faktör

Kısaltmalar

TEM

POM

DS

OT

PAAm

DC

AC

M AAm

RC

ES

XRD

EDX

UV

UV-Vis

RT

KI

KII

AK

Açıklama

Taramalı Elektron Mikroskobu

Polarize Optik Mikroskopi

Dielektrik Spektroskopi

Optik Geçirgenlik

Poli akrilamid

Doğru Akım

Alternatif Akım

Metilenbis (akrilamid)

Elektrik Devresi

Empedans Spektroskopi

X-Işını Kırınımı

Enerji Dağılımlı X-Işını

Ultraviyole

Ultraviyole-Görünür

Oda Sıcaklığı

Kalsit I Katkılı Hidrojel

Kalsit II Katkılı Hidrojel

Asidik Kırmızı

BÖLÜM I

GİRİŞ

Polimerler, günlük hayatla önemli bir yere sahip olmakla birlikte üstün özelliklerinin bir sonucu olarak son zamanlarda çok popüler hale gelmiştir. Bir polimer, çok büyük molekülleri veya makromolekülleri oluşturan birçok kez tekrar eden monomerden oluşur (Cook and Bibic, 2019). Polimer zincirleri, diğer polimer zincirlerinin polimer ana zincirine yan dal olarak bağlanması sonucu doğrusal veya dallanmış olabilir ve bu yan dalların başka bir ana polimer zincirine bağlanması sonucu çapraz bağlı bir yapıda bulunabilirler. Doğrusal ve dallanmış polimer yapılarla karşılaştırıldığında, herhangi bir çözelti içinde çözünmeden belirli bir hacme kadar şişebilen üç boyutlu, çapraz bağlı polimer yapılara polimerik jeller denir. Polimerik jeller, fizik, kimya ve tıp alanlarında bilim insanlarının merakını çekmiştir. pH, çözelti konsantrasyonu, sıcaklık, ışık, çözücüler, elektrik ve manyetik alan değişiklikleri gibi çeşitli çevresel uyarılara şişme veya büzülme yoluyla yanıt veren akıllı jeller üzerinde çeşitli çalışmalar bulunmaktadır (Chaterji vd., 2007). Çapraz bağlı polimer yapıları üç boyutlu ağları oluşturan çapraz bağ türlerine (kimyasal veya fiziksel), içerdikleri yapısal polimerlere (doğal, sentetik veya hibrit), konfigürasyon boyutlarına (makro veya mikro) ve içerdikleri çözücüye (aerojel, hidrojel veya lipojel) göre geniş bir yelpazede sınıflandırılır (Pal and Banerjee, 2018; Tüylek, 2020; Ulusoy ve Dikmen, 2020).

Ağ yapısının gücünü etkileyen çapraz bağlar, çapraz bağlı polimerlerin sınıflandırılmasında önemli bir faktördür. Kimyasal jeller, yüksek hacimde bir çözücü içinde şişirilmiş, termal olarak tersinmez kovalent çapraz bağlı ağ polimerleridir. Öte yandan, fiziksel jeller termal olarak tersinirdir ve moleküller arasındaki van der Waals, elektrostatik veya hidrojen bağı etkileşimlerinin bir sonucu olarak oluşur (Philippova and Khokhlov, 2012). Jeller de yapılarındaki polimer türlerine doğal, sentetik ve hibrit olarak sınıflandırılır. Ağ yapısı protein ve polisakkarit gibi doğal polimerlerden oluşuyorsa bu tür jellere doğal jel denir. Ayrıca kontakt lensler ve parfümler sentetik jellere örnektir ve daha birçok örnek verilebilmektedir. Hibrit jeller ise biyo-organizmalarla uyumları nedeniyle yapay organ ve yapay doku olarak tıpta ve biyo-teknolojide geniş bir uygulama alanı sunmaktadır. Jellerin bir diğer sınıflandırma grubu ise yapılarındaki çapraz bağ dağılımlarına göre yapılmaktadır. Ağ yapısında çapraz bağlı bölgeler rastgele dağılırsa

homojen bir yapı gözlenir ve bu tür ağlara ideal makrojeller denir. Öte yandan seyreltik çözeltilerde moleküller arası mesafe büyüktür ve bu nedenle moleküller arası çapraz bağlanma zorlaşır ve aynı polimer zincirinde moleküller arası çapraz bağ oluşumları meydana gelir. Sonuç olarak ağdaki çapraz bağ dağılımları lokal olarak yoğunlaşmakta ve heterojen bir yapı sergileyen mikrojel oluşumları gözlemlenmektedir. Jellerin son sınıflandırması içinde buldukları çözücünün cinsine göre yapılabilir. Ortam su ise hidrojel, ortam hava ise aerojel, ortam yağ ise lipojel oluşur (Alpaslan, 2014; Öztürk, 2022).

Akıllı jeller olarak bilinen polimerik jel ailesinden oluşan hidrojeller, son yıllarda endüstriden biyolojik uygulamalara kadar birçok çeşitli uygulamalarda olağanüstü vaatleri nedeniyle son 50 yıldır büyük ilgi görüyor. Hidrojeller kimyasal veya fiziksel çaprazlama nedeniyle yapılarını korurken suda şişebilen, çözünmezlik özelliği gösteren üç boyutlu hidrofilik polimerlerdir (Nair ve Laurencin, 2007; Schexnailder and Schmidt, 2009; Ahmed, 2015). Polimer yapısına bağlı hidrofilik fonksiyonel gruplar, hidrojellere suyu emme kapasitesi sağlarlar. Bu yapılar, kullanılan polimerlerin özelliği, ağ bağlantılarının türü ve yoğunluğuna bağlı olarak farklı miktarlarda su içerebilir. Şişmiş durumdaki bir hidrojel içindeki suyun ağırlık yüzdesi, polimerin ağırlık yüzdesinden önemli ölçüde daha büyüktür. Ağ zincirleri arasındaki çapraz bağlar ise parçalanmaya karşı direnç sağlar. Hidrojeller hem doğal hem de yapay malzemelerden yapılabilmektedir. Doğal hidrojeller son yıllarda daha uzun bir ömre, daha yüksek su emme kapasitesine, hidrolize ve ısıya daha dıysıcaklanıklı olmaları ve daha yüksek stabiliteleri nedeniyle sentetik hidrojeller tarafından yerinden edilmiştir. Ayrıca hidrojeller hem küçük hem de büyük sıcaklık değişimlerine karşı daha dayanıklıdırlar (Nair ve Laurencin, 2007; Ahmed, 2015; Tüylek, 2020).

Hazırlama yönteminin bir sonucu olarak bazı önemli hidrojel sınıfları oluşur. Homopolimerik hidrojeller, kopolimerik hidrojeller ve multipolimer iç içe geçmiş polimerik hidrojeller bunlara örnektir. Homopolimerik hidrojeller, bir polimer ağının basit yapısal elemanı olan tek monomer tipinden üretilen polimer ağlardır (Lizawa vd., 2007; Pande, 2017; Balan, 2021). Homopolimerler, monomer ve polimerizasyon işlemine dayanan çapraz bağlı bir yapısal çerçeveye sahip olabilir. Ayrıca, kopolimerik hidrojeller, her biri en az bir hidrofilik bileşene sahip iki veya daha fazla farklı monomer tipinden

oluşur ve polimer ağ zinciri boyunca rastgele, blok, aşı ve ardışık kopolimerler olmak üzere 4 şekilde incelenirler (Yang vd., 2002; Kişmir, 2011).

Hidrojeller doğal, sentetik veya hibrit olmalarına göre ise üç tipe ayrılır (Zhao vd., 2013). Doğal hidrojeller, polimerleri jelatin ve kolajen gibi doğadan elde edilen jellerdir ve doğası gereği hidrofobik olan sentetik polimerlerden kimyasal olarak daha zayıftır. Mekanik sağlamlıkları, kademeli bir bozulma oranı ortaya çıkarır, ancak mekanik mukavemet aynı zamanda dayanıklılığı da sağlar. Bu iki taban tabana zıt özellik, tasarım optimizasyonu ile ayarlanmalıdır (Balan, 2021; Tabata, 2009). Sentetik hidrojeller ise poliamidler ve polietilen glikol gibi sentetik polimerlerden yapılır. Son yıllarda ise sterilize edilebilir olmaları, hidrolize ve ısıya dayanıklı olmaları ve daha yüksek kararlılıkları nedeniyle sentetik hidrojeller tercih edilmeye başlanmıştır (Garnica-Palafox ve Sánchez-Arévalo, 2016). Ortamdaki tepkilerine göre hidrojel türleri vardır. Kimyasal olarak duyarlı sınıf, harici çözelti/iyonik ortamın gücündeki, pH'ındaki, bileşimindeki ve moleküler türlerindeki değişikliklere tepki verir. Bu tepki tipik olarak, deformasyon olarak da bilinen malzemenin şişmesi veya büzülmesi ile karakterize edilir. Öte yandan, fiziksel olarak duyarlı sınıf, sıcaklık, basınç, ışık, manyetik alan ve elektrik alanındaki değişikliklere tepki verir (Koetting vd., 2015; Fennell ve Huyghe, 2019; Thakur vd., 2018; Balan, 2021). Genel olarak ise çapraz bağlantı noktalarının kimyasal veya fiziksel özelliklerine bağlı olarak hidrojellerin iki tipe sınıflandırılabilceği söylenebilir. Kalıcı bağlantılar, kimyasal olarak çapraz bağlı ağlarda meydana gelir. Geçici bağlantılar, polimer zincir karışıklıkları veya iyonik etkileşimler, hidrojen bağları veya hidrofobik etkileşimler dahil olmak üzere fiziksel etkileşimlerin bir sonucu olarak fiziksel ağlarda meydana gelir (Hacker and Mikos, 2011; Thakur vd., 2018; Zhu ve Marchant, 2011).

Hidrojeller, çeşitli geleneksel kimyasal polimerizasyon yöntemleri kullanılarak sentezlenebilir. Bunlar hidrofilik monomerlerin polimerizasyonu veya mevcut polimerlerin (doğal veya sentetik) modifikasyonu şeklindedir. Kopolimerizasyon/çapraz bağlayıcı serbest radikal polimerizasyonları, hidrofilik monomerleri çok işlevli çapraz bağlayıcılarla reaksiyona sokarak hidrojel yapmak rutin olarak kullanılır. Hem doğal hem de sentetik kaynakların suda çözünür doğrusal polimerleri, hidrojeller oluşturmak için çeşitli yöntemlerle çapraz bağlanır. Jeller yığın, çözelti ve süspansiyon polimerizasyonu dahil olmak üzere mevcut polimerizasyon işlemlerinden herhangi biri kullanılarak oluşturulabilir (Nart, 2008; Ahmed, 2015; Ullah vd., 2015 Balan, 2021). Hidrojeller

fiziksel özelliklerine, şişme doğasına, üretim şekline, kökenine, içerdikleri iyonik yüklerine, kaynaklarına, kimyasal kararlılıklarına ve çapraz bağlanmanın gözlemlenebilir doğasına göre de sentezlenebilir ve hidrojelleri bunlara göre sınıflandırmak mümkündür (Sop, 2013).

Hidrojellerin Wichterle ve Lim tarafından ilk olarak 1954’de sentezlenmesi ile birlikte teknolojiye birçok alanda kullanılmaya başlandığı görülmeye başlandı (Wichterle ve Lim, 1960; Sun vd., 2002; Debashish vd., 2010; Anisha vd., 2010; Chen vd., 1995; Wang vd., 2010; Panprung vd., 2011).

Hidrojellerin ara yüzey serbest enerjilerinin düşük olması canlı vücuduyla temas ettiğinde canlıya zarar vermemektedir (Anderson ve Langone, 1999; Smetana, 1993; Miyata vd., 1999). Dolayısıyla bu jeller canlılar üzerinde uygulanabilecek teknolojik uygulamalar açısından oldukça uygun bir malzemedir. Hidrojellerin saf halde dielektrik bir malzeme olması yani elektriksel olarak yalıtkan olup belli bir elektrik alan altında polarize (kutuplanma) olabilme özelliğine sahip olması bu malzemelerin yük ve enerji depolama uygulamalarında bir kapasitör olarak kullanılmasına olanak sağlar (Hoffman, 2012).

Sulu bir hidrojelde kalsit büyümesi incelenmiş ve kristallerin görünümünün zaman içinde değiştiği gözlemlenmiştir (Estroff, 2004). Hidrojel ürünleri, hidrofilik yapısı sayesinde üç boyutlu ağlarında büyük miktarlarda su tutabilmelerini sağlayan bir grup polimerik malzeme oluşturur. Bu ürünlerin bir dizi endüstriyel ve çevresel uygulama alanında yoğun kullanımının birincil öneme sahip olduğu düşünülmektedir (Ahmed, 2015). Farklı bileşimlere sahip kurşun-demir karışımlı levo tartrat kristallerini yetiştirme ortamı olarak silika hidrojeller kullanılarak büyütüldü (Jethava vd., 2015). Kalsiyum silikat (CaSiO_3) dielektrik malzemesinin empedans spektropisi çalışmaları yapıldı. Empedansın gerçek ve sanal kısımlarının varyasyonu uygulanan alanın frekansı ile incelendi. Dielektrik sabiti ve kaybının frekansla değişimi analiz edildi ve ayrıca ac iletkenliğinin frekansla olan değişiminin Jonnscher’in güç yasasıyla uyumlu olduğu saptandı (Tangboriboon vd., 2011).

CaCO_3 hidrojel eklenmesinin plaster of Paris’in (POP) kemik biyolojik aktivitesini arttırdığı ve bozunabilirliğini azalttığı kanıtlandı. Bununla birlikte, bu kemik ikamesinin bir kemik kusuruna yerleştirilmesi yine de bir inflamatuvar yanıtla ilişkilendirilecektir.

Anti inflamatuvar ajan olarak sinnamaldehitin etkisi araştırılmıştır. Ek olarak, sinnamaldehitin aldehit zincirlerinin de çapraz bağlama ajanı olarak hareket edebileceği ve CaCO₃ hidrojel yapısına bir plastizör olarak işlev görebileceği bilinmektedir. Bu nedenle, CaCO₃ hidrojeline farklı konsantrasyonlarda sinnamaldehit eklenmiş ve çapsal gerilme mukavemeti, yaş şişmesi, jel fraktinasyonu, sinnamaldehit salınımı, antimikrobiyal etki ve hücre sitotoksitesisi üzerindeki etkisi araştırılmıştır (Dewi vd., 2016).

Petrol bazlı biyo-bozunur olmayan plastiklerin yaygın kullanımı nedeniyle artan çevresel sorunlar göz önüne alındığında, ekonomik, çevre dostu ve geri dönüştürülebilir yeni plastik malzemeler yüksek talep görmektedir. Uygulanabilir bir strateji, mineral bazlı hibrit malzemelerin biyo-esinli sentezidir. Sun ve arkadaşları poli-akrilik asit ile fiziksel olarak çapraz bağlanmış çok küçük amorf kalsiyum karbonat (AKK) nanoparçacıklarından oluşan amorf bir CaCO₃ (AKK) bazlı hidrojel için kolay bir yol rapor ettiler (Sun vd., 2016).

Oftalmolojik hidrojel polimerleri, femtosaniye lazer mikro işleme işleminden önce Floresein veya Kumarin boya ile katkılandırılmıştır. Ulaşılabilir mikro işleme yazma hızının, büyük kırılma indeksi değişiklikleri (+0.08'e kadar) korunurken büyük ölçüde artırılabilen bulunmuştur ve polimetilmetakrilat (PMMA) gibi su içermeyen boya katkılı polimerlerdeki önceki sonuçlarla karşılaştırıldığında, çok daha büyük indeks değişiklikleri ve çok daha hızlı yazma hızları elde edilmiştir (Ding vd., 2008). Bakır ferrit nanoparçacıkları ile katkılı poliakrilik asit hidrojeli, atık sudan organik boyanın (metilen mavisi) uzaklaştırılması ve bozunması için hazırlanmış ve incelenmiştir. Nanoparçacıkların X-ışını kırınımı ve EDX analizleri doğrulanmış olup Raman spektrumlarına bakılmıştır. Hidrojel kompozit suya batırıldığında ağırlıkça %1771 artış göstermiştir. Metilen mavisi boya çözeltisinin bakır ferrit nanopartiküller ve ayrıca hidrojel nanokompozit ile bozunma ve soğurma çalışmaları, boyanın hidrojel tarafından emilimi ve bakır ferrit nanopartikülleri ile bozunmayı önermektedir. Bu tür hidrojel nanokompozitler, küçük ve orta ölçekli endüstriler tarafından boşaltılan organik boyaların neden olduğu su kirliliğinin azaltılması için umut verici bir malzeme olabileceği öngörülmüştür (Kannaujia vd., 2019).

4-Metoksibenziliden-4'-butilanilin (MBBA) sıvı kristal katkılı hidrojel Taramalı Elektron Mikroskobu (TEM), Polarize Optik Mikroskopi (POM), Optik Geçirgenlik (OT) ve Dielektrik Spektroskopi (DS) teknikleri ile incelenmiştir. MBBA sıvı kristal katkılı hidrojel sentezleme işlemi yapılmış olup DS tekniği ile elde edilen deneysel sonuçlar Davidson-Cole ve Havriliak-Negami yaklaşımları kullanılarak tartışılmıştır. Aseton kullanılarak sentezlenen hidrojellerin boşluklarının, polimerik matrise eklenen sıvı kristalin serbest iyonlarını sınırlayabildiği fark edilmiştir (Fernandes vd., 2017).

Enerji depolama teknolojisi için biyo-bozunur ve biyo-uyumlu bir hidrojel olarak gümüş nanopartiküller (CS/HEC/PAni/GO@Ag) ile katkılı grafen oksit yüklü yüksek iletken kitosan/hidroksil etilselüloz/polianilin ucuz ve basit bir şekilde hazırlanmasına odaklanılmıştır. Üretilen hidrojellerin TEM görüntüleri ve XRD desenlerine bakılmıştır. Üretilen hidrojellerin ucuz, çevre dostu ve yüksek kapasitans ve geçirgenliğe sahip olduğunu ve bu nedenle elektrik enerjisini depolayabildikleri gösterilmiştir (Youssef vd., 2021).

Bir çalışmada, yapışma önleyici ve protein itici karakterlerinden dolayı hidrojel, bir sensör/elektrot için pasif koruma kaplaması olarak kullanılmıştır (Hart ve Abass, 1997).

Anyonik boyalar metil turuncu ve allura kırmızısını, % 5, 10 ve 15 mol poli(vinilamin hidroklorür) nin AAc içeriğine sahip poli(akrilik asit-ko-N-izopropilakrilamid) nin amid oluşumu yoluyla hazırlanan katman katman birleştirilmiş ultra ince hidrojel tarafından yükleme ve salımı değerlendirmek için model ilaçlar olarak kullanılmıştır. Ayrıca bu çalışmada, yüklenen metil turuncu boya miktarı, kopolimerlerin boya konsantrasyonları, film kalınlığı ve akrilik asit (AAs) içeriği değiştirilerek potansiyel olarak kontrol edilmiştir. AK (allura kırmızısını) salınımı, NaCl konsantrasyonu ve pH ile kontrol edilmiştir. Ultra ince hidrojellerin polimerik matrislerinin, yüklü ilaçların yüklenmesi ve salınması için büyük potansiyele sahip olduğu sonucuna varılmıştır (Serizawa vd., 2005). Çapraz bağlama maddesi olarak poli (etilen glikol) diglisidil eter (PEGDGE) kullanarak lignosülfonat (LS) bazlı hidrojel hazırlanmıştır. Elde edilen lignosülfonat poli (etilen glikol) diglisidil eter (LS-PEGDGE) hidrojellerin yüksek mekanik mukavemet, yüksek iletkenlik, algılama ve boya adsorpsiyon yeteneklerine sahip olduklarını gösterilmekle beraber LS-PEGDGE hidrojel, mekanik karakterizasyonlar, Fourier dönüşümü

kızılötesi spektroskopisi (FT-IR), Taramalı Elektron Mikroskobu (TEM) ve diğer teknikler takip edilerek analiz edilmiştir. Esnek hidrojenlerin iyonik iletkenlik, yapışkanlık, nemli koşullar altında elektrik üretimi, algılama, boya adsorpsiyon kabiliyeti ve elektrokimyasal özellikler gibi akıllı özellikleri analiz edilmiştir. Hazırlanan hidrojenlerin iletkenlik davranışı, nemli hava akışına karşı oldukça hassas olduğu, nem ile hassas bir şekilde arttığı ve %34 nem içeriğinde LS-PEGDGE hidrojenlerin mükemmel elektrokimyasal özelliklere sahip olduğu gözlemlenmiştir. Bu çalışma lignin uygulamalarının değerlendirilmesinde yeni bir fırsat sunmaktadır (Mondal vd., 2021).

Hidrojenlerin sahip olduğu birçok özellik katılacak malzemeler sayesinde daha da etkin ve verimli olmaktadır. Katılacak malzemeler sayesinde hidrojenlerin dielektrik, optik, iletkenlik, termal, manyetik, mekanik özelliklerinin hepsinde pozitif yönde bir değişim olduğu bugüne kadar yapılan çalışmalardan anlaşılmaktadır (Kyritsis vd., 1995; Han vd., 2018).

Boya katılı hidrojenler, Maxwell sıvısındaki korelasyon etkilerinden, dielektrik gevşemeden ve viskoelastik sistemdeki Brownian dinamik davranıştan etkilenir (Coşkun vd., 2019; Van Zanten ve Rufener, 2000; Öztürk vd., 2021). Katılı hidrojenler, doku mühendisliğinde (Gibas ve Janik, 2010), tarımsal uygulamalarda (Neethu vd., 2018; Tomadoni vd., 2019), ilaç dağıtım sistemlerinde (Pillai ve Panchagnula, 2001), yara örtülerinde (Koehler vd., 2018), biyolojik bariyer malzemelerinde (Majcher ve Hoare, 2019), mikroelektronik uygulamalarda (Liu vd., 2019), optik uygulamalarda (Okutan vd., 2018) ve diğer birçok alanda geniş potansiyel uygulamalara sahiptir.

Bu tez çalışmasında hidrojenlere katılacak kalsit ise çeşitli şekillerde kristal halde bulunan (rombaeder, skalenöeder) saydam yapıda, renksiz, sertliği Moh's skalasına göre 3, yoğunluğu $2,7 \text{ g/cm}^3$ civarında olan kolay öğütülebilen, karbonatlı kayaların yapıtaşı olan bir mineraldir (Skinner ve Moon, 1979). Kalsit minerali mikronize boyutlara indirildikten sonra özellikle boya, kağıt, ilaç vb. gibi birçok sanayide dolgu malzemesi olarak kullanılmaktadır. En çok kullanılan sektörlerden birisi olan plastik sanayisinde ise kaplandıktan sonra kullanılmaktadır. Kısacası birçok sanayinin hammaddesi olup TiO_2 gibi pahalı pigmentlerin tüketimini azaltmasından dolayı ekonomik bir girdi olarak dikkat çekmektedir ve bu sebepten dolayı da oldukça yaygın olarak kullanılmaktadır (DPT, 2001). Yüksek kimyasal saflığa sahip olan kalsit bu özelliğinden dolayı polimerlerin

yaşlanmasına neden olabilecek bir katalitik etkiyi yok etmesi ve ürünlerin darbeye karşı göstermiş olduğu direnci üzerinde olumlu özellik sağlaması, yüksek beyazlıktan ötürü pigment tasarrufu sağlaması, yumuşak olması, kokusuz, tatsız, non-toksit olması ve ağır metal içermemesinden dolayı gıdaya uygun olması, stabiliteyi dengelemesi, boya da örtücülük, yüksek dispersiyon ve düşük yağ emme özelliğine sahip olması ve üretilen son malzemelerin yüzey özelliklerini geliştirmesi kalsitin en önemli avantajlarından görülmektedir (Yurdakul, 2011; Glenn vd., 2001; Chen vd., 2004; Yaxiong ve Zhong, 2006). Bütün bunlarla birlikte ülkemizin kalsit rezervi ve kalitesi açısından oldukça iyi bir konumdadır. Dikkati çeken en önemli özelliklerin başında ise yüksek saflık, yüksek beyazlık ve CaCO_3 yüzdesinin çok fazla olmasıdır. Bu özelliklere sahip en kaliteli rezervler ise Niğde ilinde bulunuyor (Delibalta, 2017).

Bu tez çalışmasında katkılama işleminde saf hidrojel için çapraz bağlayıcı N, N'-metilenbis (akrilamid) (MBAAm) nin küçük miktarı ile bağlandı ve iyonik olmayan bir hidrofilik akrilamid (AAm) monomerin serbest radikal çapraz bağlanmış çoklu-polimerizasyon yöntemi tercih edildi. Bu yöntem sayesinde çapraz bağlayıcı olarak N, N metilenbisakrilamid (MBAAm) in olduğu ve başlatıcı olarak da potasyum persülfat kullanıldığı, AMPS-IA hidrojelleri sentezlenmiş oldu. Sentezlenen bu saf hidrojellere kalsit molekülleri ve bazı boya iyonlarının katkılanması ile elde edilen katkılı hidrojel örneklerinin optik ve dielektrik özellikleri, UV spektroskopisi ve empedans spektroskopisi (ES) teknikleri kullanılarak geniş bir frekans frekans aralığında analiz edildi.

Bu katkılı hidrojellerin yapısal ve morfolojik özellikleri, X-ışını kırınımı (XRD), taramalı elektron mikroskobu (TEM) ve enerji dağılımlı X-ışını (EDX) analiz teknikleri kullanılarak analiz edilmiştir.

Bazı boya ve kalsit katkılı hidrojeller için soğurma spektrumları ve enerji bant aralıkları UV-Vis spektroskopisi ile analiz edildi. Karmaşık dielektrik sabiti, tanjant/dağıtım faktörü ($\tan\delta$), karmaşık empedans, kapasitans ve karmaşık elektrik modülü, oda sıcaklığında geniş bir frekans aralığında ölçüldü. Asidik kırmızı boya katkılı hidrojellerin farklı dozları için karmaşık dielektrik sabiti, empedans ve elektrik modülünün deneysel düzlem grafikleri elde edildi. Bu numunelerin elektrik devresi uygulamalarına

uygunluğunu analiz etmek için, ilgili eşdeğer elektrik devresi karmaşık elektrik modülü için Cole-Cole ve Davidson-Cole grafikleri hesaplandı ve Smith abağı ile uyarlandı.

Bu doktora tez çalışması dört bölümden oluşmaktadır. İlk bölümde genel bir giriş yapılmıştır ve çalışmanın motivasyon sebebine değinildi. İkinci bölümde çalışmanın teorik temelleri hakkında bilgilendirme yapıldı. Üçüncü bölümde ise hidrojel sentezleme işlemi ve üretilen numunelerin ölçümlerinde kullanılan taramalı elektron mikroskobu ve empedans spektroskopisi hakkında kısaca bilgi verildi. Dördüncü bölümde, deneysel sonuçlar ve tartışma yer almaktadır. Bu bölümde, üretilen katkılı hidrojellere ait deneysel sonuçlar tartışıldı. Bu sonuçlar ışığında ilgili numunelerin opto-elektronik uygulamalar açısından verimliliği detaylı olarak incelenmiş ve literatüre katkısı yorumlandı.



BÖLÜM II

GENEL BİLGİLER

2.1 Dielektrik Malzeme

Normalde elektriği iletmeyen ve elektrik yükünü depolayabilen malzemeler dielektrik olarak bilinir (Raju, 2017). Dielektrik malzeme yüksek öz dirence, negatif sıcaklık direnç katsayısına ve yüksek yalıtım direncine sahip metalik malzemelerdir. Dielektrik malzemenin başka bir tanımı ise elektrik yüklerini tutan iletken olmayan maddelerdir. Bir elektrik alana bir dielektrik madde yerleştirildiğinde, elektrik yükleri malzemenin akamaz. Elektrik yükleri, ortalama denge konumlarından hafifçe kayarak dielektrik polarizasyona neden olur. Dielektrik polarizasyon, pozitif yüklerin alan yönünde akmasına ve negatif yüklerin alanın ters yönünde kaymasına neden olur. Bu fenomen, dielektrik malzeme içindeki genel elektrik alanını azaltan bir iç elektrik alanı verir (Callister ve Rethwisch, 2007; Zengin, 2007; Delipınar, 2013; Mirigliano vd., 2020).

Elektrik duyarlılığı, bir dielektrik malzemenin bir dış elektrik alanına yerleştirildiğinde ne kadar kolay polarize edilebileceğinin ölçüsünü verir. Dielektrik malzemeler çoğunlukla katıdır. Dielektriklerin bazıları zayıf bağlı moleküllerden oluşur. Bu tür senaryolarda, polarizasyonla birlikte, moleküllerin simetri eksenlerini alanla hizalamak için kendilerini yeniden yönlendirdikleri de gözlemlenebilir. Dielektrik malzemeler enerji depolamak için kullanılır. Bu maddeler katı, sıvı ve gaz halde bulunur. Dielektrik malzemelerin bazı örnekleri şunlardır:

- Katı Dielektrikler – Seramik, Plastik, Mika ve Cam.
- Dielektrik Sıvı – Damıtılmış Su.
- Dielektrik Gaz – Kuru Hava, vakum, nitrojen ve helyum.

Bir malzemenin dielektrik özelliklerini tespit etmek için ilk olarak dielektrik özellikleri öğrenilmek istenen malzemenin kapasitans değerinin tespit edilmesi gerekir. A , m^2 kesit alanına ve d aralıklı bir çift paralel elektrottan oluşan bir vakum kondansatörü düşünürsek iki elektrot arasına bir V potansiyel farkı uygulandığında, elektrotlar arasındaki herhangi bir noktadaki plakalara dik elektrik alan yoğunluğu kenar etkileri ihmal edilerek $E=V/l$

denklemleri ile temsil edilir. Burada l plakalar arasındaki mesafedir. Vakum kapasitörünün kapasitansı $C_0 = A\varepsilon_0 E$ 'dir ve kapasitörde depolanan yük aşağıdaki denklemlerle hesaplanır

$$Q_0 = A\varepsilon_0 E. \quad (2.1)$$

Burada ε_0 , boş uzayın geçirgenliğidir. Potansiyeli sabit tutan plakalar arasına homojen bir dielektrik eklenirse, depolanan yük şu şekilde verilir

$$Q = \varepsilon_0 \varepsilon A E. \quad (2.2)$$

Burada ε , malzemenin dielektrik sabitidir. ε her zaman $Q_1 > Q$ den büyük olduğundan ve depolanan yükte aşağıdaki şekilde bir artış vardır

$$Q_1 - Q_0 = A E \varepsilon_0 (\varepsilon - 1). \quad (2.3)$$

Bu artış, dielektrik yüzeylerde yüklerin ortaya çıkmasına bağlanabilir.

Bir gözlemciye olan uzaklığa kıyasla yeterince yakın konumlanmış eşit ve zıt yük çiftine elektrik dipolü denir. Miktar denklem (2.4)'te ki gibi verilir

$$\mu = Q r. \quad (2.4)$$

Burada r , iki yük arasındaki mesafedir ve μ , elektrik dipol momenti olarak adlandırılır. Elektrik dipol momenti yönü negatif yükten pozitif yüke doğru alınan ve birimi coulomb metre (C.m) olan bir vektör miktarıdır.

Pozitif plakanın karşısındaki yüzeyde negatif yükler belirir ve bunun tersi de geçerlidir. Bu yük sistemi görünüşte nötrdür ve aşağıdaki denklemlerle ifade edilen bir dipol momentine sahiptir

$$\mu = A E \varepsilon_0 (\varepsilon - 1) r. \quad (2.5)$$

Akı yoğunluğu olan D ifadesi dielektrik yer değıştirme olarak da tanımlanır ve

$$D = \varepsilon_0 \varepsilon E \quad (2.6)$$

denklemleri ile ifade edilir. Denklemlerdeki D , vakum ortamındaki dielektrik yer değıştirmedir. E ise uygulanan dış elektrik alanı ifade eder. Denklem (2.6)' dan

$$D = \varepsilon_0 \varepsilon + P \quad (2.7)$$

denklemleri elde edilir. Burada P , dielektrik polarizasyonu temsil etmektedir ve uygulanan dış elektrik alan ile doğru orantılıdır.

2.2 Dielektrik Özellikler

Bir dielektrik malzemenin dielektrik saiti ve kaybı değerlerinden o malzemeye ait temel dielektrik mekanizmaların tamamı elde edilebilir. Bir dielektrik malzemenin alternatif alanlardaki davranışı, kayıplı dielektriği bir dirence seri veya paralel bağlı ideal bir elektrik eşdeğeri olarak görselleştiren devreler yaklaşımıyla incelenir. Son olarak, elektronik polarize edilebilirlik sergileyen polar olmayan bir dielektriğin davranışı, sönüm olmaması durumu için yalnızca optik frekanslarda dikkate alınır ve daha sonra teori, elektron hareketinin ortam tarafından sönümlenmesi dikkate alınarak geliştirilir.

Dielektrik malzemelerin en temel özellikleri karmaşık dielektrik sabiti $\varepsilon^*(\omega)$ ile tanımlanır. Karmaşık bir büyüklük olan dielektrik sabiti, depolanan ve kayıp enerjiyi tanımlayan gerçek ε' ve sanal ε'' kısımlardan oluşur. Karmaşık dielektrik sabiti ifadesi Denklem(2.13)' deki gibi ifade edilir (Coşkun vd., 2017; Öztürk vd., 2018; Okutan vd., 2015; San vd., 2005; Raju, 2017; Cho vd., 2003).

$$\varepsilon^* = \varepsilon' - j\varepsilon'' \quad (2.8)$$

Bu denklemde j sanal faktördür ve değeri $\sqrt{-1}$ dir. Ayrıca, ω açısal frekanstır. Q faktörü olarak da tanımlanan tanjant faktörü, $\tan(\delta) = \varepsilon''/\varepsilon'$ denklemi ile ifade edilir.

Akım iki bileşene ayrılabilir; uygulanan gerilimle aynı fazda olan bileşen $I_x = v\omega\varepsilon''c_0$ ve uygulanan gerilime 90° önde giden bileşen $I_y = v\omega\varepsilon'c_0$ dir. Bu bileşen ideal kapasitörün şarj akımıdır.

Uygulanan voltaj ile fazdaki bileşen, dielektrik kaybına neden olur. δ kayıp açısıdır ve şu şekilde verilir (Cole ve Cole, 1941; Okutan vd., 2015; Coşkun vd., 2017; Okutan vd., 2018; Rodriguez ve Salinas-Rodriguez, 1988).

$$\tan(\delta) = \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'}. \quad (2.9)$$

ε'' , genellikle kayıp faktörü ve $\tan\delta$ geçirkenlik faktörü olarak anılır.

Alternatif akım iletkenliği şu şekilde verilir

$$\sigma_{ac} = \sigma' + j\sigma'' = \omega\varepsilon_0[\varepsilon'' + i(\varepsilon' - \varepsilon_\infty)]. \quad (2.10)$$

Toplam iletkenlik ise aşağıdaki şekilde verilir

$$\sigma_T = \sigma_{ac} + \sigma_{dc} = \omega\varepsilon_0\varepsilon'' + \sigma_{dc}. \quad (2.11)$$

Malzeme içerisindeki frekansa bağlı iletkenlik ise karmaşık iyonik iletkenlik ifadesiyle temsil edilir (Callister, 2007).

$$\sigma^* = \sigma' + j\sigma''. \quad (2.12)$$

Denklem 2.12'deki σ' karmaşık iletkenliğin gerçek kısmını ve σ'' ise sanal kısmını ifade eder.

Malzemelerdeki elektriksel iletkenlik, bir elektrik alanının etkisi altında zayıf bağlı yüklü parçacıkların düzenli hareketi nedeniyle gerçekleşen termal olarak aktif bir süreçtir. Bu, karakterize edilecek malzemelerin önemli özelliklerinden biridir ve elektron/delikler veya katyonlar/anyonlar gibi iletim sürecine hakim olan yük taşıyıcıların doğasına ve bunların sıcaklık ve frekansın bir fonksiyonu olarak tepkilerine bağlıdır. İletkenliğin frekansa bağlılığı genellikle Jonscher'in güç yasasına uyar (Jonscher, 1977).

$$\sigma = \sigma_{dc} + B\omega^s. \quad (2.13)$$

Burada σ toplam iletkenliktir, σ_{dc} ise numunenin doğru akım iletkenliğidir. B , polarize edilebilirliğin gücünü belirleyen bir sabittir ve üstel sabit olan s hareketli iyonlar ve etrafındaki örgüler arasındaki etkileşimin derecesini temsil etmektedir. Bu s değerleri üzerinde çalışılan örneklerin iletkenlik mekanizmaları hakkında bilgi vermektedir. “ s ” parametrelerine bağlı olarak oluşan iletkenlik mekanizmaları Çizelge 2.1’de gösterilmiştir.

Çizelge 2.1. “ s ” parametrelerine bağlı olarak oluşan iletkenlik mekanizmaları

“ s ” parametre değerleri	İletkenlik mekanizması
$s \approx 0$	DC iletkenlik
$0 < s < 0,7$	İlişkili Bariyer Atlamalı
$0,7 \leq s < 1$	Kuantum Mekanik Tünel
$s = 1$	Neredeyse sürekli kayıp
$s > 1$	Süper Doğrusal Güç Kanunu

s hem sıcaklığa hem de bileşime bağlı 0 ile 1 arasında değerlere sahip boyutsuz bir sabittir. $s = 0$ olduğunda iletim, frekanstan bağımsız olan dc iletimdir, ancak $s \leq 1$ için iletim ac iletimidir. s değerleri, $\ln \omega$ ve $\ln \sigma_{ac}$ eğiminden farklı bileşimler için hesaplanır.

Dielektrik malzemelerde depolanan enerji malzemelerin morfolojik, yapısal ve kapasitans özellikleri ile ilgili bilgiler vermektedir. Dielektrik özelliklerin tespitinde sıklıkla kullanılan en bilinen yaklaşımların başında gelen yaklaşım, kapasitansın ve kayıp faktörünün elde edilmesidir.

Kapasitans ise elektrik enerjisinin depo edilebilme yeteneğidir. Kapasitans ve dielektrik malzemelerde yük depolayabilme yeteneğini ölçmeye yarayan dielektrik sabitin gerçek kısmı arasındaki ilişki aşağıdaki şekilde ifade edilir (Delipınar, 2013; Coşkun vd., 2012; Zengin, 2007, Purohit ve Choudhary, 2019; Das vd., 2019).

$$\epsilon' = \frac{Cd}{\epsilon_0 A}. \quad (2.14)$$

Burada A , dielektrik malzemenin yüzey alanını ve d , dielektrik malzemenin kalınlığını ifade eder.

Yukarıda da bahsedilen dielektrik malzemelerdeki yük depolama ve kayıp faktörüyle ilgili süreçleri anlamak için farklı modeller mevcuttur. Bu modellerin içerisinde bizlere en net bilgi veren modellerin başında Cole-Cole durulma modelleri gelmektedir. Cole ve Cole tarafından ortaya konulan frekansa bağlı normalize edilmiş karmaşık dielektrik fonksiyonuna ait bağıntı aşağıdaki şekildedir.

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon'(\omega) - j\varepsilon''(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + (j\omega\tau)^{1-\alpha}}, \quad 0 < \alpha \leq 1. \quad (2.15)$$

Burada $\omega = 2\pi f$, uygulanan elektrik alanın açısal frekansını, τ durulma zamanını temsil eder. Ayrıca bu denklemdaki ε_s yüksek frekans dielektrik geçirgenliğini, ε_∞ düşük frekans dielektrik geçirgenliğini ve α parametresi ise sıcaklığa bağlı bir soğurma sabiti göstermektedir.

Denklemin 2.15'deki dielektrik sabitin gerçek ve sanal kısımlarını birbirinden ayıracak olursak aşağıdaki gibi ifadeler ortaya çıkar.

$$\varepsilon' = \varepsilon_\infty + (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \frac{1}{|A|^2} \left[1 + \sin\left(\frac{\pi\alpha}{2}\right) (\omega\tau)^{1-\alpha} \right] \quad (2.16)$$

ve

$$\varepsilon''(\omega) = (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \frac{1}{|A|^2} \left[(\omega\tau)^{1-\alpha} \cos\left(\frac{\pi\alpha}{2}\right) \right]. \quad (2.17)$$

Denklemlerdeki A ifadesi aşağıdaki şekilde tanımlanır.

$$A = \left[1 + 2(\omega\tau)^{1-\alpha} \sin\frac{\alpha\pi}{2} + (\omega\tau)^{2(1-\alpha)} \right]^{1/2} \quad (2.18)$$

A ifadesini de dielektrik sabitin gerçek ve sanal kısımlarını gösteren denklemlerde yerine koyarsak Denklem 2.19 ve Denklem 2.20'deki şekilde aşağıdaki gibi ifade edilir.

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \left\{ 1 + (\omega\tau)^{1-\alpha} \sin\left(\frac{\pi\alpha}{2}\right) \right\}}{1 + 2(\omega\tau)^{1-\alpha} \sin\left(\frac{\pi\alpha}{2}\right) + (\omega\tau)^{2(1-\alpha)}} \quad (2.19)$$

ve

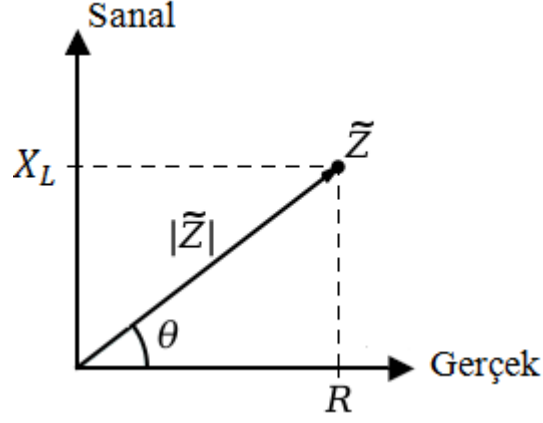
$$\varepsilon''(\omega) = \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)(\omega\tau)^{1-\alpha} \cos\left(\frac{\pi\alpha}{2}\right)}{1 + 2(\omega\tau)^{1-\alpha} \sin\left(\frac{\pi\alpha}{2}\right) + (\omega\tau)^{2(1-\alpha)}}. \quad (2.20)$$

2.3 Empedans Özellikleri

Z ile gösterilen empedans, bir elektronik bileşen, devre veya sistemin alternatif ve/veya sürekli tek bir yöne hareket eden elektrik akımına karşı koyan öz direncin ifadesidir. Empedans, direnç ve reaktans olarak adlandırılan iki bağımsız skaler (tek boyutlu) fenomenlerden oluşan bir vektör (iki boyutlu) niceliktir. R ile gösterilen direnç, bir maddenin atomları arasındaki elektronların hareketine karşı koyma derecesinin bir ölçüsüdür. Atomlar elektronları ne kadar kolay verir ve/veya kabul ederse, direnç o kadar düşük olur ve bu da pozitif gerçekte sayı *ohm* olarak ifade edilir. Direnç, alternatif akım (ac) ve ayrıca doğru akım (dc) ile gözlenir.

X ile gösterilen reaktans ise, bir elektronik bileşenin, devrenin veya sistemin, her bir ac çevriminde akım ve gerilim dalgalanması sırasında enerji depolayıp serbest bırakma derecesinin bir ifadesidir. Reaktans, sanal ohm sayısı ile ifade edilir. ac için gözlenir, ancak dc için gözlenmez. ac, reaktans içeren bir bileşenden geçtiğinde, enerji manyetik alan biçiminde depolanabilir ve salınabilir, bu durumda reaktans endüktiftir ($+jX_L$ ile gösterilir), veya enerji bir elektrik alanı şeklinde depolanabilir ve serbest bırakılabilir, bu durumda reaktans kapasitiftir ($-jX_C$ ile gösterilir).

Karmaşık empedans düzleminin grafiksel gösterimi aşağıda gösterilmiştir.



Şekil 2.1. Karmaşık empedans düzleminin grafiksel gösterimi

Seri devrelerde dirençler ve reaktanslar birbirinden bağımsız olarak toplanır. Aşağıdaki denklemdeki gibi ifade edilir.

$$Z_{RL} = R + jX_L \quad (2.21)$$

İndüktörün yerine 1 Farad'lık bir kapasitör konursa, karmaşık empedans aşağıdaki şekilde ifade edilir.

$$Z_{RC} = R - jX_C. \quad (2.22)$$

Karmaşık empedans ölçümleri ise çoğunlukla malzemelerin yüzey ve hacim özelliklerini ayırt etmek için kullanılmaktadır. Malzemelerin yüzey ve hacim özelliklerinin irdelenmesi, ilgili malzemenin iletim özelliklerini anlayabilmek açısından oldukça önem arz etmektedir. Bunların akabinde karmaşık empedans, aşağıdaki gibi ifade edilir (Purohit ve Choudhary, 2019; Saha vd., 2017; El-Gendy vd., 2012).

$$Z^* = Z' - jZ'' = R - jX. \quad (2.23)$$

Burada Z' karmaşık empedansın gerçek kısmını ve Z'' ise karmaşık empedansın sanal kısmını ifade etmektedir. R karmaşık empedansın gerçek kısımlarını ifade eden rezistans ve X ise karmaşık empedansın sanal kısımlarını ifade eden reaktansı temsil etmektedir.

Karmaşık empedans ifadesini karmaşık dielektrik sabit ifadesi ile ilişkilendiren denklem aşağıdaki gibidir (Pradhan vd., 2008).

$$Z'(\omega) = \varepsilon'' \left[\omega C_0 (Z'(\omega))^2 + (Z''(\omega))^2 \right] \quad (2.24)$$

ve

$$Z''(\omega) = -\varepsilon' \left[\omega C_0 (Z'(\omega))^2 + (Z''(\omega))^2 \right]. \quad (2.25)$$

Alternatif akım bir empedans üzerinden geçtiği zaman, geçen akım ile gerilim arasında 0° ile 90° arasında bir faz farkı oluşabilir. Faz farkı sıfıra eşit olduğu zaman empedans tamamen resistif yani sadece direnç olur. Faz farkı 90° (pozitif veya negatif) olduğunda ise empedans indüktif ($+90^\circ$) veya kapasitif (-90°) yani reaktans olur. Akım ve gerilim arasındaki bu faz farkı, faz açısı (θ) olarak tanımlanır ve Denklem 2.26' da görüldüğü gibi temsil edilir.

$$\theta = \tan^{-1} \left(\frac{Z''}{Z'} \right). \quad (2.26)$$

2.4 Elektrik Modül Özellikleri

Bazı malzemelerde yapısındaki safsızlıklardan dolayı arayüzeysel kutuplanma meydana gelmektedir. Genellikle iletken katkılı sistemlerde meydana gelen arayüzeysel kutuplanmadan dolayı iletkenlik belirsizleşir. Yüksek olabilen dielektrik geçirgenlik ve yüksek iletkenlikten dolayı ara yüzeysel durulma net bir şekilde görülmez. Mc Crum ve arkadaşları tarafından (Mc Crum, 1967) 1967 yılında ortaya atılan elektrik modülü eşitliği ile bu zorluğun üstesinden gelebilmektedir. Ayrıca elektrik modülü kullanılarak düşük frekanslardaki iletkenlik ve geçirgenliğin büyük değerlerindeki değişiklikler minimuma indirgenebilmektedir.

Elektrik modülü, karmaşık dielektrik sabitin tersidir ($M^* = \frac{1}{\varepsilon^*}$). Uzay yükü gevşeme fenomenini analiz etmek için, modülüs analizi artık iyonik iletkenlikleri incelemek için yaygın olarak kullanılmaktadır (Richert ve Wagner, 1988).

Kompleks elektrik modülü (ters kompleks geçirgenlik, $M^*(\omega)$) ařađıdaki eřitlikle belirlenir (Mc Crum, 1967; Tsangaris vd, 1998; Ranko ve Hermann, 1998).

$$M^* = M' + jM'' \quad (2.27)$$

Burada $M'(\omega)$ karmařık elektrik modülün gerçek kısmına, $M''(\omega)$ ise sanal kısmına karřılık gelir ve ařađıdaki řekilde ifade edilir.

$$M' = \frac{\epsilon'}{(\epsilon')^2 + (\epsilon'')^2} \quad (2.28)$$

ve

$$M'' = \frac{\epsilon''}{(\epsilon')^2 + (\epsilon'')^2} \quad (2.29)$$

2.5 Optik Özellikler

Iřık ile madde etkleřtiđinde ıřıđın bir kısmı madde tarafından sođrulurken bir kısmı ise yansımaktadır. Iřıđın sođurulması ıřıđın içinden geçtiđi malzemenin özelliklerine bađlıdır. Homojen bir ortamın son derece ince bir tabakasından iletilen ıřıđın yoğunluđunun kaybının, bu yoğunluk ve tabaka kalınlıđı ile orantılı olduđu řeklindeki en basit varsayım Beer-Lambert yasađı olarak bilinir. Malzemelerin sođurma spektrumları bu yasa tarafından tanımlanmıřtır (Owen., 1996; Hofmeister., 2018). Bu yasa,

$$A = -\log T = -\log(I/I_0) = \log(I_0/I) = \epsilon bc \quad (2.30)$$

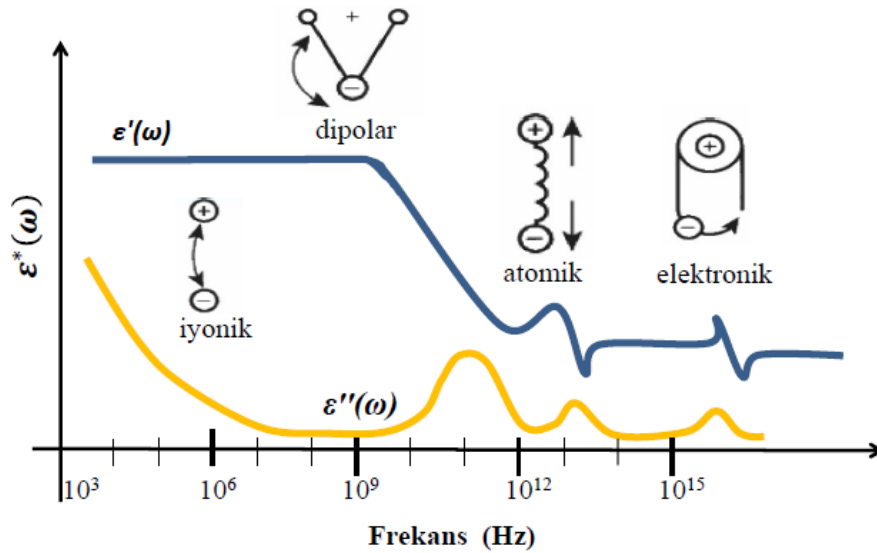
denklemiyle verilmiřtir. Burada A , T , I , b ve c sırasıyla sođurma, geçirgenlik, iletilen radyasyon yoğunluđu, gelen radyasyon yoğunluđu, sönme katsayısı, yol uzunluđu ve sođurma konsantrasyonunu temsil eder. Amorf malzemelerin optik özellikleri Tauc yaklařımı ile analiz edilir. Bu yaklařım ařađıdaki řekilde ifade edilir (Tauc., 1968; Said vd., 2020).

$$\alpha hv = B(hv - E_g)^n \quad (2.31)$$

Bu denklemde, α , h , ν , B , E_g ve n sırasıyla soğurma katsayısı, Plank sabiti, gelen fotonun frekansı, elektron mobilitesine bağlı bir sabit, optik bant aralığı ve doğrudan geçişler için 0.5, dolaylı geçişler için 2 olan birimsiz bir sabittir.

2.6 Kutuplanma Mekanizmaları

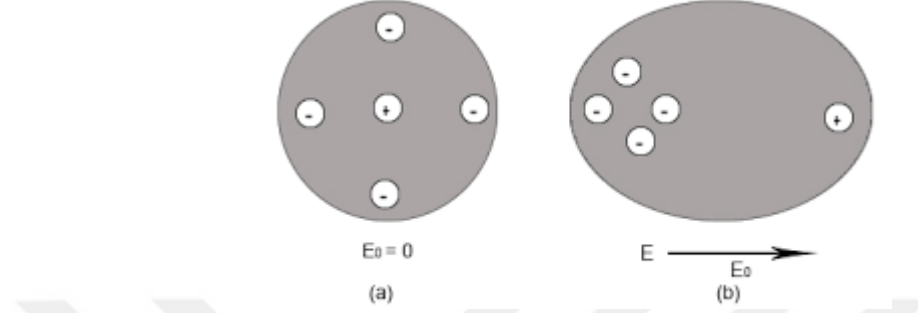
Polarizasyona şu açıdan bakarsak bir malzemenin sadece bir dış alana tepkisinden kaynaklanan dielektrik yer değiştirmesi olarak tanımlayabiliriz. Dielektriği genel olarak polar ve polar olmayan olmak üzere iki ana gruba ayırabiliriz. Polar olanlar moleküllerindeki atomların konumları dolayısıyla pozitif ve negatif iyonların yük merkezleri belli bir noktada çakışmadığı için kalıcı elektrik dipol momentlerine sahip olurlar. Bu elektrik dipol momentleri çoğu zaman çift kutup (dipolar) momentleridir. Bu sebeple bunlara çift kutuplu adını veririz. Dielektrikler de esas olarak dört tip kutuplanma meydana gelmektedir ve şu şekilde sıralayabiliriz; elektronik kutuplanma, iyonik kutuplanma, yönelme kutuplanması ve arayüzey-uzay yük kutuplanmasıdır (Şekil 2.2) (Von Hippel, 1959; Kasap, 2018).



Şekil 2.2. Frekansa bağlı dielektrik kutuplanma çeşitleri (Öztürk, 2018; El Khaled vd., 2016; Özşucu, 2019; Toker, 2020; Delipınar, 2013; Zengin, 2007)

2.6.1 Elektronik kutuplanma

Dielektrik malzemede pozitif yük ve negatif yükün yer deęiřtirmesi nedeniyle meydana gelen polarizasyona elektronik polarizasyon denir.



Şekil 2.3. Elektronik kutuplanma şematik gösterimi (Omran, 2020)

Şekil 2.3a, bir atomun elektrik alan yokken yük dağılımını gösterirken 2.3b, dış elektrik alan varlığında yük dağılımını gösterir. Bu işlem, malzemenin tamamında meydana gelir ve tüm malzeme polarize olur. Çekirdek ve yük bulutu yoğunluğu küçük bir mesafe ile ayrıldığından, her atomda dipol momenti indüklenir. İndüklenen dipol momenti P_e , dış alanla orantılıdır (Zengin, 2007; Günel, 2017; Omran, 2020).

2.6.2 Atomik kutuplanma

Elektronik boyutta yerdeęiřtirmenin bir sonucu olarak meydana gelen elektronik kutuplanmanın tam tersi atomik kutuplanma çok atomlu bir molekülün bir dış elektrik alanı altında molekülü oluşturan atom merkezlerinin göreceli olarak birbirlerine göre eser miktarlarda yer deęiřtirmesi sonucunda meydana gelir (Raju, 2017). Aslında bu döngü normal örgü titreşimlerinin bozulması, yani bir kristal örgüdeki atomların hareketidir ve bu sebeple atomik kutuplanmaya titreşim kutuplanması da denir (Zengin, 2007; Öztürk, 2018).

2.6.3 İyonik kutuplanma

İyonik bir örgü içinde pozitif iyonlar, uygulanan dış alan yönünde yer deęiřtirirken negatif iyonlar ise alanın zıt yönünde yer deęiřtirirler. Bu durum gerçekleştiğinde tüm

madde içinde açık bir kutuplanma meydana gelir. İyonik kutuplanma NaCl ve KCl gibi iyonik bileşiklerde meydana gelmektedir (Zengin, 2007; Çakır, 2016; Öztürk, 2018).

2.6.4 Yönelme kutuplanması

Bu kutuplanma su, aseton, alkol gibi polar sıvılarda ve HCl gibi polar gazlarda meydana geldiği gibi bunun yanısıra dipol momente sahip katı yapılarda da oluşur. Bu tür kutuplanma sabit bir dipol momente sahip moleküllerin elektrik alan doğrultusunda yönelmeleri ile gerçekleştiği için dipolar kutuplanma olarak da bilinir. İlk olarak Debye tarafından ele alınıp incelenmiştir. Yukarıda da değinildiği gibi bazı moleküller sürekli bir dipol momente sahiptir. Bir örnekle açıklayacak olursak HCl molekülü Cl⁻ iyonundan H⁺ iyonuna doğru olmak üzere sürekli bir dipol momenti vardır. Sıvı ya da gaz fazlarında, bu moleküller, bir elektrik alan olmadığında, termal çalkalamanın sonucu olarak raslantısal yönlendirilir. Bir dış E elektrik alanı uygulandığında ise dış elektrik alan bir tork uygulayarak dipolleri kendisine paralel olarak sıralamaya çalışır (Kasap, 2018). Bunun sonucunda da yönelme kutuplanması meydana gelecektir. Cl⁻ ve H⁺ yükleri zıt yönlerde yönelirler. Ama Cl⁻ ve H⁺ arasındaki katı bağ bu iyonları bir arada tutar. Yönelme kutuplanması (10⁻⁹-10⁻³ sn) zaman aralığında, radyo frekans bölgesinde ortaya çıkar. Elektronik ve iyonik kutuplanmanın aksine yönelme kutuplanması kuvvetli bir biçimde sıcaklığa bağlıdır. İyonik ve elektronik kutuplanmanın ortak noktası yüklerin dönmeden birbirinden uzaklaşmasıdır. Yönelme kutuplanmasında kalıcı çift-kutuplar dış elektrik alan etkisiyle dönmeye zorlanırlar ve alanın hızlı değişimlerinde herhangi bir etkisi yoktur. Düşük frekanslarda her üç kutuplanma da meydana gelir. Frekans şiddeti arttıkça önce kalıcı sonra iyonik ve en son elektronik çift-kutuplar ki son ikisi etkileşmeli çift-kutup olup dış alanın değişimini izleyemez duruma gelirler. Böylece statik dielektrik sabiti 1 değerine ulaşır (Tareev, 1979).

2.6.5 Arayüzey-Uzay yük kutuplanması

Arayüz polarizasyonu, iki malzeme arasında ya da bir malzemenin kendi içinde iki bölge arasında bir arayüzeyde bir yük birikimi oluşmasıyla ortaya çıkar. Elektronik, iyonik ve yönelme kutuplanmalarının ortak noktası, malzemenin sınır yüklerinin yer değiştirmesi ile etkilerinin ortaya çıkmasıdır. Uzay yükü veya arayüzey kutuplanması diğerlerinden farklı olarak hareketli yüklere sahiptir. Diğer kutuplanma çeşitlerinde atom ve moleküller

kendilerini çevrelerinin kutuplanması ile deęişikliğe uğrayan, temelde uygulanan dış alanı da içeren bir yerel alan etkisi altında bulurlar. Arayüzey kutuplanmasında ise malzemedeki uzay yüklerinin veya dielektriğin arayüzeylerindeki yüzey yüklerinin birikiminde büyük oranda elektrik alan deęişiklikleri etkili olmaktadır.

Poli-kristal malzemelerin birleşme yüzeylerinde serbest yükler birikmesi söz konusu olabilir. Bu durum ara yüzey kutuplanmasını ortaya çıkmasına sebep olur. Biriken yüklerin elektrotlardaki görüntü yüklerini etkilemesi diğer kutuplanmalara da olumlu bir biçimde etkiler. Ara yüzey kutuplanması üzerine temel düşünce kristaller arası ayırıcı ara yüzeylerle ilişkilidir. Bu ara yüzeyler serbest yüklerin bir kristalden diğerine hareketini engelleyici, kristalleri birbirinden izole edici bir görev üstlenir. Bu engeller, herhangi bir hava katmanı ya da yüzeyin bir yalıtkan ile kaplanmasıyla meydana geldiğinden söz edebiliriz. Bu konu ile ilgili çalışmalardan bir kısmı ara yüzey kutuplanmasının sebebinin, tek bir kristaldeki kusurlar (safsızlıklar, çatlaklar) üzerinde boşluk yüklerinin birikmesi olduğunu öne sürmüşlerdir (Tareev, 1979; Von Hippel, 1959; Fröhlich, 1958). Ara yüzey yük kutuplanması için “malzemenin içerisine herhangi bir biçimde yerleşmiş uzay yüklerinin elektrotlar üzerindeki görüntü yüklerini etkilemesinin bir sonucudur” diyebiliriz. Bu kutuplanma mekanizması, düşük ve orta düzey frekanslarda dielektriklerin kendine özgü davranışları üzerinde önemli rol oynamaktadır (Popescu ve Bunget, 1984).

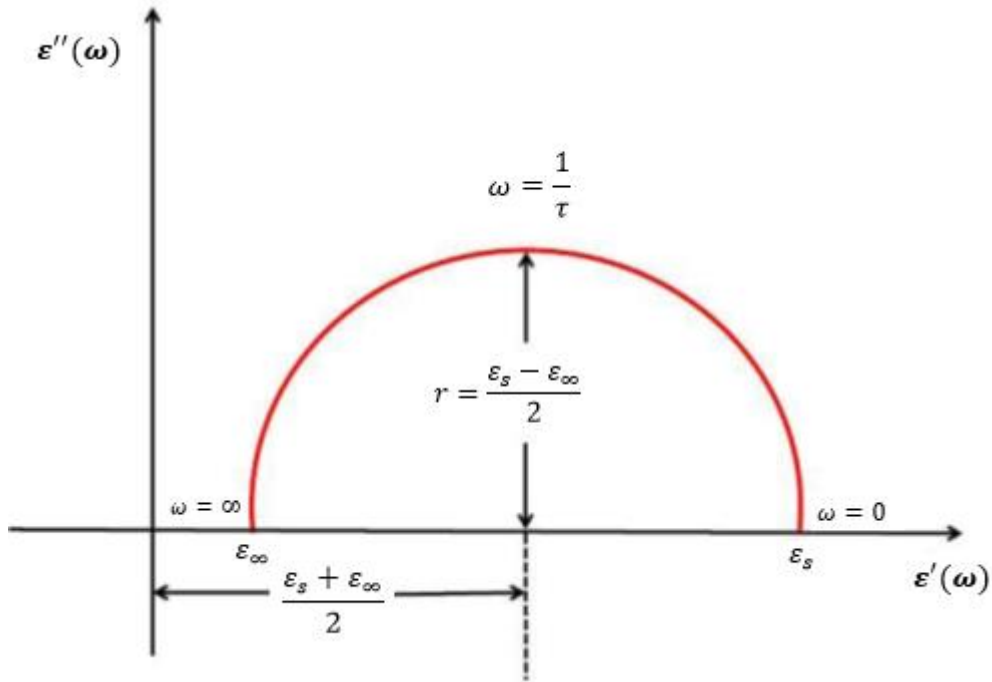
2.7 Dielektrik Durulma Mekanizmaları

Dielektrik malzemelerde durulma mekanizmaları ‘ τ ’ ile TEMbolize edilen ve bir malzeme içinde bulunan atom ya da moleküllerin mobilitesinin (hareketliliğinin) bir ölçüsü olan “durulma zamanı” olarak adlandırılır. Dielektrik malzemelerin içinde bulunan serbest yüklerin uygulanan dış alan etkisiyle sıralanmaları boyunca meydana gelen iç çarpışmalar, durulma zamanının eksponansiyel olarak azalmasına sebep olur.

Uygulanan alan malzeme üzerinden kaldırıldığında süreç tam tersine döner ve dielektrik sistem aynı durulma zaman sabitiyle eski durumuna dönme eğilimine girer (Callister, 2007). Bütün dielektrik maddelerin ‘ f ’ ile sembolize edilen karakteristik bir durulma frekansı vardır. Bu frekans, durulma zamanı ile ters orantılıdır.

2.7.1 Cole-Cole durulma modeli

Bir dielektrik maddenin özelliklerini saptamak için bazı ölçümler yapılır. Frekans ve sıcaklık gibi bazı değişkenlere karşı gerçekleştirilen bu dielektrik ölçümlerde maddenin belirleyici özelliklerinden biri olan geçirgenlik, dielektrik kayıplar gibi bazı nicelikler hakkında bilgi sahibi olmamıza olanak sağlar. Bu niceliklerin frekansın logaritmik değerine denk çizilen grafikleri olağanüstü bilgiler sunabilir. Ölçümler sonucunda elde edilen bilgiler kullanılarak pek çok grafik oluşturulabilir. Ama aynı kartezyen koordinat sistemi üzerinde çizilen $\epsilon' - \epsilon''$ grafiği en kullanışlı pratik metotlardan birisidir. Bunun en kuvvetli sebebi ise bu tür grafiğin dielektrik enerjini depolama ve kaybetme oranları net olarak görülebilir. Bu çizime “argand diyagramı” adı verilir ve ilk defa Cole-Cole tarafından gerçekleştirildiği için “Cole-Cole çizimi”de diyebiliriz. Cole-Cole çizimi, bir sistemin tek bir durulma zamanına sahip olup olmadığını bulmak için özel bir yöntem sağlar. Bu metot, dağılım fonksiyonunun farklı tiplerini karakterize etmek için de kullanışlıdır. Tek durulma zamanlı bir dielektrik için, Cole-Cole çizimi bir yarım dairedir ve argand diyagramı üzerinde aşağıdaki gibi gösterilebilir.



Şekil 2.4. Tek durulma zamanlı karmaşık dielektrik sabit için için Cole-Cole çizimleri (Öztürk, 2018; Nelson, 1994)

Debye ilişkisini gösteren tek bir durulma frekansına sahip bir malzeme için, merkezi yatay $\varepsilon' = 0$ eksenini üzerinde olan ve kayıp faktörü pikinin ise $1/\tau$ 'da olduğu bir yarım daire meydana gelir. Tek durulma zamanlı bir dielektrik için bu şekillenim $\varepsilon'' = (\varepsilon_s + \varepsilon_\infty)/2$ 'de ε' eksenini üzerinde merkezi olan ve yarıçapı $\varepsilon'' = (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)/2$ olan bir yarım daire şeklindedir. $\omega\tau = 1$ iken $\varepsilon'' = (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)/2$ değerinde ε'' 'en yüksek değerini alır. Cole-Cole, Debye dielektrik ifadesini kompleks düzlemdeki yay şekli ile genelleştirmiş ve bunu durulma zamanı dağılımlarının belirli bir tipine uygulamıştır.

2.7.2 Debye durulma modeli

Tek bir durulma zamanına sahip malzemelerin durulma frekansı, frekansın bir fonksiyonu olan geçirgenliğe karakteristik bir tepki olarak ortaya çıkan Debye durulma modeli ile tanımlanır. Diğer bir deyişle, bir tek durulma zamanlı sistemlerin karmaşık dielektrik sabitleri Debye modeliyle açıklanır. Dielektrik sabitin gerçek kısmı, durulma frekansının meydana geldiği geçiş bölgesinde sabittir. Buna ek olarak, dielektrik sabitin gerçek kısmı, durulma frekansının bulunduğu pik (tepe) değerlerinin üstünde ve altında giderek küçük değerler alır. Debye modelini açıklayan en iyi metod, sistemin şiddetle bastırılmış harmonik osilatör gibi düşünülmesiyle mümkün olacaktır. Burada maksimum devinim frekansı sistemin zaman sabitinin temel belirleyicisi olur (Debye, 1929). Dielektrik sabitin Debye eşitliği, Denklem 2.32' de verildi.

$$\varepsilon^* = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + i\omega\tau} \quad (2.32)$$

Bu denklemin gerçek ve sanal kısımlarına ayrılırsa;

$$\varepsilon' = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (2.33)$$

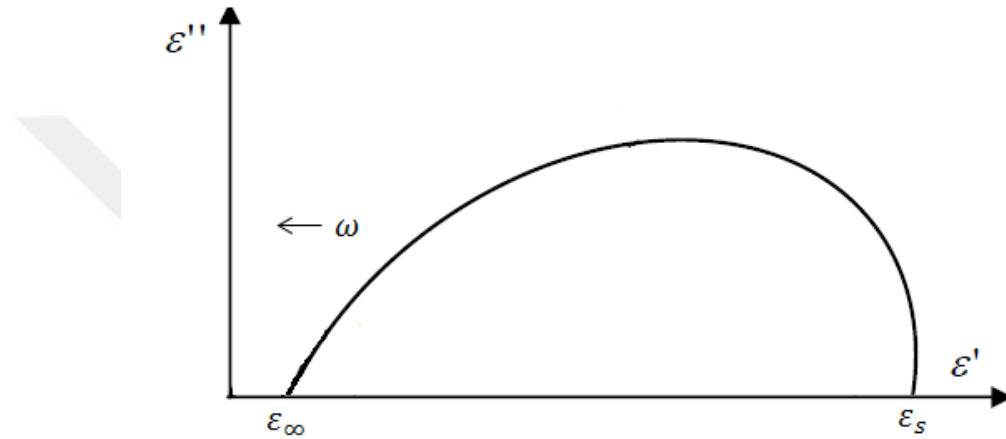
ve

$$\varepsilon'' = (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \frac{\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (2.34)$$

denklemleri elde edilir. Burada $\omega \rightarrow 0$ olduğunda ε_s ve $\omega \rightarrow \infty$ ifadeleri reel geçirgenliğin limit değerlerini ifade etmektedir.

2.7.3 Cole-Davidson durulma modeli

Cole-Davidson denklemi durulma zamanlı dağılım fonksiyonu eğer asimetric bir şekilde genişlerse kullanılır. Yay, düşük frekanslarda dairesel olarak yatay eksene (ε') yaklaşırken yüksek frekanslarda, düz bir çizgi boyunca yatay eksene yaklaşır.



Şekil 2.5. Cole-Davidson modelinin şematik çizimi

Debye eşitliğindeki dielektrik sabitin gerçekte ve sanal kısımları ε' ile ε'' arasındaki grafiğin, merkezi gerçekte eksenin altında olan bir yarı daire olduğunu göstermektedir. Ortaya çıkan sapma Cole ve Cole (Cole ve Cole, 1941), Davidson ve Cole (Davidson ve Cole, 1951), Havriliak ve Negami (Havriliak ve Negami, 1966), Jonscher (Jonscher, 1977) vb. tarafından önerilen çeşitli ampirik denklemlerle formüle edilmiştir. Bu denklemler sadece çeşitli malzeme ve maddelerin dielektrik gevşemesini sınıflandırmak için değil, aynı zamanda dielektrik gevşeme verilerinden gevşeme parametrelerini çıkarmak için de kullanılır. Dielektrik gevşemenin analizi için genellikle karmaşık düzlem grafiği (veya Cole-Cole grafiği) kullanılabilir. Karmaşık düzlem grafiğinde, kayıp faktörü, dielektrik gevşemenin tek bir gevşeme süresine, yani Debye'ye sahip olması durumunda bir yarı daireyi izleyerek, göreceli geçirgenliğe ε' karşı çizilir. Bununla birlikte, karmaşık düzlem çizimleri, genellikle gevşeme sürelerinin dağılımını gösteren bir yarı daireden sapar. Cole-Davidson modelinin Cole-Cole grafiği, gerçekte

ekseni yüksek ve düşük frekanslarda farklı açılarda kesen asimetrik bir eğridir. Gevşeme sürelerinin dağılımı da asimetriktir (Şekil 2.5).

Cole-Davidson tarafından ortaya atılan kompleks geçirgenlik için eşitlik aşağıdaki şekildedir.

$$\varepsilon^* = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{(1 + (i\omega\tau))^\gamma} \quad (2.35)$$

Bu eşitlik Şekil 2.5'teki gibi basık bir yay meydana getirir. Bu eşitlikte, kompleks geçirgenliğin gerçek ve sanal kısımları ayrılırsa;

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_\infty + (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)(\cos \phi)^\gamma (\cos(\gamma\phi)) \quad (2.36)$$

ve

$$\varepsilon''(\omega) = (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)(\cos \phi)^\gamma (\sin(\gamma\phi)) \quad (2.37)$$

denklemleri elde edilmiştir. Burada $\tan(\phi) = \omega\tau$ ifadesi ne eşittir. Maksimum kayıpta $\omega\tau \neq 1$ dir (Davidson ve Cole, 1950) .

2.7.4 Havriliak-Negami durulma modeli

Havriliak-Negami durulma modeli, birden fazla durulma zamanına sahip dielektrik özelliklerin dielektrik rahatlamalarını açıklayan modeldir. Bu model, dielektrik durulma süreçleri üzerinde büyük etkisi olan durulma modeli hakkında bilgi verir ve hangi durulma modelinin etkisi altında olduğunun net bir şekilde belirlenmesinde net fikir verir. Bu model bazen Cole-Cole modeli, bazen ise Cole-Davidson modeli olabilmektedir. Bunun yanında her iki model de ara sıra olmaktadır. Bu durumda kompleks geçirgenlik

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{(1 + (i\omega\tau)^{1-\alpha})^\gamma} \quad (2.38)$$

şeklinde verilir. Denklem 2.38'de $\alpha = 1$ $0 < \beta \leq 1$ aralığında Cole-Cole modelinden, $\beta = 1$, $0 < \alpha \leq 1$ aralığında Cole-Davidson modelinden, $\alpha = 1$ ve $\beta = 1$ iken $0 < \beta \leq 1$ ve $0 < \alpha \leq 1$ aralığından Debye modelinden bahsedilir (Havriliak ve Negami, 1966).

2.8 Smith chart (Smith abağı)

Elektronik hesap makinelerinden önceki günlerde mühendisler, karmaşık mühendislik problemlerini hızlı bir şekilde ve kabul edilebilir bir doğruluk derecesiyle çözmek için çeşitli grafik hesaplama cihazlarına veya nomogramlara başvurdular. Smith abağı böyle bir nomogramın en iyi bilinen örneğidir. Smith abağı, adını 1939'da Bell Telephone Laboratories (Smith, 1939) için çalışırken icat eden Phillip H. Smith'ten almıştır. Smith abağı modern bilgisayar ve hesap makinesi yazılımı tarafından bir hesap makinesi rolünde büyük ölçüde yerini almış olsa da, grafik, emmitanslar ve yansıma katsayıları arasındaki ilişkiyi görselleştirmek için hala çok yararlı bir yol sağlar ve mikrodalga cihazlar ve devrelerin performansıyla ilgili verileri görüntülemek için rutin olarak kullanılır.

Bir iletim hattına bakan hem karmaşık empedans hem de yansıma katsayısı, kayıpsız bir iletim hattı boyunca yükten jeneratöre doğru uzaklaştıkça değişecektir. Hat boyunca empedanstaki değişim biraz karmaşık olsa da yansıma katsayısındaki değişim oldukça basittir, çünkü sadece yansıma katsayısının açısı değişirken büyüklük sabit ve eşit kalır. Bu, yükten jeneratöre doğru olan yolun yansıma katsayısı düzleminde sabit yarıçaplı bir daire tarafından tanımlandığı anlamına gelir. İletim hattı üzerindeki herhangi bir noktadaki empedansı belirlemenin grafiksel bir yolu, yansıma katsayısı düzleminde sabit direnç ve sabit reaktans konturlarının üst üste bindirilmesiyle elde edilebilir. Bu, esasen bir Smith abağının nasıl oluşturulduğunu anlatmaktadır.

Smith abağı, empedans ve yansıma katsayısını ilişkilendiren denklemin grafiksel bir temsili olarak aşağıdaki gibi ifade edilir

$$\Gamma = \frac{Z - Z_0}{Z + Z_0} \quad (2.39)$$

Smith abağının amacı yansıma katsayısının varlık alanındaki tüm olası empedansları belirlemektir. Bunu yapmak için, hat empedansının genel tanımı aşağıdaki şekilde tanımlanabilir.

$$Z(d) = \frac{V(d)}{I(d)} = Z_0 \frac{1+\Gamma(d)}{1-\Gamma(d)} \quad (2.40)$$

Bu çizilmek istenen grafiğin karmaşık $Z(d) = f\{Re(\Gamma), Im(\Gamma)\}$ fonksiyonunu sağlar.

Normalize empedans kavramı

$$z_n(d) = \frac{Z(d)}{Z_0} = \frac{1+\Gamma(d)}{1-\Gamma(d)} \quad (2.41)$$

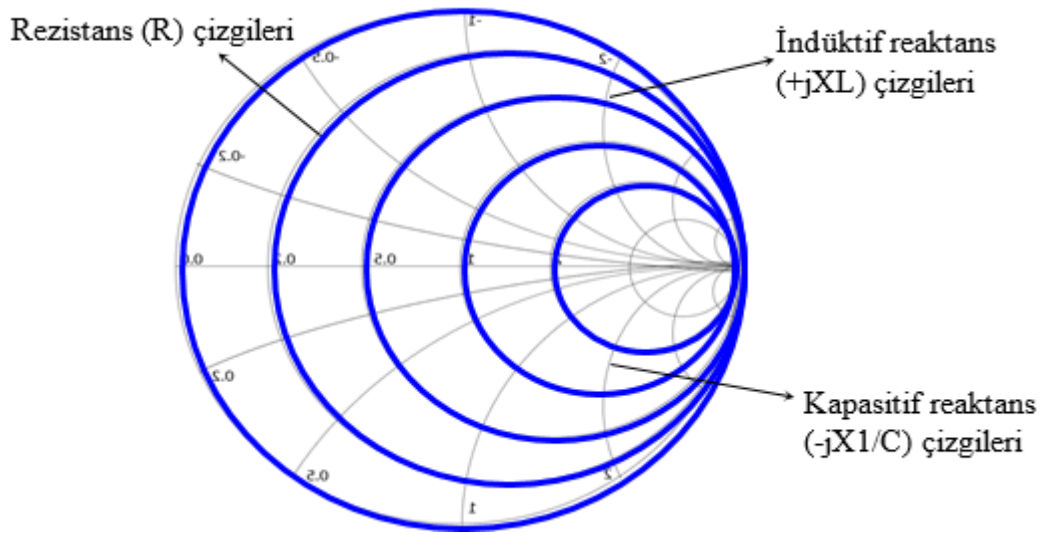
normalize empedans, normalize direnç r (gerçek kısım) ve normalize reaktans x 'i (sanal kısım) tanımlayan eğriler kullanılarak Smith abağında temsil edilir.

$$z_n(d) = Re(z_n) + jIm(z_n) = r + jx. \quad (2.42)$$

Yansıma katsayısı koordinatlar cinsinden ifade edilir ise

$$\Gamma(d) = Re(\Gamma) + jIm(\Gamma) \quad (2.43)$$

şeklinde ifade edilir.



Şekil 2.6. Smith chart (Smith abağı)

Karmaşık empedans $Z^* = R \pm jX$ şeklinde ifade edilmektedir ve görüldüğü üzere gerçekte ve sanal bileşenlerden meydana gelir. Bu denklemde daha önce de bahsedildiği üzere 'R' rezistansı, 'X' ise reaktansı temsil etmektedir. Kompleks empedansta ' - jX ' devrenin kapasitansını, ' + jX ' ise devrenin indüktansını ifade eder.

Kısacası bir elektronik devre veya iletim hattındaki Smith abağı rezistans ve reaktans çizgilerinden oluşmaktadır ki Smith abağı da devrenin empedansını tanımlayan grafiklerdir. Şekil 2.6'da da görüldüğü üzere Smith abağı diyagramındaki empedansın gerçekte kısmını temsil eden rezistans koordinatları bir dizi dairelerden oluşmaktadır. Bu koordinatlar grafiği yataydaki merkez orijin çizgisinin sağ ucuna teğettir. Bu teğetlik fenomenine sonsuzluk noktası denmektedir. Teğet olan bu daireler sabit bir direnç (R) değerini tanımlamaktadır. En büyük daire ise şekilden de görüleceği üzere sıfır değerine denk gelmektedir. En küçük daire ise devredeki en yüksek direnç değerine denk geldiğini göstermektedir. Diyagramın üst yarısı, indüktif reaktans (+jXL) için olan koordinatları gösterirken diyagramın alt yarısı kapasitif reaktans (-jX/C) için olan koordinatları gösterir. Tüm bunlardan yola çıkarak Smith chart (Smith abağı) diyagramındaki koordinatlar mikrodalga bölgesindeki bir RL veya RC devresine karşılık geldiği söylenebilir. Bunlardan yola çıkarak karmaşık dielektrik sabit, elektrik modül ve empedansının Cole-Cole düzlem çizgileri yarım daire oluşturduğu takdirde bu durum Smith abağıdaki bir RL veya RC elektrik devresine karşılık gelmektedir (Smith, 1939; Pozar, 2005; Gonzalez, 1997; Caspers, 2012) .

BÖLÜM III

DENEYSEL KISIM

3.1 Saf Hidrojel Sentezi ve Kalsit Depolama

Akıllı jeller olarak da bilinen hidrojeller dış ortamlardan gelen uyarıcılara karşı tepki verebilen polimerlerdir. Hidrojeller sıvı bir ortama konduklarında üç boyutlu ağları sayesinde sıvı ortamda şişerler lakin çözünmezler. Hidrojellerin çok fazla sentezleme yöntemi vardır. Bu tez çalışmasında Kalsit-I (KI) ve Kalsit-II (KII) ile sembolize edilen kalsit (kalsiyum karbonat (CaCO_3) katkılı hidrojeller, sulu ortamda radikal polimerizasyon yöntemi ile sentezlendi. Üretilen numuneler için iki farklı sentezleme yöntemi kullanıldı. KI katkılı hidrojeller için öncelikle saf hidrojeller sentezlendi. Kalsit katkılanması daha sonra gerçekleştirildi. Saf hidrojel için çapraz bağlayıcı N, N'-metilenbis (akrilamid) (MBAAm) nin küçük miktarı ile bağlanmış, iyonik olmayan bir hidrofilik akrilamid (AAm) monomerin serbest radikal çapraz bağlanmış çoklu-polimerizasyon yöntemi tercih edildi. Bu yöntem sayesinde çapraz bağlayıcı olarak N, N metilenbisakrilamid (MBAAm) in olduğu ve başlatıcı olarak da potasyum persülfat kullanıldığı, AMPS-IA hidrojelleri sentezlenmiş oldu. Sentezlenen saf hidrojellerin katkılanması aşamasında, öncelikle 100 cm³'lük erlenler içerisine 50 mg/ml derişimlerde pH'ı 5.0 olan kalsit çözeltilerinden 30 cm³ konuldu. Daha sonra bu erlenlere daha önceden üretilmiş saf hidrojellerden 0.1 gram eklendikten sonra erlenlerin ağızları kapatılır ve 25 °C ayarlanmış çalkalayıcıya yerleştirilerek 24 saat boyunca çalkalanıldı. Daha sonra 55 °C' de etüvde sabit tartıma gelinceye kadar kurutuldu. KII'nin üretilmesi aşamasında ise farklı bir yöntem tercih edildi. KI' deki gibi öncelikle saf hidrojel sentezlenip buna kalsit katkılanması yapılmadı. Kalsit I ile aynı derişimde olan KII direk hidrojel sentezleme aşamasında hidrojellere katkılanıldı. Yani oda sıcaklığında katı olan ve polimer olarak sentezlenebilmesi için sıvı bir çözeltiliye ihtiyaç duyan monomerler birinci yöntemdeki gibi saf sulu çözeltilide değil de kalsitin sulu çözeltilisinde sentezlendi. Yani kalsit katkılanması, hidrojel sentezleme sürecinde gerçekleştirildi. Diğer bütün aşamalar birinci yöntemle benzer gerçekleştirildi.

3.2 Hidrojellere Anyonik Boya Depolama

Asidik kırmızı 45 boya (AK-45) katkılı hidrojelleri hazırlamak için 5 tüp alındı. Uygun miktarlarda 2-Akrilamido-2-metilpropan Sülfonik asit (AMPS) ve itakonik asit (IA) monomerleri, N, N'- metilenbis (akrilamid) (MBAAm) hesaplandı. Her bir falkon tüpe çapraz bağlayıcı ve potasyum persülfat ($K_2S_2O_8$) başlatıcı eklendi. Daha sonra, 1000 ppm'lik önceden hazırlanmış AK-45 boya çözeltisinden 1.25 mL ilave edildi. Daha sonra birinci tüpe önceden hazırlanmış 1000 ppm AK-45 boya çözeltisinden 1,25 mL, ikinci tüpe 2,50 mL, üçüncü tüpe 5,0 mL, dördüncü tüpe 7,50 mL ve beşinci tüpe 10,0 mL eklendi ve her bir tüpün toplam hacmi distile su ile 10.0 mL'ye tamamlandı. Her tüp homojen bir karışım elde edilene kadar vorteks ile karıştırıldı. Daha sonra tüpler önceden 50°C'ye ayarlanmış su banyosuna yerleştirildi ve 24 saat polimerize olmaya bırakıldı. Daha sonra tüplerden çıkarılan jeller birkaç kez bol su ile yıkandı. Birinc, ikinci, üçüncü, dördüncü ve beşinci tüpün jelleri sırasıyla G-AKI25 (AR1), G-AK250 (AK2), G-AK500 (AK3), G-AK750 (AK4) ve G-AKI000 (AK5) olarak sembolize edildi.

3.3 Hidrojellere Anilin ve Anilin Halojenür Depolama

Anilin ve anilin halojenürler (4-Floroanilin, 4-Kloroanilin ve 4-Bromoanilin) katkılı hidrojellerin sentezinde monomer olarak AMPS, çapraz bağlayıcı olarak NNMBAm ve başlatıcı olarak KPSS kullanılmıştır. İlk olarak anilin ve anilin halojenür katkılı hidrojellerin sentezi için dört adet şahin tüpü alınmıştır. Daha önce hazırlanan 50,0 ppm stok solüsyonlardan aynı hacimde birinci tüpe 2,0 mL anilin solüsyonu, ikinciye 4-Floroanilin, üçüncüye 4-Kloroanilin ve dördüncüye 4-Bromoanilin eklendi. Daha sonra 2 akrilamido-2-metilpropan Sülfonik asit, (4.0×10^{-3} mol AMPS), N, N'-Metilenbisakrilamid, (4.0×10^{-4} mol MBAAm) ve potasyum persülfat (2.0×10^{-4} mol $K_2S_2O_8$) eklendi. Daha sonra her bir tüp homojen bir karışım elde edilene kadar vorteks ile karıştırılmıştır. Çözelti 0,40 cm çapında ve yaklaşık 20 cm uzunluğunda poli(vinil klorür) pipetlere çekildi ve uçları kapatılarak 50°C 'ye ayarlanmış termostatlı su banyosuna alındı. 24 saat sonra su banyosundan alınan pipetlerden hidrojeller alınarak birkaç kez bol su ile yıkandı ve yaklaşık 1.0 cm boyunda kesildi; 50 °C 'deki etüvde sabit ağırlığa gelinceye kadar kurutuldu. Çalışmada anilin katkılı birinci tüp, floroanilin katkılı ikinci tüp, kloroanilin katkılı üçüncü tüp ve bromoanilin katkılı dördüncü tüp hidrojeller sırasıyla An, FAn, ClAn ve BrAn olarak sembolize edildi.

3.4 Ölçüm Yöntemi

Panalytical marka Empyrean modeli ile numunelerin X-ışını kırınımı 45 kV ve 40 mA değerlerinde 2 ile 90 derece aralığında incelenmiştir. Ek olarak, numunelerin farklı formlarının kalitatif özellikleri, enerji dağılımlı X-ışını (EDX) EDAX/AMETEK modeli kullanılarak analiz edilmiştir. Numunelerin optik özellikleri A 360 Spektrofotometre model UV spektroskopisi cihazı kullanılarak oda sıcaklığında incelenmiştir. LCR Metre ile numunelerin kapasitans ve kayıp faktör değerleri ölçülmüş, ardından Hioki IM3536 model LCR Meter kullanılarak dielektrik ölçümleri yapılmıştır (Coşkun vd., 2019; Öztük vd., 2021; Okutan vd., 2018; Yalçın vd., 2013; Öztürk vd., 2018; Okutan vd., 2015; Okutan vd., 2021; Coşkun vd., 2017).

3.5 Kullanılan Deneysel Yöntemler

3.5.1 X-ışını kırınımı mikroskobu (XRD) analizi

X-ışını kırınımı analizi (XRD) bir malzemenin kristalografik yapısı, kimyasal bileşimi ve fiziksel özellikleri hakkında ayrıntılı bilgi sağlayan tahribatsız bir tekniktir (Raja vd, 2022; Popescu ve Bunget, 1984). Monokromatik X-ışınlarının ve kristalin bir numunenin yapıcı girişimine dayanır. X-ışınları yeterli enerjiye sahip elektrik yüklü parçacıklar yavaşladığında üretilen daha kısa dalga boylu elektromanyetik radyasyondur. XRD'de üretilen X-ışınları paralelleştirilir ve bir nanomalzeme numunesine yönlendirilir. Burada gelen ışınların numune ile etkileşimi, daha sonra tespit edilen, işlenen ve sayılan kırınımlı bir ışın üretir. Malzemenin her fazı, malzemenin özel kimyası ve atomik düzeni nedeniyle benzersiz bir kırınım modeli üretir. Kırınım modeli, her fazın kırınım modellerinin basit bir toplamıdır. Numunedeki kusur, kırınımına uğramış sinyalin modelini etkiler. Bu durumda, numunenin kusurlu olmasına katkıda bulunan faktörler, bileşim heterojenliği, kristal yapı kusurları, mikro lekeler ve kristalit boyutu olacaktır.

Bu tez çalışmasında numunelerin XRD modelleri $5 \leq 2\theta \leq 95$ aralığında kaydedilmiş ve hidrojel düzlemlerin kristalografik tanımlaması patern ayrışması ile gösterilmiştir. Katkılı hidrojenlerin kırınım tepe noktaları ile miller indis düzlemleri ile arasındaki ilişki incelenmiştir.

3.5.2 Taramalı elektron mikroskobu (TEM) analizi

TEM, ilk olarak Manfred von Ardenne ve çalışma grubu tarafından 1930'lu yıllarda ortaya atılmıştır. Taramalı Elektron Mikroskobu (TEM), analiz için büyütülmüş bir görüntü üretmek üzere bir numuneyi bir elektron ışını ile tarayan bir test işlemidir. Yöntem aynı zamanda TEM analizi ve TEM mikroskobu olarak da bilinir ve katı inorganik malzemelerin mikroanalizinde ve başarısızlık analizinde çok etkili bir şekilde kullanılır. Elektron mikroskobu yüksek büyütme oranlarında gerçekleştirilir, yüksek çözünürlüklü görüntüler üretir ve çok küçük özellikleri ve nesnelere hassas bir şekilde ölçer.

TEM analizi sırasında üretilen sinyaller, iki boyutlu bir görüntü üretir ve EDS özelliği ile birlikte kullanıldığında dış morfoloji (doku), kimyasal bileşim ve örneği oluşturan malzemelerin yönü dahil olmak üzere örnek hakkında bilgi verir.

Sistemin EDS bileşeni, kalitatif bilgi için numunenin içindeki veya yüzeyindeki öğeleri belirlemek üzere TEM analizi ile birlikte uygulanır. Ayrıca yarı kantitatif sonuçlar için element bileşimini ölçer ve doğada organik olmayan yabancı maddeleri ve metal üzerindeki kaplamaları tanımlar.

TEM ekipmanı, minimum hazırlık ile ıslak ve/veya iletken olmayan numuneleri tutabilen bir değişken basınç sistemi içerir. Geniş numune odası, çapı 200 mm'ye (7,87 inç) ve yüksekliği 80 mm'ye (3,14 inç) kadar olan numunelerin incelenmesine olanak tanır. TEM analizi sırasında 5x ila 30.000x büyütmelerde yüksek çözünürlüklü görüntüler üretilir.

Taramalı Elektron Mikroskobu, katı numunelerin yüzeyinde çeşitli sinyaller üretmek için yüksek enerjili elektronların odaklanmış bir ışın demeti kullanır. Çoğu TEM mikroskobu uygulamasında, numune yüzeyinin seçilen bir alanı üzerinde veriler toplanır ve kimyasal karakterizasyon, doku ve malzemelerin yönü dahil olmak üzere uzaysal varyasyonları gösteren iki boyutlu bir görüntü oluşturulur. TEM ayrıca numune üzerinde seçilen nokta konumlarının analizlerini gerçekleştirme yeteneğine de sahiptir. Bu yaklaşım, kimyasal bileşimlerin, kristal yapı ve kristal yönelimlerinin niteliksel veya yarı niceliksel olarak belirlenmesinde özellikle yarar sağlamaktadır.

EDS dedektörü, farklı elementlerin karakteristik X-ışınlarını bir enerji spektrumuna ayırır ve belirli elementlerin varlığını belirlemek için enerji spektrumunu analiz etmek için EDS sistem yazılımı kullanılır. Tipik bir EDS spektrumu, X-ışını sayılarına karşı enerjinin (keV cinsinden) bir grafiği olarak tasvir edilir. Enerji tepe noktaları, numunedeki çeşitli elementlere karşılık gelir. Enerji dağılımlı X-ışını spektroskopisi, malzemelerin kimyasal bileşimini birkaç mikronluk bir nokta boyutuna kadar bulmak ve çok daha geniş bir tarama alanı üzerinde element bileşimi haritaları oluşturmak için kullanılabilir. Birlikte bu yetenekler, polimerler ve metaller dahil olmak üzere çok çeşitli malzemeler için temel bileşim bilgileri sağlar.

3.5.3 EDX (Enerji Dağılımlı X-Işını) analizi

Bu teknik, yüzeye yakın elemanları analiz ederek numunenin genel bir haritasını verir ve farklı konumlardaki element oranını tahmin eder. EDX, TEM ile birlikte kullanılır. 10–20 keV enerjiye sahip bir elektron ışını iletken numunenin yüzeyine çarparak malzemeden X-ışınlarının yayılmasına neden olur ve yayılan X-ışınlarının enerjisi incelenen malzemeye bağlıdır. Yüzeye yakın ve yüzeydeki nanoparçacıkların bileşimi veya miktarı, bazı ağır metal iyonları içermeleri koşuluyla EDX kullanılarak tahmin edilebilir. Örneğin, yüzeydeki gümüş, altın ve paladyum gibi nanoparçacıklar EDX kullanılarak kolayca tanımlanabilir. Düşük atom numaralı elementlerin EDX tarafından tespit edilmesi zordur.

Enerji dağılımlı X-ışını analizi (EDXA), elektron mikroskopları ile birleştirildiğinde, birkaç nanometre kadar küçük alanlarda temel analiz sağlayabilir. Elektron ışınının yüzey üzerindeki etkisi ve parçacığın derinliğine nüfuz etmesi, numunenin yüzeyinde ve yakınında bulunan elementlerin karakteristiği olan X-ışınları üretir. EDXA'da, elektron mikroskopunun tarama yeteneği kullanılarak tek tek noktaların temel bileşimi belirlenebilir veya öğelerin alansal dağılımının haritası çıkarılabilir.

3.5.4 Empedans spektroskopisi (ES) analizi

İki ana ES kategorisi vardır: elektrokimyasal empedans spektroskopisi (EES) ve diğer kategoriler. EES, iyonik iletimin güçlü bir şekilde baskın olduğu malzemelerin ölçümlerini ve analizlerini içerir. Bu tür malzemelere örnek olarak

- Katı ve sıvı elektrolitler
- Erimiş tuzlar
- İyonik olarak iletken camlar
- Polimerler ve stokiyometrik olmayan iyonik olarak bağlı tek kristaller verilebilir.

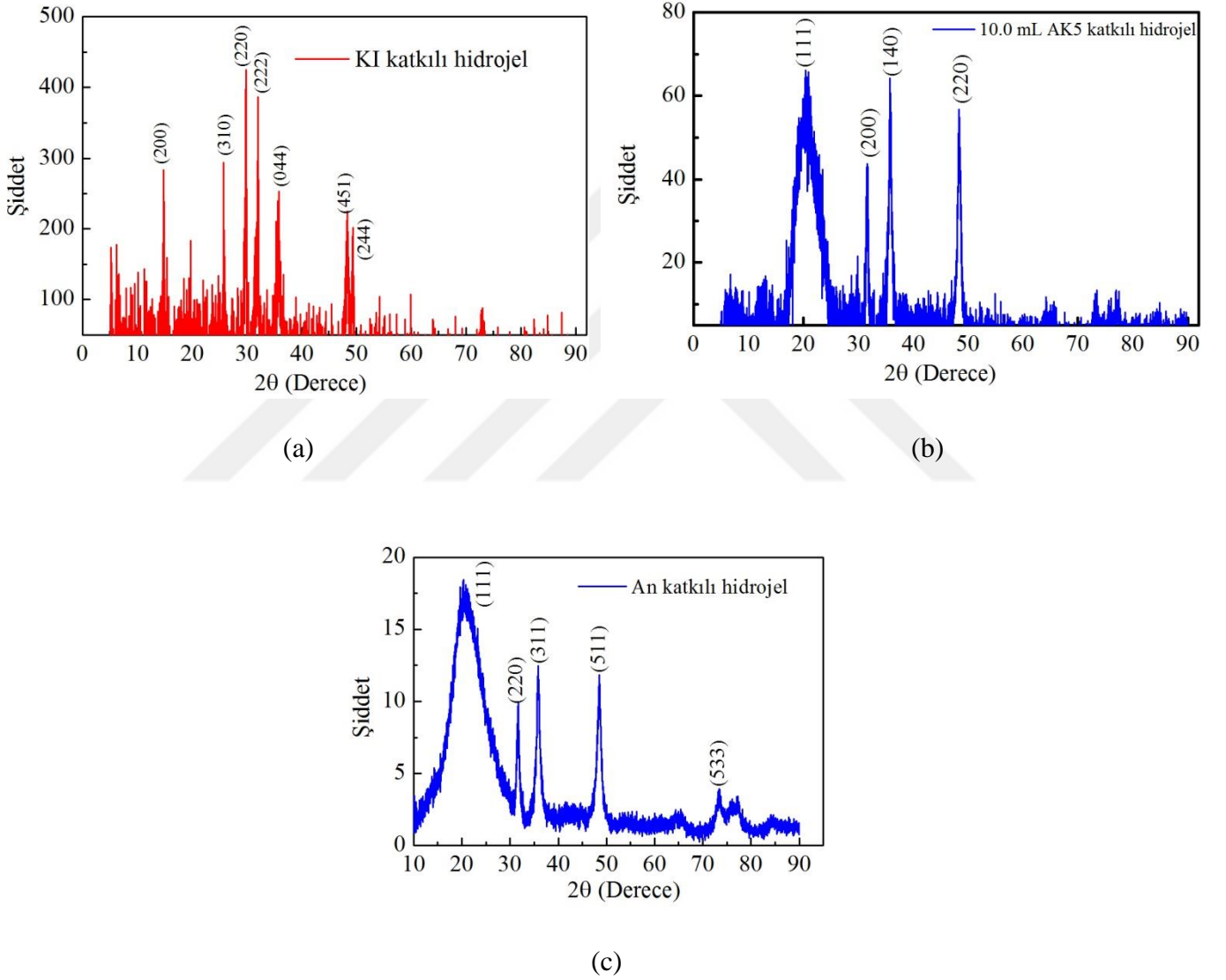
EES ayrıca yakıt hücreleri, şarj edilebilir piller ve korozyon çalışmalarında da değerlidir. ES'nin geri kalan kategorisi, dielektrik malzemeler için geçerlidir: elektriksel özellikleri dipolar dönüşü içeren katı veya sıvı iletken olmayan malzemeler ve ağırlıklı olarak elektronik iletkenliğe sahip malzemeler. Örnekler olarak tek kristal veya amorf yarı iletkenler, camlar ve polimerler verilebilir. Tabii ki, ES daha karmaşık durumlar için de geçerlidir, örneğin, bazı eş zamanlı iyonik ve elektronik iletkenliğe sahip kısmen iletken dielektrik malzemeler için. EES, ES'nin en hızlı büyüyen dalı olmasına rağmen, elektrokimyasal olmayan ES ölçümlerinin önce geldiğini ve hem temel hem de uygulamalı alanlarda hala büyük değer ve öneme sahip olduğunu belirtmekte fayda var. Tüm bunlarla birlikte malzemelerin yük iletim mekanizması hakkında ayrıntılı bilgi edinmek için kullanılan yöntemlerin en başında Empedans Spektroskopisi gelmektedir. Bu metod yardımı ile malzemenin kapasitans ve kayıp faktörü ölçülebilmektedir. Kapasitans ve kayıp faktörü ölçüldükten sonra bu ölçümler yardımı ile malzemenin dielektrik sabiti (gerçek ve sanal kısımları), iletkenlik parametreleri, karmaşık empedans ve karmaşık elektrik modülünün gerçek ve sanal kısımları hesaplanabilmektedir. Böylece çalışılan malzemelerin iletim mekanizması, dielektrik sabiti ve kimyasal karakterizasyonu hakkında bilgi edinilebilir. Bu tez çalışmasında da malzemelerin empedans spektroskopisi tekniği ile karmaşık dielektrik sabitin gerçek kısmı, dielektrik sabitin sanal kısmı, tanjant faktörü, rezistansı, reaktansı, empedansı, faz açısı, karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmı, elektrik modülünün sanal kısmı, elektrik modülünün düzlem çizgileri, kapasitansı, yüzey öz direnci, karmaşık iyonik iletkenliği değerleri hesaplanmıştır.

BÖLÜM IV

DENEYSEL SONUÇLAR VE TARTIŞMA

4.1 X-Işını Kırınımı Mikroskobu (XRD) Analizi

KI, AK5 ve An katkılı hidrojellerin XRD desenleri sırasıyla Şekil 4.1a, 4.1b ve 4.1c' de verildi.



Şekil 4.1. 50 mg/L KI (a), AK5 (b) ve An (c) katkılı hidrojellerin XRD desenleri

KI numunesinin atomik düzenini ve kristal yapısını analiz eden XRD desenleri, Şekil 4.1a'da $5 \leq 2\theta \leq 95$ aralığında kaydedildi. KI düzlemlerinin kristalografik tanımlaması, model ayrışması (kırınım tepe noktaları) ile gösterildi. KI için kırınım piklerinin (2 0 0),

(3 1 0), (2 2 0), (2 2 2), (0 4 4), (4 5 1) ve (2 4 4) düzlemleriyle ilişkili olduğu belirlendi. KI, kalsit molekülleri ve hidrojel bağları arasındaki arayüzey etkileşimlerinden kaynaklanan homojen dağılımdan dolayı en büyük pik (tepe) (2 2 0) değerine sahip olduğu anlaşılmıştır.

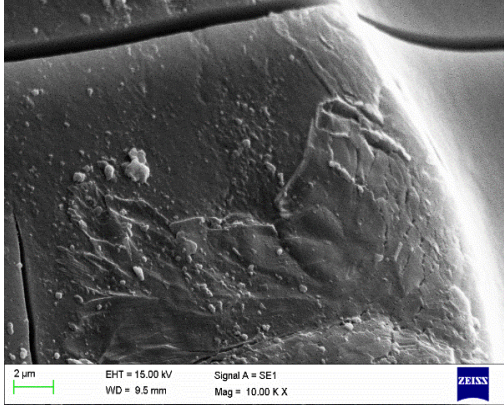
Kırınım modeli kullanılarak AK-45 boya katkılı hidrojellerin de kristal yapı oluşumunu gösteren XRD tepe noktaları elde edildi. AK5 numunesinin XRD tepe noktaları (1 1 1), (2 0 0), (1 4 0) ve (2 2 0) düzlemleri ile temsil edildi. Numunenin XRD piklerinin, saf asidik kırmızı 45 boyasının pikleriyle neredeyse uyumlu olduğu görüldü (Dehghani vd., 2021). Numune için XRD pik değerlerinin açılarında, boya ve hidrojellerin etkileşiminden kaynaklanan hafif kaymalar olduğu düşünülmüştür.

Anilin katkılı hidrojellerin kristal yapısının gösterilmesi için $2\theta = 20.31^\circ, 31.51^\circ, 35.83, 48.48^\circ$ ve 73.37° 'de XRD modelleri gözlemlendi ve 2θ 'deki katkılı hidrojellerin piklerinin sırasıyla (1 1 1), (2 2 0), (3 1 1), (5 1 1) ve (5 3 3)'e karşılık gelen düzlemlerle olduğu gözlemlendi. Şekil 4.1c' de An katkılı hidrojin en büyük tepe (1 1 1) düzlemine sahip olduğu görülmüştür. Bunun nedeninin, An boya molekülleri ile hidrojel bağları arasındaki arayüzey etkileşiminin getirdiği heterojen dağılımla ilgili olduğu saptanmıştır. Bu pik değerleri de boya ve hidrojellerin etkileşiminden kaynaklanmaktadır.

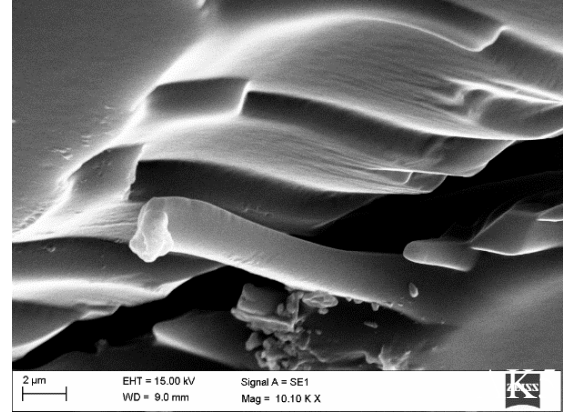
4.2 Taramalı Elektron Mikroskobu (TEM) Analizi

Taramalı elektron mikroskobu analizi malzemeleri yüksek çözünürlüklerde görüntülemektedir. Böylece katkılı hidrojellerin parçacık boyutu, yüzeyi, gözenek yapısı, ve ağlarının homojen olup olmadığı hakkında bilgi vermektedir.

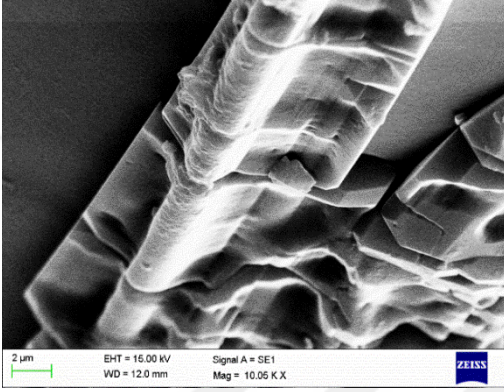
Bunları gözlemlemek için Fotoğraf 4.1' de 10.00 KX (a) ve 10.10 KX (b) büyütülmüş kalsit katkılı hidrojin, 10.05 KX büyütülmüş 100 mg/L AK-45 boya katkılı hidrojin (c) ve 40.000 X büyütülmüş 100 mg/L An yüklü hidrojin yüzeyinin TEM görüntüsü gösterildi.



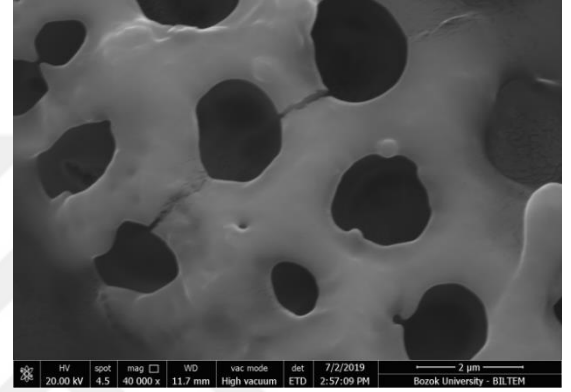
(a)



(b)



(c)



(d)

Fotoğraf 4.1. (a) KI katkılı (10.00 KX), (b) KII katkılı (10.10 K X) (c) An katkılı (10.05 K X) ve (d) AK5 katkılı (80.000 X) hidrojenlerin 2 µm ölçekli TEM görüntüleri (Bozok Üniversitesi Bilim ve Teknoloji Uygulama ve Araştırma Merkezi)

Fotoğraf 4.1a ve 1b' da iki farklı üretim prosesi ile üretilen kalsit katkılı hidrojenlerin dispersiyon özellikleri TEM görüntüleri ile incelenmiştir. Fotoğraf 4.1a'da KI' in TEM görüntüsünden kalsit moleküllerinin hidrojel yüzeyinde homojen olmayan bir dağılım gösterdiği ve bazı bölgelerde kümelendiği belirlendi. Öte yandan, Fotoğraf 4.1b'de KII' nin TEM görüntüsü, kalsit moleküllerinin heterojen dağılım gösterdiğini ve kümelenmenin CI'den daha az yoğun olduğunu göstermektedir. Hidrojel yüzeyi ve kanalları içinde daha az kümelenme nedeniyle KII' nin daha yüksek kapasitif ve daha düşük empedans değerlerine sahip olacağı tahmin edilmiştir.

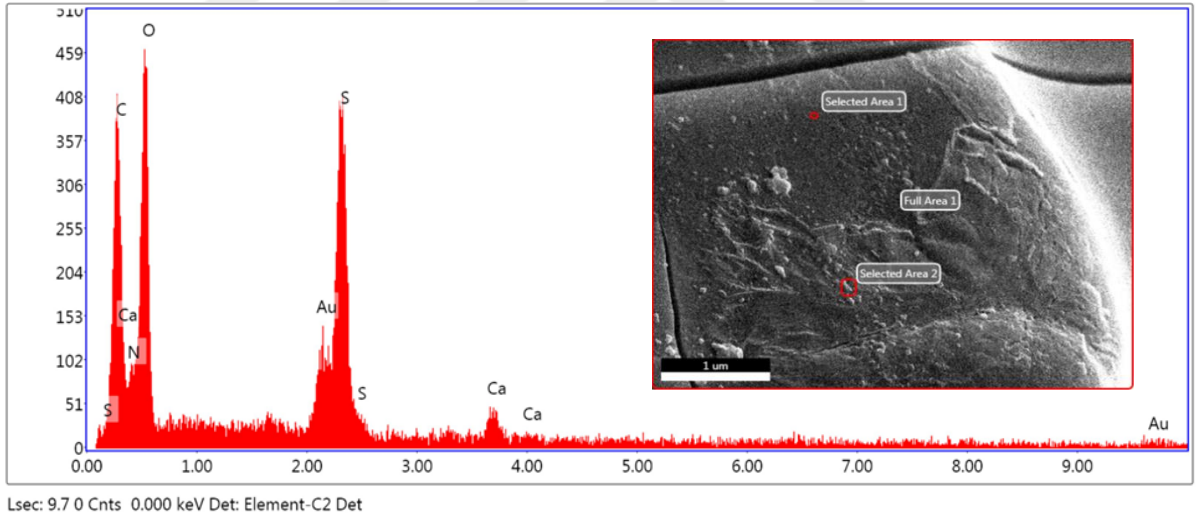
Fotoğraf 4.1c'de An katkılı hidrojenlerin dağılım özellikleri, ortalama tane boyutu 2 µm TEM görüntüleri ile araştırılmıştır. An katkılı hidrojenlerin TEM görüntüsüne göre, An boya molekülleri hidrojel yüzeyinde heterojen bir dağılım göstermekte ve bazı bölgelerde kümelenmektedir. TEM görüntülerinden, 2 µm büyüklüğündeki An katkılı hidrojenlerin

kümelenmesinin az yoğun olduğu görülebilir. Dolayısıyla 2 µm'lik An katkıli hidrojenlerin yüksek kapasitif ve düşük empedans değerlerine sahip olduğu belirlenmiştir. Son olarak Fotoğraf 4.1d'de AK5 boya katkıli hidrojenlerin TEM görüntülerinden yaklaşık 1 mikron çapında düzenli gözeneklere sahip olduğu gözlenmiştir. Bu gözenekli yapı homojenlik ve simetri sergiler. TEM görüntüsünden belirlenen numunenin düzgün ve simetrik gözenekleri, serbest iyonların daha kolay hareket etmesine neden olduğu ve bu durumda iletkenliği arttırdığı saptanmıştır.

4.3 Enerji Dağılımlı X-ışını (EDX) Spektroskopisi Analizi

Enerji dağılımlı X-ışını (EDX) spektroskopisi numunenin elementel analizini elde etmek için kullanılmaktadır. Katkıli hidrojenlerin içeriğinde hangi elementlerin bulunduğunun anlaşılması için bu yöntem kullanılmıştır.

KI katkıli hidrojenler için seçilen alan 1'in EDX desenleri Şekil 4.2'de verildi.

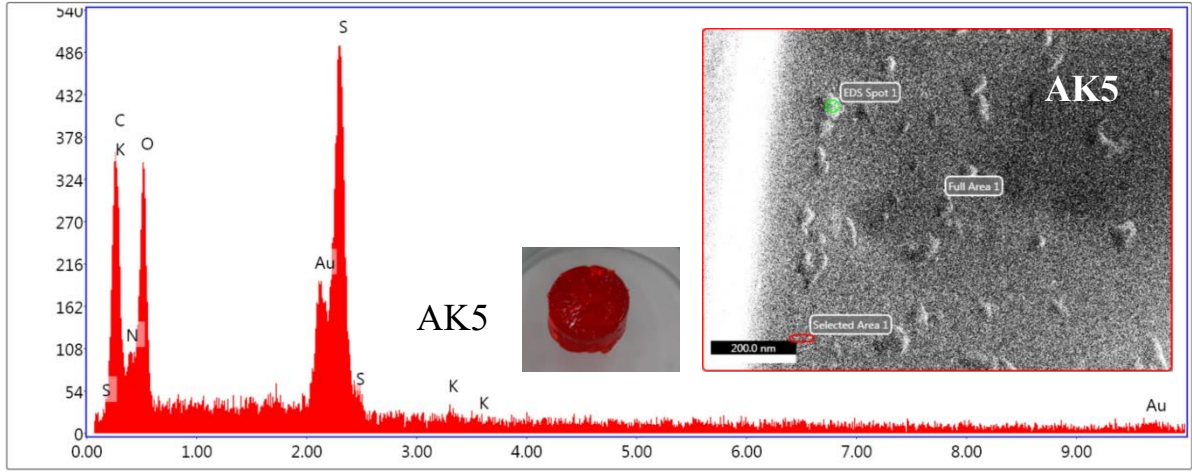


Şekil 4.2. KI katkıli hidrojenler için seçilen alan 1'in EDX modellerinin şematik gösterimi

İyonik kalsit katkıli hidrojenlerin kalitatif elementel dağılımı TEM ile birlikte çalışan EDX ünitesi tarafından analiz edilmiştir. KI katkıli hidrojenler için enerji dağılımlı X-ışını analizinden Kalsiyum (Ca), Karbon (C), Oksijen (O), Kükürt (S) ve Azot (N) elementlerinin belirlenmesi, başarılı bir sonuç olarak görülmüştür. EDX analizinde altın

ızgaranın kullanılmasının ise altın (Au) elementinin ortaya çıkmasına neden olduğu anlaşılmıştır.

AK5 boya katkıli hidrojel için seçilen alan 1'in EDX desenleri (Şekil 4.3'deki küçük kırmızı fotoğraf, AK5 numunesinin dijital bir fotoğrafıdır) Şekil 4.3'te verildi.

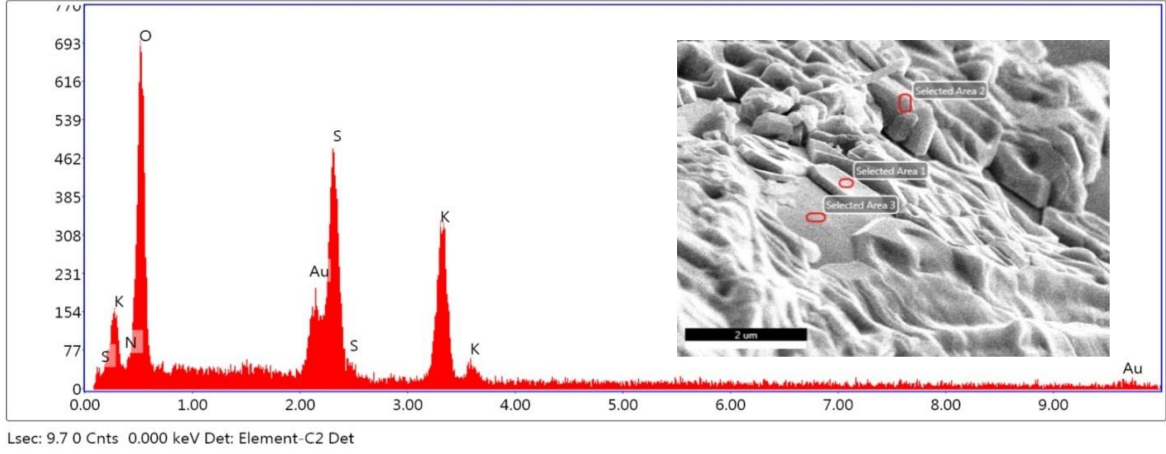


Lsec: 9.7 0 Cnts 0.000 keV Det: Element-C2 Det

Şekil 4.3. AK5 boya katkıli hidrojel için seçilen alan 1'in EDX modellerinin şematik gösterimi

AK5 boya katkıli hidrojinin 200 nm ölçekli TEM görüntüsünden sırasıyla seçilen alan 1 ve tüm alan 1 alanlarından elementel analiz yapmak için iki ayrı EDX deseni alındı. Numunenin EDX analizi ile belirlenen azot (N), karbon (C), oksijen (O), potasyum (K) ve kükürt (S) elementlerinin varlığı, AK5 boya moleküllerinin hidrojel ile aşırı kopolimerizasyonunun başarılı oluşumu saptandı. Aynı zamanda altın (Au) elementinin varlığının EDX ölçümü için gerekli olan altın ızgaranın kullanılmasından kaynaklandığı saptandı.

An katkıli hidrojellerin EDX analizinin sonuçları Şekil 4.4'de verildi.



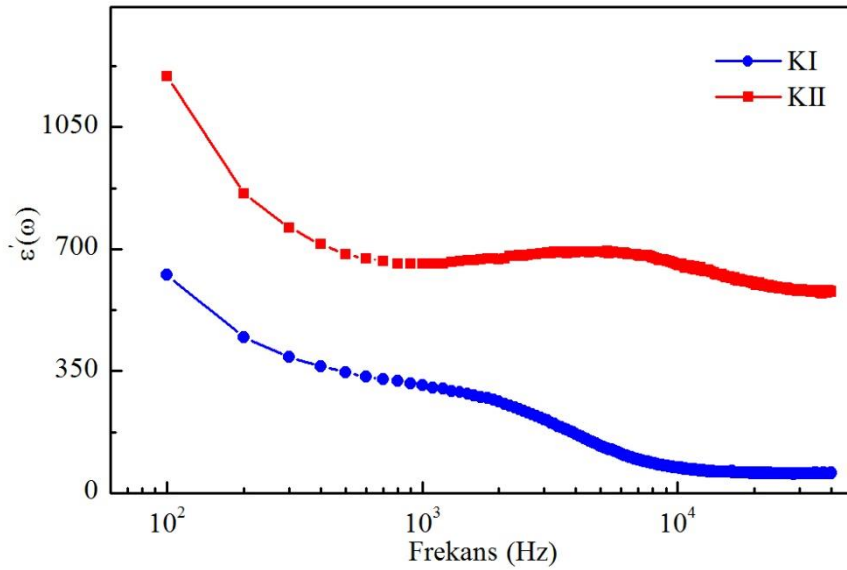
Şekil 4.4. An boya katkılı hidrojeller için seçilen alan 1'in EDX modellerinin şematik gösterimi

Kimyasal bileşimi doğrulamak için, numunelerin element analizi, en az üç bölgenin (yani, seçilen alan 1, 2 ve 3) EDX spektrumları ve bunlara karşılık gelen mikro-yapısal görüntüler (içteki şekil) analiz edilmiştir. An katkılı hidrojellerin EDX modellerinin şekilden kükürt (S), potasyum (K), oksijen (O), karbon (C) ve azot (N) açısından biraz zengin olduğu görülebilir. Altın (Au) elementinin varlığı, altın ızgara kullanılmasından kaynaklanmaktadır. Bu durum, An katkılı hidrojellerin başarılı aşırı kopolimerizasyonunun olduğunu göstermektedir.

4.4 Kalsit Katkılı Hidrojellerin Empedans Spektroskopi Analizi

Farklı derişimde kalsit katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitin gerçık kısmı, dielektrik sabitin sanal kısmı, tanjant faktörü, rezistansı, reaktansı, empedansı, faz açısı, karmaşık elektrik modülünün gerçık kısmı, elektrik modülünün sanal kısmı, elektrik modülünün düzlem çizgileri, kapasitansı, karmaşık iyonik iletkenliği, logaritmik iyonik iletkenliğinin frekansla gelişimleri, UV-Vis absorpsiyon spektrumlarının dalga boyu ile deęişimi ve optik bant aralığının $h\nu$ ye göre deęişimi sırasıyla Şekil 4.5, Şekil 4.6, Şekil 4.7, Şekil 4.8, Şekil 4.9, Şekil 4.10, Şekil 4.11, Şekil 4.12, Şekil 4.13, Şekil 4.14, Şekil 4.15, Şekil 4.16, Şekil 4.17, Şekil 4.18 ve Şekil 4.19' da verildi. Bu kalsit katkılı hidrojellerin frekansla gelişiminde katkısı olan dielektrik mekanizmaları düşük ve yüksek frekans bölgelerindeki frekans deęerlerinde ayrıntılı bir şekilde incelendi. Bu malzemelerin opto-elektronik davranışlarının hangi şartlar altında meydana geleceğine dair incelemelerde bulunuldu.

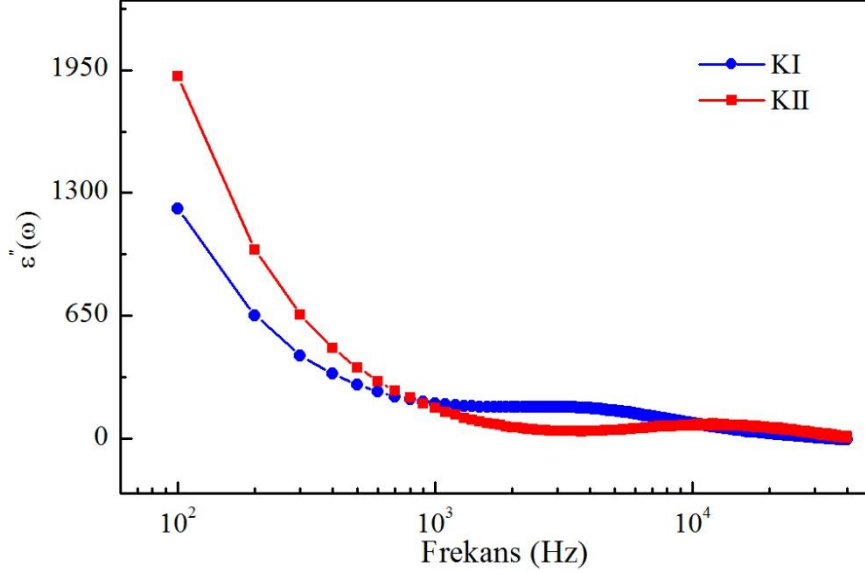
Kalsit katkılı hidrojellerin belirli bir frekans aralığındaki dielektrik özelliklerinin frekans değişimi Şekil 4.5’de verildi. Bu numunelerin frekansa bağlı $\varepsilon'(\omega)$ değeri 100 Hz–40 MHz aralığında incelendi. KI ve KII için kompleks dielektrik geçirgenliğinin $\varepsilon'(\omega)$ gerçekte kısmının monoton olarak azaldığı gözlemlenmiştir. Şekilden de görüleceği üzere düşük frekans bölgesinde $\varepsilon'(\omega)$ değeri daha yüksek, yüksek frekans bölgesinde ise daha düşük değerler aldığı gözlemlendi. Düşük frekans bölgesinde $\varepsilon'(\omega)$ ’nin yüksek değer almasının nedeni elektrot ve arayüzey polarizasyon mekanizmaları olarak görüldü.



Şekil 4.5. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin gerçekte kısmının frekansla değişimi

Bu bölgede kalsit molekülleri ile hidrojel ağlarının etkileşiminin etkili olması Maxwell-Wagner tipi arayüzey polarizasyon mekanizmasına atfedildi. Dolayısıyla bu bölgede arayüzey polarizasyon mekanizmasının daha etkin olduğu tespit edildi. Maxwell-Wagner’in teorisi ışığında hidrojel ağları arası oluşan polarizasyon, çeşitli iletkenlik değerlerine sahip olan ağların arayüzünde bir yük birikmesi şeklinde açıklandı. Bu ağlar arası polarizasyon bir gevşeme ile karakterize edilir. Gevşeme süresi ise iletkenlik, dielektrik geçirgenlik gibi ağ parametreleri ile tanımlanmaktadır. Bu bakımdan arayüz durumlarının yoğunluğu bu yapıların dielektrik davranışını etkileyebilmektedir (Okutan vd., 2018; Yalçın vd.,2013; Öztürk vd., 2018; Okutan vd., 2015; Okutan vd, 2019; Raju, 2017; Gürbüz vd., 2016; Scaife, 1989; Von Hippel, 1954; Macdonald, 1992; Maxwell, 1873; Wang vd., 2020; Wagner, 1914; Koops, 1951; Haberey ve Wijn, 1968; George vd., 2007).

KI ve KII katkılı (50 mg/L) hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin sanal kısmının ($\epsilon''(\omega)$) frekansla değişimine ait deneysel sonuçlar Şekil 4.6'da gösterildi.

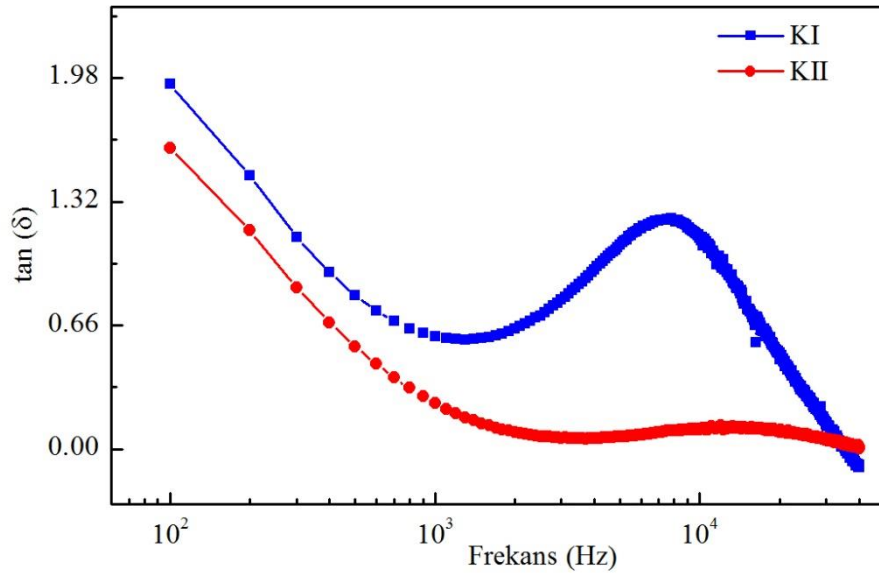


Şekil 4.6. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin sanal kısmının frekansla değişimi

Örneklerin karmaşık dielektrik geçirgenliğinin ($\epsilon''(\omega)$) sanal kısmının artan frekansla katlanarak azaldığı görüldü. Kalsit katkılı hidrojellerin düşük frekans bölgesinde yüksek dielektrik değerlerine sahip olmasının nedeni elektrot ve arayüz polarizasyon mekanizmaları olarak görülmüştür. Kalsit moleküllerinin hidrojel ağları ile etkileşiminin etkili olduğu bu bölgede Maxwell-Wagner teorisine uygun olarak arayüz polarizasyon mekanizmasının daha etkili olduğu tespit edilmiştir. Kalsit malzemenin iyonik ve moleküler boyutlara sahip olması, hidrojellere ilave edilerek elde edilen numunelerin dielektrik özellikleri üzerinde tane ve tane sınırının etkili olduğunu göstermiştir. Kalsit moleküllerinin hidrojel kanalları içindeki hareketi de bu tane sınırları nedeniyle sınırlıdır, bu nedenle ara yüzeyde bir yük birikimi olur ve Koop teorisine göre dielektrik parametreler yüksek değerler alır. Orta frekans bölgesinde numunelerdeki kalsit molekülleri uygulanan alan yönünde hareket edecek zamanı bulamamaktadır. Bu durumda polarizasyon mekanizması etkinliğini kaybeder ve dielektrik gevşeme süreci başlar. Daha sonra kalsit moleküllerinin hareketliliğinin artması gerektiği düşünülmüştür. Yüksek frekans bölgesinde kalsit moleküllerinin Brownian hareketi nedeniyle

numunelerin dielektrik özelliklerine tane etkisi hakimdir. KI' e kıyasla KII' nin daha yüksek dielektrik değerleri, moleküler yapının daha kapasitif özelliğine atfedilmiştir (Okutan vd., 2018; Yalçın vd.,2013; Öztürk vd., 2018; Okutan vd., 2015; Okutan vd, 2019; Raju, 2017; Gürbüz vd., 2016; Scaife, 1989; Von Hippel, 1954; Macdonald, 1992; Maxwell, 1873; Wang vd., 2020; Wagner, 1914; Koops, 1951; Haberey ve Wijn, 1968; George vd., 2007).

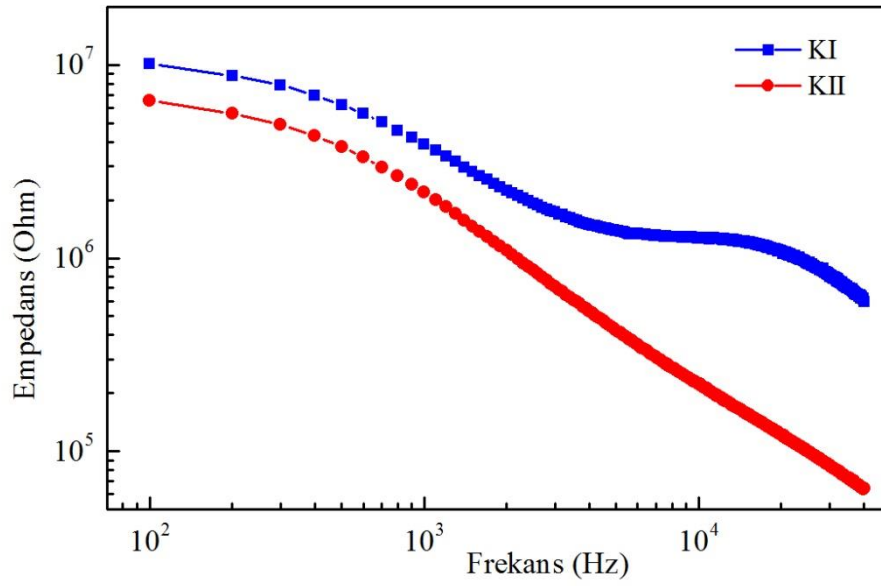
Şekil 4,7'de farklı farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojenlerin tanjant faktörünün ($\tan \delta$) frekansla değişimine ait deneysel sonuçlar verildi. KII'nin $\tan \delta$ değerlerinin artan frekansla üssel olarak azaldığı, KI'in ise yüksek frekans bölgesinde bir tepe değeri gösterdiği belirlendi.



Şekil 4.7. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojenlerin tanjant faktörünün frekansla değişimi

Kalsit katkılı hidrojenlerin düşük frekans bölgesinde yüksek $\tan \delta$ değerine sahip olmasının nedeni elektrot ve arayüz polarizasyon mekanizmaları olarak görülmüştür. Bu bölgede, arayüzey polarizasyon mekanizmasının daha etkili olduğu tespit edilmiştir. KI'e kıyasla KII 'nin daha yüksek dielektrik değerleri, moleküler yapının daha kapasitif özelliğine atfedilirken, düşük $\tan \delta$ değerleri, yüksek empedans değerleri ile ilişkilendirildi (Okutan vd., 2018; Yalçın vd., 2013; Öztürk vd., 2018; Okutan vd., 2015; Coşkun vd., 2019; Raju, 2017; Gürbüz vd., 2016; Scaife, 1989; Von Hippel, 1954).

Farklı derişimdeki kalsit katkılı (50 mg/ml) hidrojjelerin karmaşık empedansının gerçek kısmının frekansla gelişimine ait deneysel sonuçlar Şekil 4,8'de gösterilmiştir. Farklı derişimdeki kalsit katkılı hidrojjelerin empedansının gerçek kısmının düşük frekans bölgesinde değişmediği hemen hemen sabit kaldığı tespit edildi. Bu sabit değerlerin nedeni, düşük frekans bölgesinde KI ve KII katkılı hidrojjeleri etkileyen ara yüzey polarizasyon etkilerinden kaynaklandığı tespit edildi.

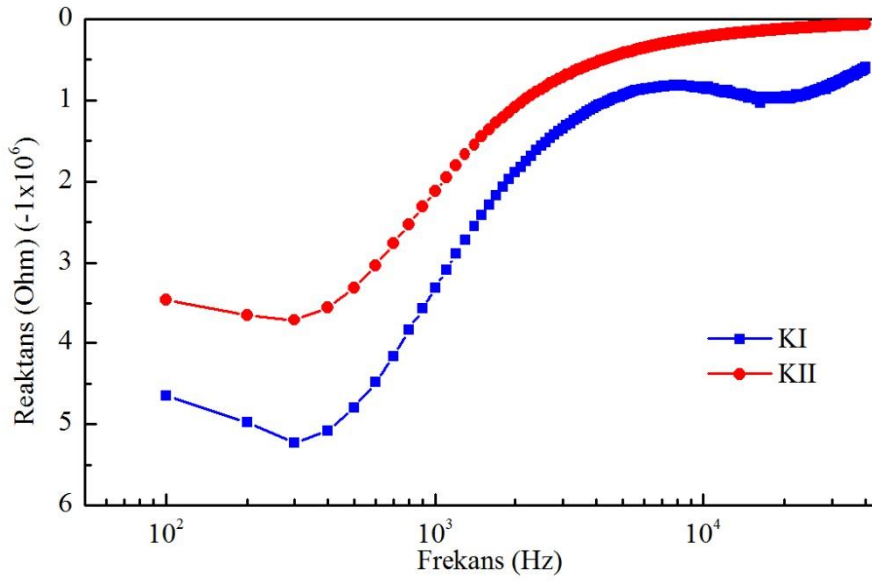


Şekil 4.8. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojjelerin karmaşık empedansının gerçek kısmının (rezistansının) frekansla değişimi

Düşük frekans bölgesinde KI ve KII katkılı hidrojjelerin rezistans değerlerinin benzer davranışta olduğu görüldü. Artan frekans ile birlikte KI katkılı hidrojjelin hemen hemen doğrusal olarak azaldığı, daha yüksek frekans değerlerinde (10⁴ Hz ve üzeri) ise yeniden yükselişe geçtiği görüldü. Düşük frekans bölgesinde karmaşık empedansın gerçek kısmının yüksek değerler almasının, uygulanan dış elektrik alan etkisi altında kalan yüklerin kutuplanmasına ve ara yüzeylerde oluşan elektrot polarizasyon etkisine bağlı olduğu tespit edildi. Bu frekans bölgesinde elektrot polarizasyon etkisinin yüksek kapasitif olguya neden olduğu anlaşıldı. Yüksek frekans bölgesinde, rezistansın yüksek değerler almasını sağlayan elektrot polarizasyonun etkisini giderek artırdığı ve dolayısıyla yüksek kapasitif olgunun devam ettiği görüldü. Artan frekans ile birlikte KI katkılı hidrojjelin aksine KII katkılı hidrojjelin orta frekans aralığında karmaşık empedansının gerçek kısmının ara yüzey etkileşimlerinden dolayı dalgalı bir davranış sergilediği tespit

edildi. Daha yüksek frekans değerlerinde (10^4 Hz ve üzeri) ise KI katkılı hidrojel ile aynı davranışı gösterip yeniden yükselişe geçtiği görüldü.

Şekil 4.9’da farklı derişimlerde kalsit katkılı hidrojellerin karmaşık empedansının sanal kısmının frekansla olan deęişimine ait deneysel sonuçlar gösterildi. Bu hidrojellerin Z' deęerlerinin artan frekansla birlikte ilk olarak asimptotik olarak azaldığı ve en alt limit deęere geldiği ve daha sonra daha yüksek frekans deęerlerinde (10^4 Hz ve üzeri) ise asimptotik olarak arttığı tespit edildi.

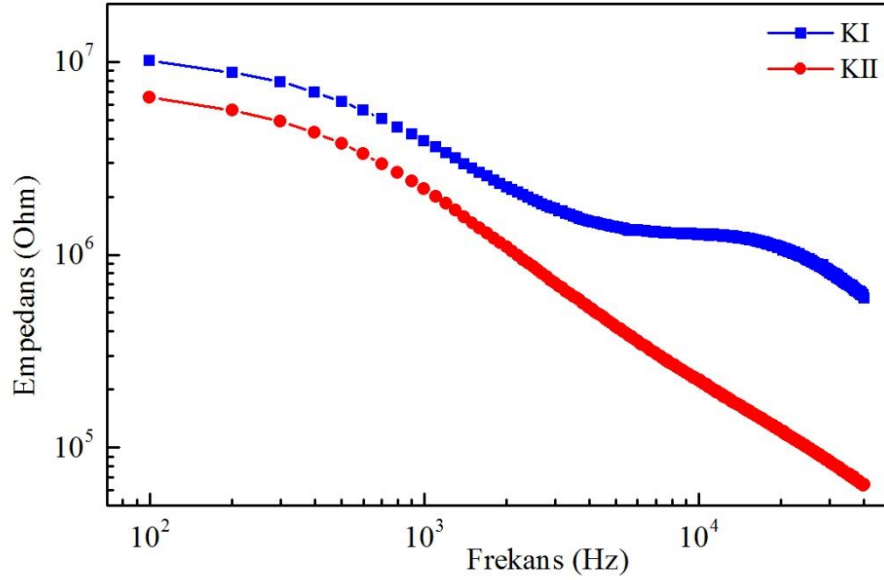


Şekil 4.9. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojellerin karmaşık empedansının sanal kısmının (reaktansının) frekansla deęişimi

KI ve KII katkılı hidrojellerin karmaşık empedansının sanal kısmının frekansla deęişiminin birbirine çok benzerlik gösterdiği görülmüştür. Yüksek frekans bölgesinde KII katkılı hidrojellerin KI katkılı hidrojellere göre daha yüksek reaktans deęer alıyor olması KI katkılı hidrojelin daha iletken olmasına bağlandı. Düşük frekans bölgesinde ise karmaşık empedansın sanal kısmının düşük deęerler almasının nedeni ise elektrot ve ara yüzey kutuplanması ile alakalı olduğu tespit edildi.

Kalsit katkılı hidrojellerin empedansın frekansla deęişimi Şekil 4.10’da görüleceği üzere geniş bir frekans aralığında gösterilmiştir. Şekil 4.10’a göre tespit edilen bir konu kalsit katkılı hidrojellerin empedans deęerinin artan frekansla birlikte azaldığıdır. Her iki frekans bölgesinde de KII katkılı hidrojelin KI katkılı hidrojellere göre daha küçük

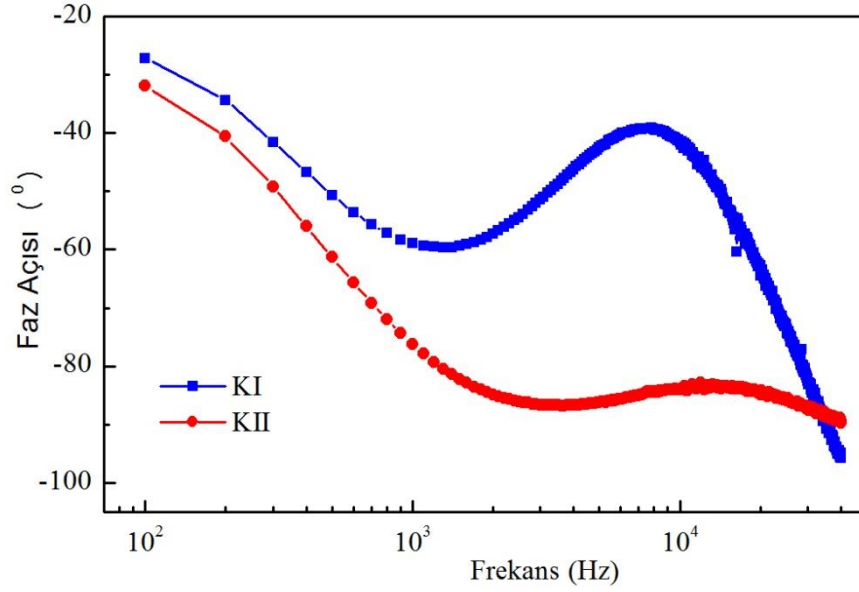
empedans deęerlerine sahip olduęu řekilden anlařılmaktadır. Bu da tespit edilen dięer bir konudur. KI katkılı hidrojin empedansının en byk deęeri, hem dřk frekans blgesinde hem yksek frekans blgesinde aldıęı da tespit edildi.



řekil 4.10. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojin empedansının frekansla deęiřimi

Yukarıda da bahsedildięi zere dřk frekans blgesinde karmařık empedans yksek deęer almaktadır. Bunun en nemli sebeplerinden birinin elektrot polarizasyon ve ara yzey polarizasyon etkilerinden dolayı olduęu dřnld (Cole ve Cole, 1941; Hornebecq vd., 2000).

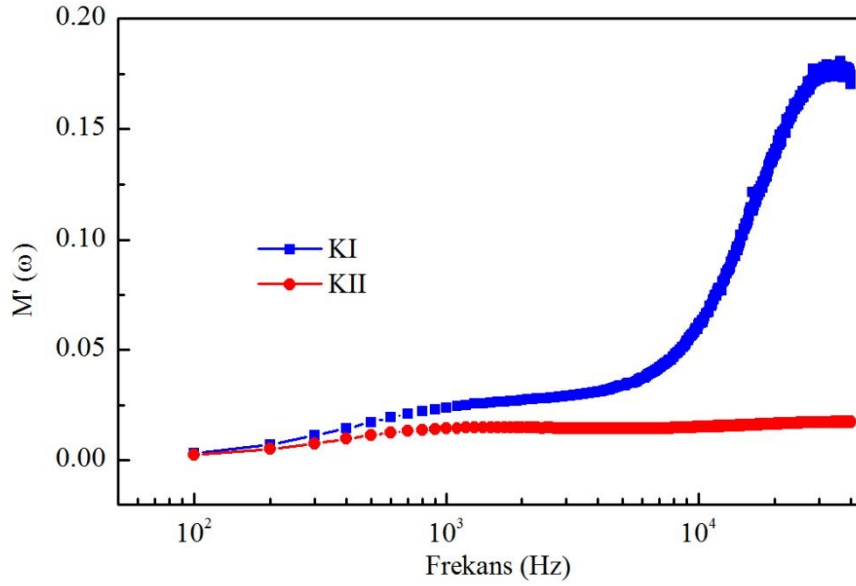
10² Hz ile 40 kHz frekans aralıęında farklı formlarda retilen kalsit katkılı hidrojin empedansının frekansla deęiřimi řekil 4.11'de verildi. Her iki rneęin empedans deęerlerinin dřk frekans blgesinde artan frekansla stel olarak azaldıęı ve yksek frekans blgesinde Kalsit I'de daha belirgin olan bir tepe deęeri gsterdięi grld.



Şekil 4.11. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojellerin faz açısının frekansla değişimi

KII örneğinin yüksek frekans bölgesinde artan frekansla dielektrik durulmadan dolayı neredeyse değişmediği sifıra doğru gittiği saptandı. Her iki örnek için faz açısı (θ) değerlerinin genel teoriye ($\delta=90^\circ-\theta$) uygun olarak tanjant faktörü ($\tan(\delta)$) ile uyumlu davrandığı tespit edildi. Kalsit katkılı hidrojellerin faz açısı değerlerindeki pik değeri ve oluşan kuyunun nedenleri sırasıyla dielektrik gevşeme mekanizmasına ve viskoelastik etkileşimlere atfedildi (Okutan vd., 2018; Yalçın vd., 2013; Öztürk vd., 2018; Okutan vd., 2015; Coşkun vd., 2019; Shima vd., 2009; Mukhopadhyay vd., 2019; Matsumiya vd., 2020).

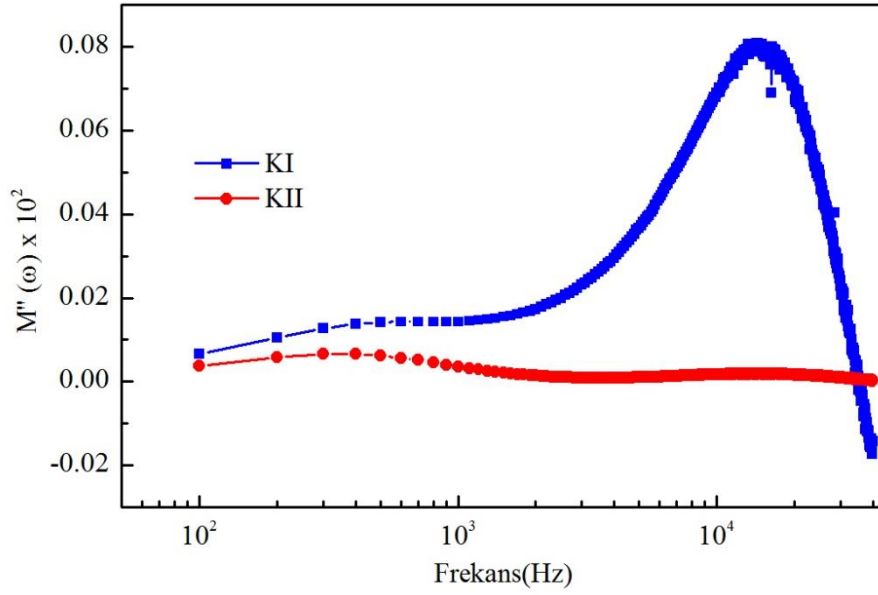
Şekil 4.12' de KI ve KII katkılı (50 mg/L) hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmının ($M'(\omega)$) frekansla değişimi verildi. KII numunesinin $M'(\omega)$ değerinin frekansın artışına paralel asimtotik olarak arttığı tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde hem KI hem de KII katkılı hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmı yaklaşık sıfır değeri almıştır.



Şekil 4.12. Farklı formlardaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojenlerin karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmının frekansla değişimi

Düşük frekans bölgesinde, elektrot polarizasyon mekanizmasının daha etkili olduğu saptandı. Bundan sebeptir ki bu bölgede katkılı hidrojenlerin karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmının değerleri üzerine elektrot polarizasyon etkisi olduğu ve sıfır değerleri aldığı öngörüldü. Yüksek frekans bölgesinde ise $M'(\omega)$ nin en yüksek değerinin KI katkılı hidrojenle ait olduğu şekilden anlaşıldı. Burada elektrik modülün gerçek kısmının artan frekansla birlikte artarak tepe noktaya ulaştığı görüldü. Bu durumun nedeni ise elektrot polarizasyon etkisinin ortadan kalkması, dipol etkileşimlerin, dielektrik durulma sürecinin devreye girmesi olarak kaydedildi (Ramesh ve Arof, 2001; Gogulamurali vd., 1992; Deraman vd., 2014).

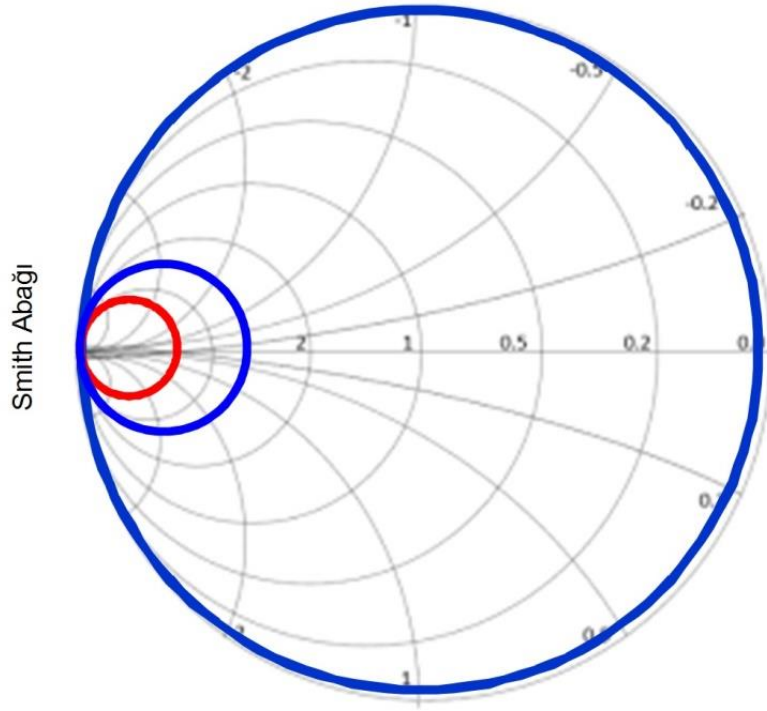
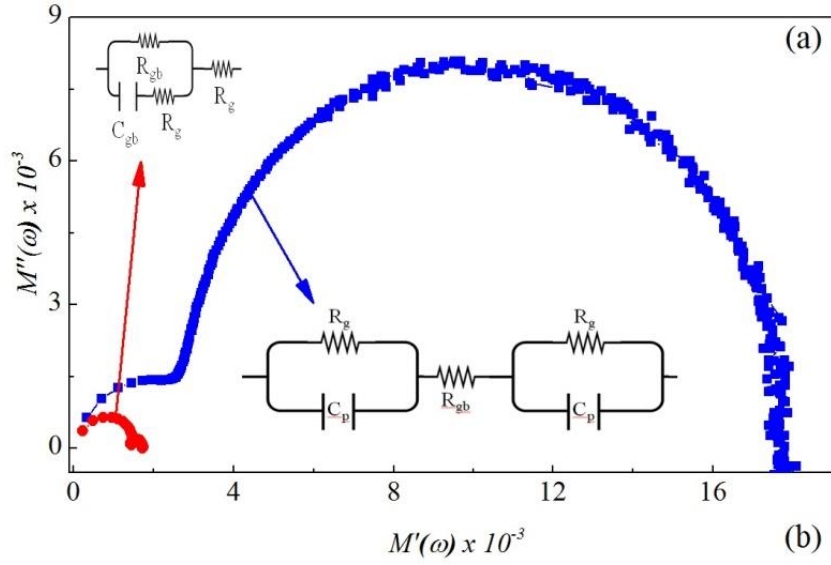
Şekil 4.13' de KI ve KII katkılı (50 mg/L) hidrojenlerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının ($M''(\omega)$) frekansla değişimi verildi. Düşük frekans bölgesinde karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmında olduğu gibi KI ve KII katkılı hidrojenlerin elektrik modülünün sanal kısmında da sıfır değeri aldığı tespit edildi. Bu durumun nedeni ise düşük frekans bölgesinde katkılı hidrojenlerin dielektrik özelliklerini belirleyen elektrot polarizasyon olarak belirlendi.



Şekil 4.13. Farklı formlardaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojenlerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının frekansla değişimi

Yüksek frekans bölgesinde ise $M''(\omega)$ 'nin en yüksek değerinin karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmında olduğu gibi KI katkılı hidrojenlere ait olduğu görüldü. Yine aynı şekilde burada da elektrik modülünün gerçek kısmının artan frekansla birlikte artarak tepe noktaya ulaştığı belirlendi. Bu durumun nedeni ise elektrot polarizasyon etkisinin ortadan kalkması, dipol etkileşimlerin, dielektrik durulma sürecinin devreye girmesi ve Stokes-Einstein ilişkisinin (Stokes-Einstein relationship) bir sonucu olarak belirlendi (Ramesh ve Arof, 2001; Gogulamurali vd., 1992; Deraman vd., 2014).

KI ve KII numuneleri için karmaşık elektrik modülünün düzlem çizimleri, bu düzlemlerin eşdeğer elektrik devrelere karşılık gelen Cole-Cole çizimleri ve bunların Smith abağına uyarlanmış hali Şekil 4.14a ve 4.14b'de sırasıyla gösterilmiştir. Numunelerin karmaşık elektrik modülünün düzlem çizimleri değerlendirildiğinde, KI'in karmaşık elektrik modülü düzlem çizimlerindeki dielektrik gevşeme, Davidson-Cole gevşeme modeli ile uyumlu olduğu tespit edildi. Öte yandan, KII örneğinin dielektrik gevşemesi ise Havriliak ve Negami modeliyle ilgili olduğu anlaşıldı (Havriliak ve Negami, 1966; Volkov vd., 2018; Jiang vd., 2017).

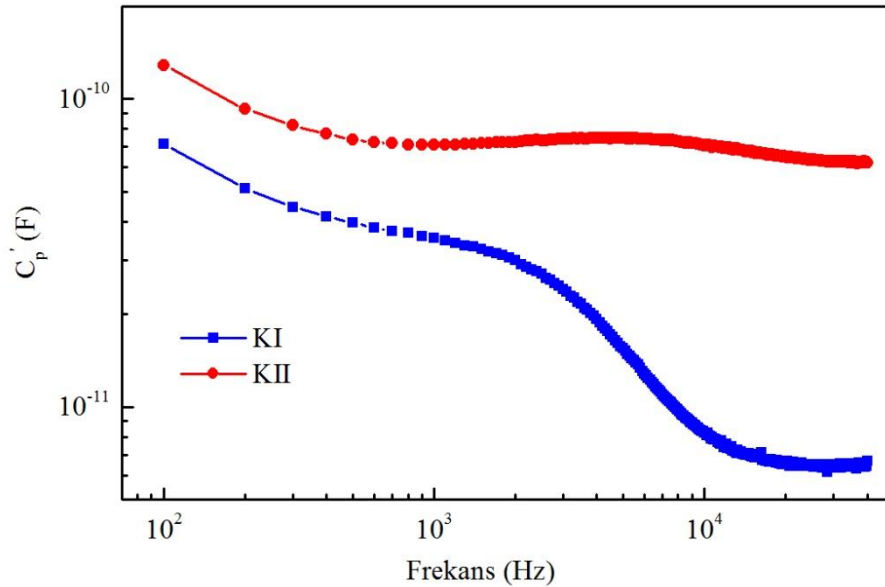


Şekil 4.14. (a) Farklı formdaki kalsit katkılı hidrojellerin karmaşık elektrik modülün deneysel düzlem çizgileri ve eşdeğer elektrik devreleri (b) ve onların Smith abağına uyarlanmış hali

KII'nin asimetrik düzlem çizgilerini analiz etmek için gereken ikinci gevşeme süresi, kalsit moleküllerinin geniş dağılımı ile ilgili olduğu tespit edildi. Düşük ve yüksek frekans bölgelerinde meydana gelen tane sınırı (R_{gb}) ve tane etkilerinin (R_g) oluşturduğu dirençlerin bu gevşeme sürelerinin nedenleri olduğu bulundu. Alçak frekans bölgesindeki KI'in düzlem çizimlerinin (yarım daire) iki farklı eşdeğer elektrik devresine (RC) karşılık

geldiği belirlendi. KII örneğinde Havriliak-Negami modeline göre düzlem grafiklerinin düşük frekans bölgesinde tane sınırlarının neden olduğu direnci karşılayan eşdeğer elektrik devresine karşılık geldiği görülmüştür. Ayrıca iki farklı dielektrik gevşeme modeli ile tanımlanan düzlemsel diyagramlarla karşılanan bu eşdeğer elektrik devrelerinin Smith abağındaki empedans devresine karşılık geldiği görülmüştür (Smith, 1939; Smith, 1995; Varan vd., 2020). Bu durumda farklı üretim süreçleri sonucunda elde edilen kalsit katkılı hidrojellerin eşdeğer elektrik devrelerinin farklı olacağı sonucuna varılmıştır.

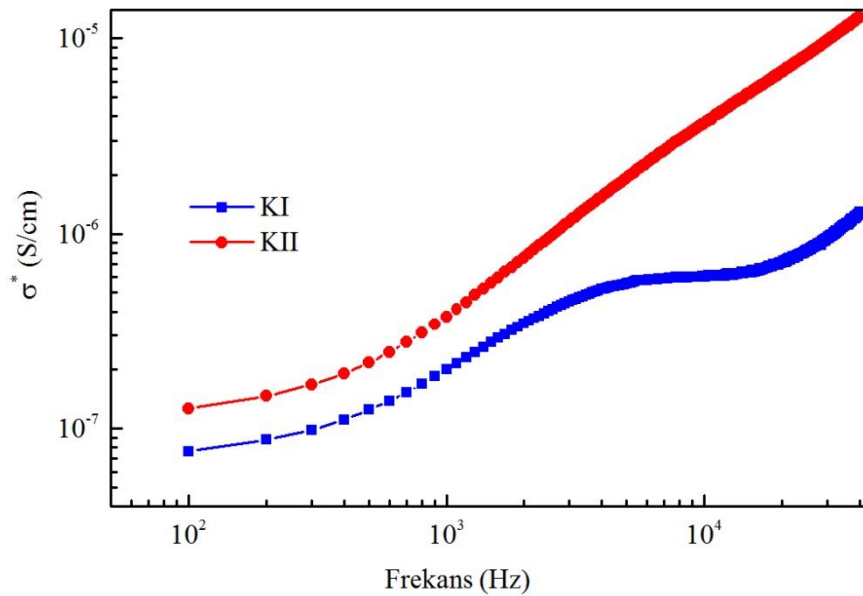
10^2 Hz ila 40 kHz frekans aralığında farklı işlemlerle üretilen kalsit katkılı hidrojellerin kapasitansı Şekil 4.11'de verilmiştir. KII örneğinin yüksek frekans bölgesinde artan frekansla neredeyse değişmediği, her iki örneğin kapasitans değerlerinin artan frekansla monoton olarak azaldığı, KII örneğinin kapasitans değerinin yüksek frekans bölgesinde hemen hemen sabit kaldığı belirlendi. KII örneğinin kapasitans değerinin karmaşık dielektrik geçirgenliğinin gerçek kısmı ile uyumlu üssel olarak azaldığı tespit edildi (Kennelly, 1893; Horowitz vd., 1989; Kanungo vd., 2014; Sharma vd., 2010; Belal Hossen ve Akther Hossain; 2015). Örneklerin paralel kapasitans değerleri Şekil 4.15'de verilen $\varepsilon'(\omega)$ değeri ile uyumlu olduğu tespit edildi ($\varepsilon'(\omega) = C_p d / \varepsilon_0 D$).



Şekil 4.15. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojellerin kapasitansının frekansla değişimi

Kalsit katkılı hidrojenlerin kapasitans deęerlerinin kaynaęı, elektrot ve arayüzey polarizasyonu nedeniyle düşük frekans bölgesinde yüksek deęerlere sahip olduęu belirlendi (Yalçın vd., 2013; Öztürk vd., 2018; Okutan vd., 2015; Coşkun vd., 2017; Coşkun vd., 2012; Pokhriyal ve Biswas, 2016; Rao vd., 2006; Rouahi vd., 2013; Iannarelli vd., 2020; Rout ve Agrawal, 2020). Artan frekansla etkili olan dielektrik gevşeme nedeniyle her iki numunenin kapasitans deęerlerinin azaldığı saptandı. KII moleküllerinin uygulanan elektrik alanı yönünde çok daha kolay polarize olduęu ve kapasitans deęerinin daha yüksek olmasına neden olduęu belirlendi. Öte yandan örneklerin kapasitans deęerlerinin genel teoriye uygun olarak direnç ölçüsü olan empedans ($Z = 1/j\omega C$) ile ters çalıştığı gösterildi. Daha yüksek kapasitans deęerine sahip KII 'nin yüksek kapasitif özelliklerin gerekli olduęu elektrik/elektronik devreler için daha uygun olacağı sonucuna varılmıştır.

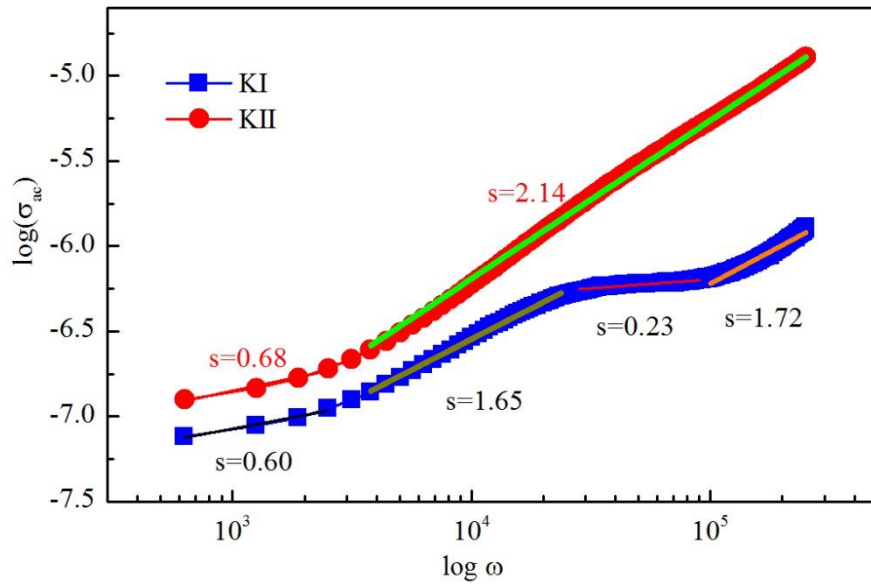
Farklı formadaki kalsit katkılı hidrojenlerin karmaşık iyonik iletkenliğin ($\sigma^*(\omega)$) frekansla olan deęişimi 4.16' da sunuldu. Frekansın artmasıyla birlikte KI ve KII katkılı hidrojenlerin σ^* deęerlerinde üstel olarak artış gözlenmeye başlamıştır, bunun da KI ve KII katkılı hidrojenlerin düşük frekans bölgesinde benzer davranış sergilediği anlamına geldiği belirlendi. Ayrıca KII katkılı hidrojenlerin σ^* deęerinin hem düşük hem de yüksek frekans bölgesinde KI katkılı hidrojenlerin σ^* deęerinden daha yüksek olduğu tespit edildi.



Şekil 4.16. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojenlerin karmaşık iyonik iletkenliğinin frekansla deęişimi

KII katkılı hidrojenlerin iyonik iletkenliğinin, KII moleküllerinin KI moleküllerine göre daha yüksek hareketliliğe sahip olması nedeniyle KI katkılı hidrojenlerden daha yüksek olduğu sonucuna varıldı. Yüksek iyonik iletkenlik, iyonların hidrojel kanallarında ve elektrot arayüzlerinde çok daha kolay hareket etmesiyle ilgili olduğu saptandı.

Farklı formdaki kalsit katkılı hidrojenlerin logaritmik iyonik iletkenliğinin ($\log \sigma_{AC}$) frekansla olan değişimi 4.17’de gösterildi. Yukarıda belirtildiği gibi, farklı dozlarda kalsit katkılı hidrojenler için ve frekans üssü s-parametrelerinin açılmal frekans gelişimi Şekil 4.17’de gösterilen 100 Hz ila 40 MHz frekans aralığının üzerinde olduğu görüldü. KI ve KII katkılı hidrojenlerin logaritmik iyonik iletkenliğinin artan frekansla katlanarak arttığı belirlendi. KI ve KII katkılı hidrojenlerin s-parametre değerlerinin 1. Bölgede 0 ve 1 arasında bir değer aldığı, sonraki 2. ve 3. bölgelerde 1’den büyük değer aldığı gözlemlendi.



Şekil 4.17. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojenlerin logaritmik iyonik iletkenliğinin ($\log(\sigma_{AC})$) frekansla değişimi

Her bir örnek için iletim mekanizması hakkında bilgi veren bu s değerleri Çizelge 4.1’ de verildi. Hem KI hem de KII katkılı hidrojenler için $\log(\sigma_{ac})$ değerlerinin arttığı gözlemlendi. Çünkü tüm frekans aralığı boyunca molaritesi artırılan numunelerin iletkenlik mekanizmalarının frekans s-parametreleri tarafından önemli ölçüde tanımlanabildiği görüldü. Bu bölgelerin sırasıyla elektrot polarizasyonu, plato frekansı ve dc iletkenliği ile ilgili olduğu tespit edildi (Coşkun vd., 2017; Gürbüz vd., 2016; Shah

vd., 2018; Kumari vd., 2014; Maji ve Choudhary., 2017; Yang vd., 2020; Jonscher, 1977; Jonscher., 1978). İletkenliğin frekans bağımlılığı Jonscher'in güç yasası tarafından aşağıdaki denkleme dayanmaktadır.

$$\sigma_{ac}(\omega) = \sigma_0(\omega) + A\omega^s \quad (4.1)$$

Burada $\sigma_{ac}(\omega)$ ac iletkenliğe karşılık gelmektedir ve $\sigma_0(\omega)$ sınırlayıcı sıfır frekans iletkenliğine karşılık gelmektedir. A üstel bir sabit, $\omega = 2\pi f$ açısal frekans, s ise güç yasası kuvvetidir.

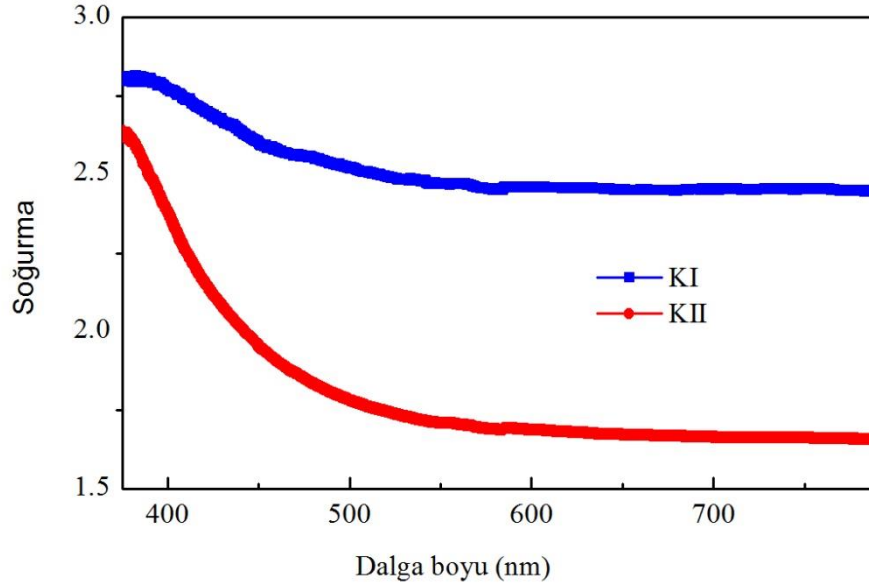
Çizelge 4.1. Farklı proseslerle üretilen kalsit katkılı hidrojellerin farklı bölgelerdeki s parametre değerleri

Numune mg/L	1. bölge	2. bölge	3. bölge	4. bölge
KI	0.60	1.65	0.23	1.72
KII	0.68	2.14	2.14	2.14

Bu bölgelerde s değerleri sıfıra eşit olmadığı için dc iletkenlikten bahsedilemeyeceği tespit edildi. KI ve KII katkılı hidrojeller için 1. frekans bölgesinde, frekans üslerinin sırasıyla 0.60 ve 0.68 olması ilişkili bariyer atlamalı (Correlated Barrier Hopping/CBH) mekanizması ile ilişkili olduğu belirlendi. 2. bölgede KI ve KII katkılı hidrojellerin s-parametrelerinin $s > 1$ değerine sahip olduğu görüldü. Buna göre, her iki örneğin iletkenlik mekanizmalarının süper doğrusal güç (Super Linear Power Law/SLPL) yasası ile ilişkili olduğu tespit edildi (Kumari vd., 2014). 3. bölgede KI katkılı hidrojelin s değeri 0.23 olarak hesaplandı. KI katkılı hidrojelin bu bölgedeki mekanizmasının ilişkili bariyer atlamalı mekanizmasıyla ilişkili olduğu tespit edildi. Bu bölgede KII katkılı hidrojelin s değeri ise 2.14 olarak hesaplandı. Bu da iletkenlik mekanizmasının bu bölge için süper doğrusal güç yasası ile ilişkili olduğu saptandı. Son olarak ise 4. bölgede KI ve KII katkılı hidrojellerin s değerleri sırasıyla 1.72 ve 2.14 olarak hesaplandı. Bundan dolayı her iki numune için bu bölgede iletkenlik mekanizmasının yine süper doğrusal güç yasası ile ilişkili olduğu belirlendi (Kumari vd., 2014).

Şekil 4.18'de KI ve KII katkılı (50 mg/L) hidrojellerin UV-Vis absorpsiyon spektrumunun dalga boyu ile değişimi verildi. Her iki numune için UV-Vis spektrumları, 370 nm ila 710 nm dalga boyu aralığında verildi. Her iki numune için de absorbans

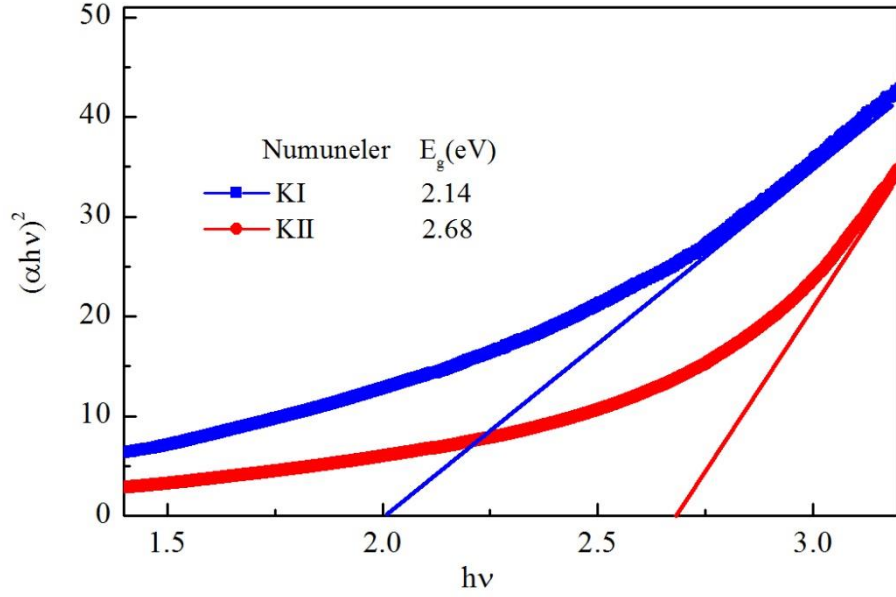
spektrumu, 370 nm civarında gözlemlenen yüksek pik değerlerine sahip olduğu gözlemlendi. Bu tepe değerleri, kalsit moleküllerinin dipolar salınımlarının/dört kutuplarının innervasyonu ile ilgili olduğu tespit edildi (Okutan vd., 2018; Coşkun vd., 2019; Owen, 1996).



Şekil 4.18. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkılı hidrojel için UV-vis soğurma spektrumlarının dalga boyu değişimi

Farklı işlemlerle üretilen kalsit katkılı hidrojel için dalga boyuna bağlı olarak absorptans değerleri kaydedildi. KI örneğinin optik davranışının dipolar olduğu ve dolayısıyla KI'in absorptans değerinin KII örneğinden daha yüksek olmasına neden olduğu saptandı.

Farklı formdaki kalsit katkılı (50 mg/L) hidrojel için $(ahv)^2$ 'ye karşı (hv) grafiklerinin enerji bandı boşlukları Şekil 4.19'da gösterildi. KI ve KII örnekleri için optik bant boşlukları, 4.19'daki Tauc yasası kullanılarak absorptans spektrumunun dalga boyu değişkenliğinden elde edildi (Tauc, 1968; Yu vd., 2018).



Şekil 4.19. Farklı formdaki kalsit (50 mg/L) katkıli hidrojenlerin optik bant aralığının değışimi

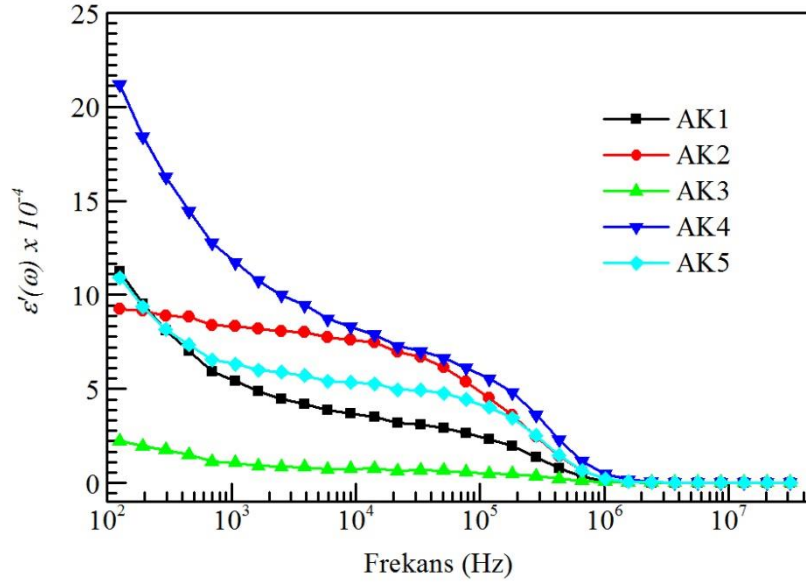
Şekilden de anlaşılacağı gibi, kalsit katkıli hidrojenler için optik bant aralığının büyüklüğü, hidrojel ağ yapısındaki kalsit moleküllerinin arayüzey etkileşimleri ile ilgili olduğu saptandı. Ayrıca kalsit moleküllerinin hidrojel kanallarındaki kuantum hapsi ve Fermi-Dirac dispersiyon etkileri, enerji bant aralığı değerlerindeki azalmanın ana nedeni olarak kabul edildi (Dirac, 1926). KI ve KII örneklerinin optik bant boşlukları için lokalize kuyruğun olmaması, yasak aralıkta optik geçişler sağlayan yüksek enerjili fotonlardan kaynaklandığı tespit edildi. Ayrıca, bu kuyruğun yokluğu, moleküllerin yasak bant aralığındaki iletimi ile yakından ilgili olduğu gözlemlendi. Bu nedenle örneklerin mobilitesinin Brown hareketi ile açıklanması dikkat çekici bulundu Yalçın vd., 2013; Öztürk vd., 2018; Okutan vd., 2015; Coşkun vd., 2019; Rodroquez ve Salinas-Rodroquez, 1988; Feynman vd., 1964).

4.5 Asidik Kırmızı-45 Boya Katkıli Hidrojenlerin Empedans Spektroskopisi Analizi

Farklı dozlarda (1.25mL, 2.5mL, 5.00mL, 7,50mL, 10,00mL) Asidik Kırmızı-45 boya katkıli hidrojenlerin karmaşık dielektrik sabitin gerçek kısmı, dielektrik sabitin sanal kısmı, tanjant faktörü, rezistansı, reaktansı, karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmı, elektrik modülünün sanal kısmı, kapasitansı, logaritmik iyonik iletkenliğinin frekansla gelişimleri, elektrik modülün düzlem çizgileri ve onların Smith abağına uyarlanmış hali, UV-Vis spektrumlarının dalga boyu ile değışimi ve optik bant aralığının hv ye göre

değişimi sırasıyla Şekil 4.20, Şekil 4.21, Şekil 4.22, Şekil 4.23, Şekil 4.24, Şekil 4.25, Şekil 4.26, Şekil 4.27, Şekil 4.28, Şekil 4.29, Şekil 4.30 ve Şekil 4.31’de verildi.

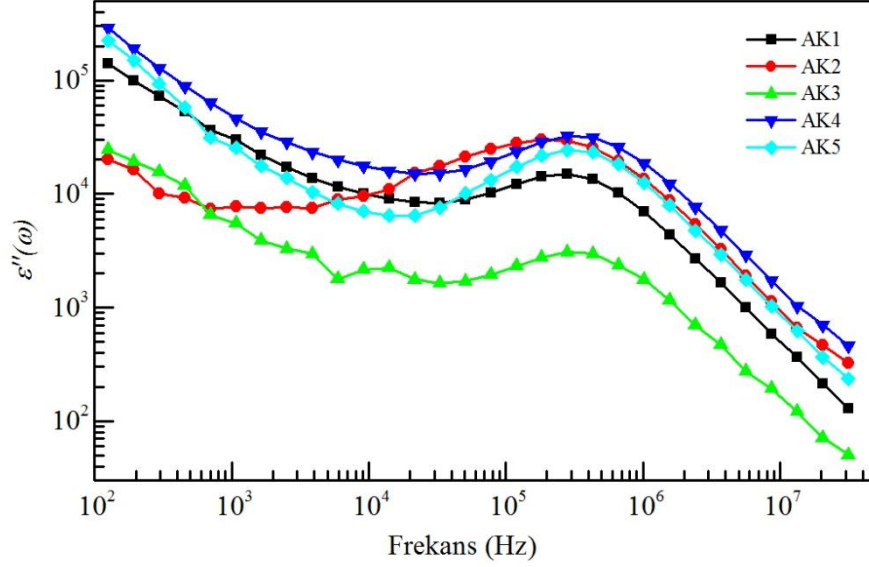
100 Hz-40 MHz frekans aralığındaki AK-45 boya katkılı hidrojenlerin farklı dozlar için dielektrik sabitinin gerçek ($\epsilon'(\omega)$) kısımlarının frekansla değişimi Şekil 4.20’de gösterildi.



Şekil 4.20. Farklı dozdaki AK-45 katkılı hidrojenlerin karmaşık dielektrik sabitinin gerçek kısmının frekansla değişimi

Dielektrik sabitinin gerçek kısmının genel olarak artan frekansla üssel olarak azaldığı görüldü. Ancak AK3 katkılı hidrojenlerin frekansla değişiminin diğer numunelere göre daha az olduğu belirlendi. 10^6 Hz'den yüksek frekans aralığında tüm örnekler için herhangi bir değişiklik tespit edilmedi.

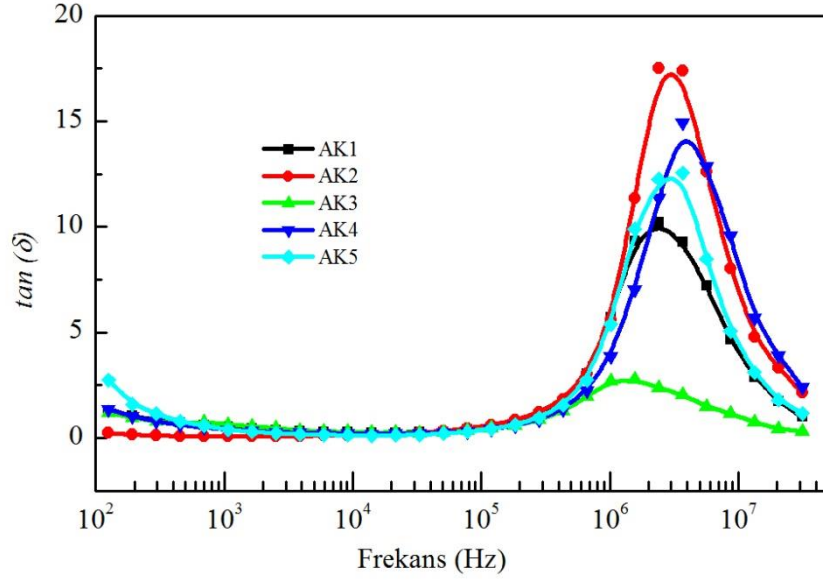
Şekil 4.21’de AK-45 boya yüklü hidrojenlerin dielektrik sabitinin sanal ($\epsilon''(\omega)$) kısımlarının frekansla değişimi gösterildi. Dielektrik sabitinin sanal ($\epsilon''(\omega)$) kısımları 10^4 Hz frekans aralığına kadar üssel olarak azalırken, 10^4 Hz'den yüksek frekans aralığında düzgün bir üssel artışla tepe noktasından geçerek doğrusal olarak azaldığı tespit edildi.



Şekil 4.21. Farklı dozlarda AK-45 boya katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin sanal kısmının frekansla değişimi

Örnekler için dielektrik geçirgenliğin $\varepsilon''(\omega)$ değeri, AK-45 boya dozlarına bağlı olarak dalgalı bir tutum sergilediği saptandı. Bu dalgalanma, boya ve hidrojel bantları arasındaki arayüzey etkileşimlerinden kaynaklandığı öngörüldü. Tüm numuneler için 10^6 Hz'de frekans aralığındaki tepe, dielektrik gevşemeye, enerji kaybının seviyesine ve artan iletkenliğe atfedildi (Yalçın vd., 2013; Coşkun vd., 2012). Tepe noktasında sonra, artan frekansla birlikte hareketliliğin arttığı saptandı.

Şekil 4.22' de AK-45 boya katkılı hidrojellerin tanjant faktörünün frekansla olan değişimine ait deneysel sonuçlar gösterildi. Tüm örneklerin enerji kaybı faktörünün frekans değişimi, artan frekansla bir tepe değerine sahip olduğu belirlendi.



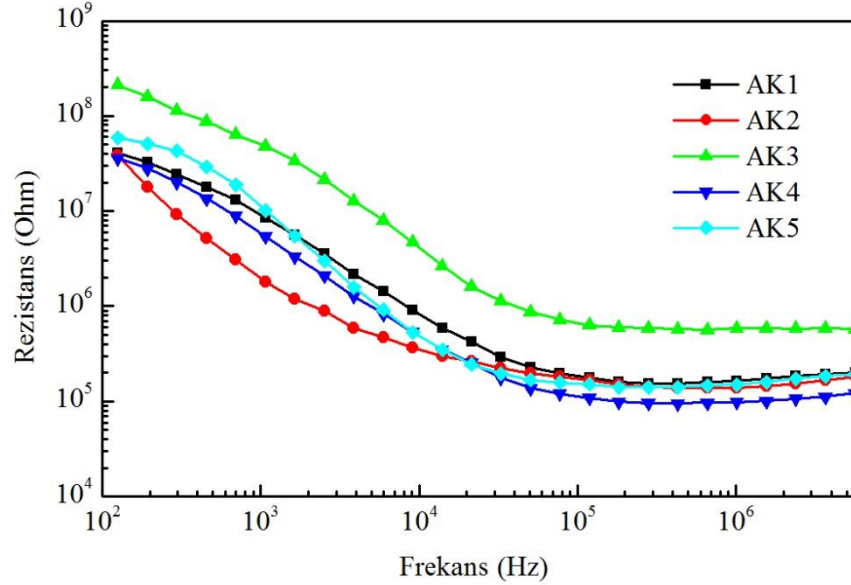
Şekil 4.22. Farklı derişimlerde AK-45 boya katkılı hidrojellerin tanjant faktörünün frekansla deęişimi

Bu tepe deęerlerinin kaynaęı anyonik boyaya atfedildi. Sonuç olarak asidik boyaların kayıp tanjant faktörünün yüksek frekans bölgesinde varlığı belirlendi. Enerji kaybı faktörünün maksimum ve minimum deęerleri sırasıyla 7.50 ve 5.0 mg/L AK-45 katkılı hidrojellere ait olduęu belirlendi. AK-45 katkılı hidrojellerin dielektrik parametreleri Çizelge 4.2'de listelendi.

Çizelge 4.2. Farklı dozlarda AK-45 boya katkılı hidrojellerin dielektrik parametreleri

Parametreler	AK1	AK2	AK3	AK4	AK5
$R^2 = 0.998$					
α	0.58263	0.33407	0.59376	0.60255	0.64035
τ	5.21854E-4	1.17985E-5	4.7003E-4	2.7688E-4	1.41716E-4
ϵ_s	112550.00	92583.12	22265.63	211711.26	109285.12
ϵ_∞	127.56	150.72	163.40	191.56	200.76
$\Delta\epsilon$	12422.44	92432.40	22102.23	211519.70	109084.36
ϵ''_{max}	15134.49	30510.54	3012.84	31566.01	23672.58
$\omega_c (s^{-1})$	291102.27	190538.49	318000.91	366009.09	309804.70

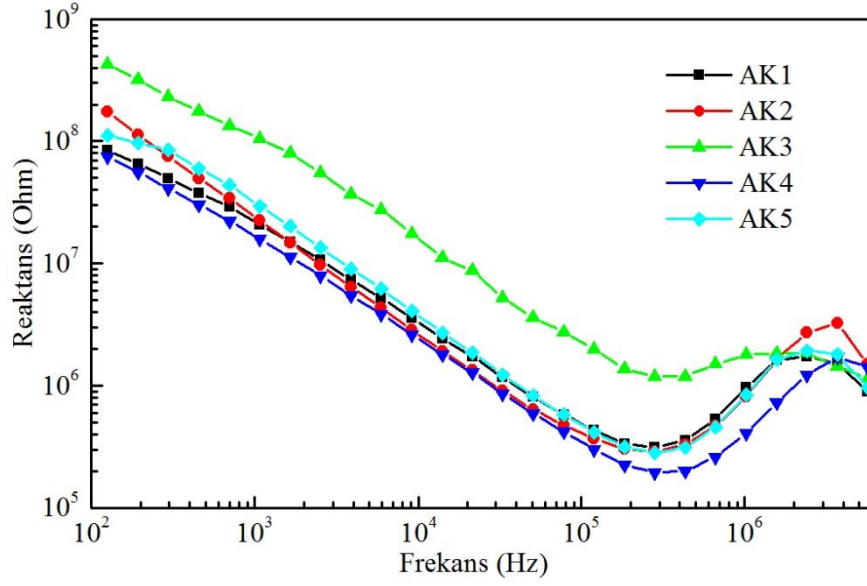
Şekil 4.23’de AK-45 (AK1, AK2, AK3, AK4 ve AK5) katkıli hidrojjelerin karmaşık empedansının gerçek kısmının (rezistansın) frekansla (10^2 Hz ila 40 MHz aralığında) gelişimi gösterildi.



Şekil 4.23. Farklı derişimlerde AK-45 boya katkıli hidrojjelerin karmaşık empedansının gerçek kısmının (rezistans) frekansla deęişimi

Tüm numunelerin rezistans deęerinin 10^2 Hz'den 10^5 Hz'e artan frekansla hemen hemen üstel olarak azaldığı ve daha sonra 10^5 Hz'in üzerinde frekanstan bağımsız olarak kaldığı görüldü. Bu sonuç, bu bölgedeki boya iyonları katkıli hidrojjelerin kütle ve yüzey etkilerine atfedildi. Başka bir deyişle, bu numuneler için baskın etkiler, elektrot polarizasyon etkileri ile ilgili olduğu belirlendi.

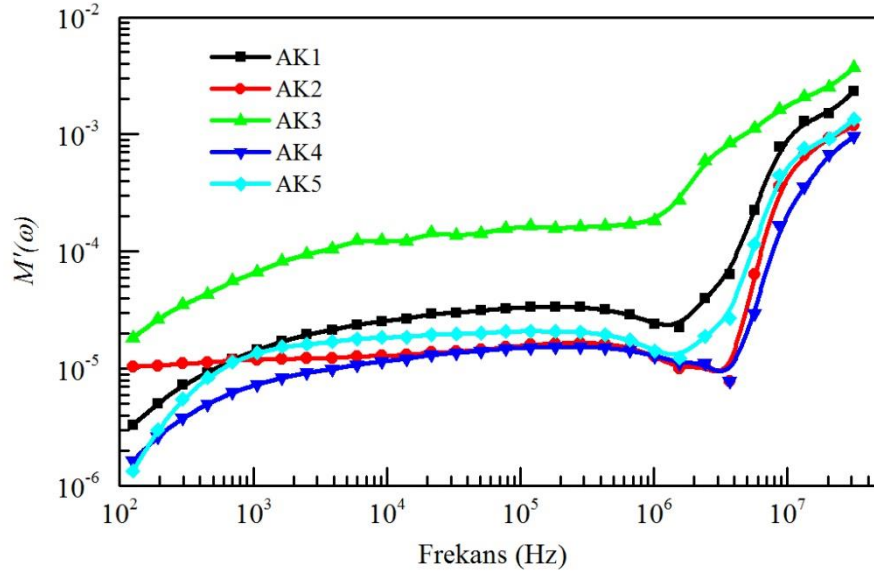
Şekil 4.24’de AK-45 (AK1, AK2, AK3, AK4 ve AK5) yüklü hidrojjelerin karmaşık empedansının sanal kısmının (reaktans) frekansla (10^2 Hz ila 40 MHz aralığında) deęişimi gösterildi.



Şekil 4.24. Farklı derişimlerde AK-45 boya katkılı hidrojjelerin karmaşık empedansının sanal kısmının (reaktans) frekansla deęiřimi

AK-45 katkılı hidrojjeler için reaktans deęeri lineer olarak 10² Hz'den 10⁵ Hz'e dūřer, 10⁶ Hz yakınında derin kuyuya sahip olduęu ve daha sonra yūksək frekans bōlgesinde tepe noktasına sahip olduęu gōrūldū. Reaktans deęerindeki derin kuyuların yūksək kapasitanstan kaynaklandıęı belirlendi.

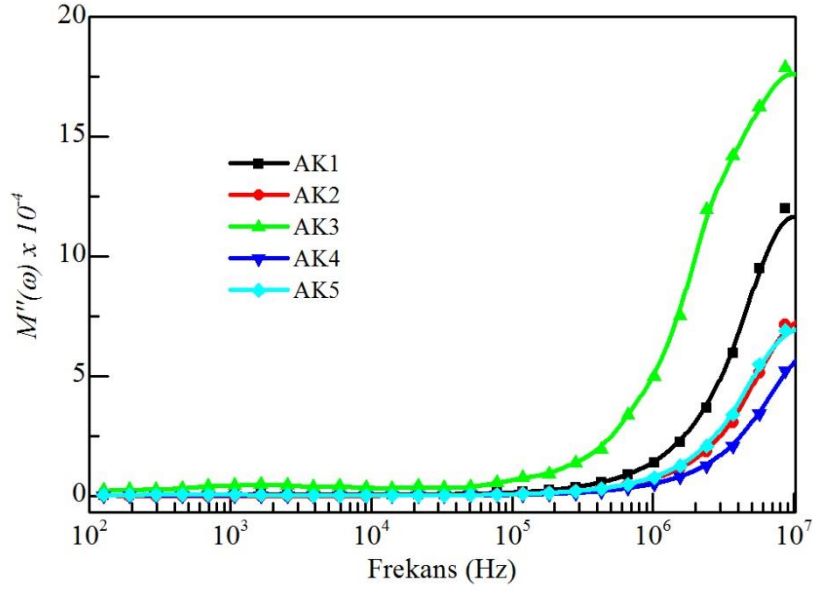
Şekil 4.25' de farklı derişimlerde AK-45 boya yūklū hidrojjelerin, karmaşık elektrik modūlünün gerçək ($M'(\omega)$) kısmının frekansla deęiřimi gōsterildi.



Şekil 4.25. Farklı derişimlerde AK-45 boya yüklü hidrojjelerin karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmının frekansla deęiřimi

AK katkılı hidrojjeler için karmaşık elektrik modülünün gerçek kısımları, düşük frekans bölgesinde düzgün yay biçimindeyken, yüksek frekans bölgesinde hızlı bir artışa sahip olduđu gözlemlendi. 10^6 Hz'nin altındaki frekanslarda numuneler için $M'(\omega)$ deęerlerinin düzgün yay şeklindeki davranışı, bu bölgedeki dielektrik polarizasyon mekanizması üzerindeki tane sınırı etkisine baęlandı. Öte yandan, yüksek frekans bölgesinde $M'(\omega)$ deęerindeki hızlı artış, bu bölgede numune üzerindeki polarizasyon etkilerinin kaybolması nedeniyle dielektrik gevşeme olgusundan kaynaklandıęı tespit edildi (Pissis ve Kyritsis, 1997; Lvovich, 2012; Gogoi vd., 2016).

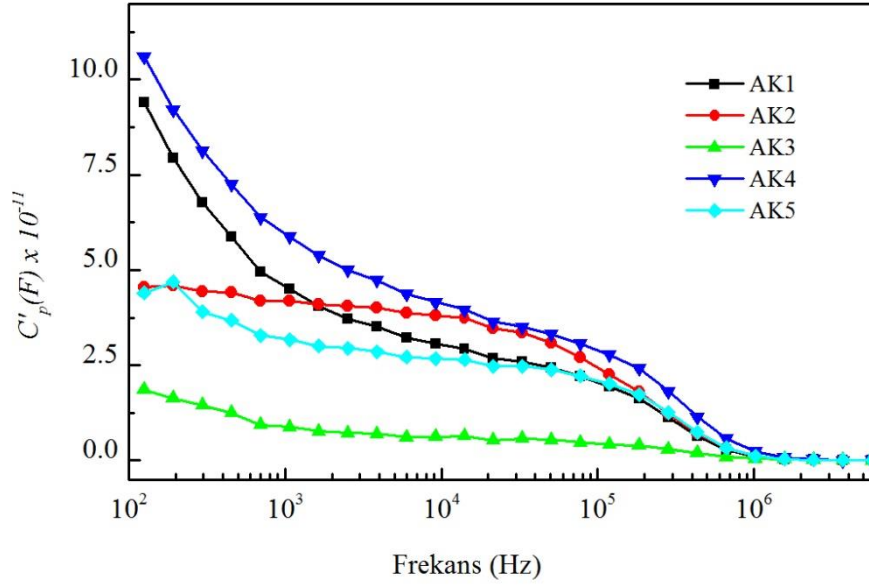
Şekil 4.26' de farklı derişimlerde AK-45 boya yüklü hidrojjelerin, karmaşık elektrik modülünün sanal ($M''(\omega)$) kısmının frekansla deęiřimi gösterildi.



Şekil 4.26. Farklı derişimlerde AK-45 boya yüklü hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının frekansla deęiřimi

AK-45 katkılı hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün ($M''(\omega)$) sanal kısımlarının düşük frekans bölgesinde sıfıra gitme eğilimi, büyük kapasitansa atfedildi. Yüksek frekansta, iyonik iletkenlikten dolayı $M''(\omega)$ 'de hızlı bir artış olduęu gözlemlendi. Ek olarak, $M''(\omega)$ deęerleri, hidrojel kanallarındaki AK-45'in potansiyel kuyuyla uzaysal olarak sınırlandırıldıęı ve AK-45'lerinin yüksek frekansta kuyu içinde lokalize hareket yapabildikleri frekansın büyük olduęunu gösterdięi saptandı.

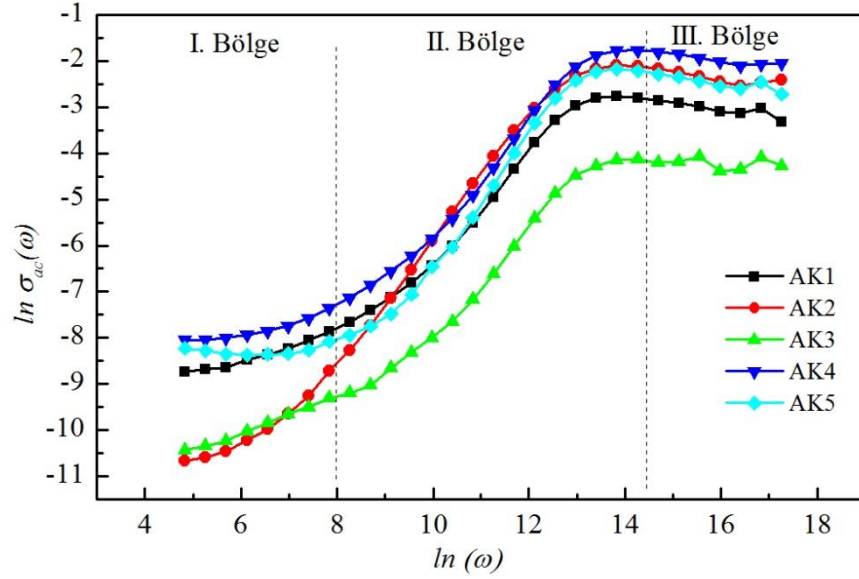
Şekil 4.27' de AK-45 boya yüklü hidrojellerin kapasitansının frekansla deęiřimi verildi.



Şekil 4.27. Farklı derişimlerde AK-45 boya yüklü hidrojenlerin kapasitansının frekansla deęiřimi

Şekilde azalan frekansla kapasitansların yüksek deęerlere sahip olduęu görüldü. Bu nedenle, AK-45 boya yüklü hidrojenlerin 10⁶ Hz'nin altındaki frekans bölgesinde rezistans ve reaktans deęerleri üzerinde arayüzey etkileşimlerinin ve yüksek kapasitans etkisinin etkili olduęu tespit edildi. Düşük frekans bölgesindeki yüksek kapasitans deęerlerinin sebebinin hidrojenlerin iç yüzey alanında fazla boya iyonu birikmesinden dolayı yüksek deęerler aldıęı tespit edildi. Dolayısıyla kapasitansın yüksek deęerlerinin AK-45 boya iyonu yüklü hidrojenler ile elektrot ara yüzeyler arasındaki sınır katmanlarında biriken yük depolanmasıyla da ilişkili olduęu belirlendi (Coşkun vd., 2019; Coşkun vd., 2017; Simon ve Gogotsi, 2010; Pieta vd., 2013; Radoń vd., 2018).

Farklı derişimlerde AK-45 boya yüklü hidrojenlerin logaritmik iyonik iletkenlięinin ($\ln \sigma_{ac}(\omega)$) geniş bir frekans aralıęındaki deęişimine ait deneysel sonuçlar 4.28'de verildi.



Şekil 4.28. Farklı derişimlerde AK-45 boya yüklü hidrojjelerin logaritmik iyonik iletkenliđinin ($\ln \sigma_{ac}(\omega)$) frekansla deđişimi

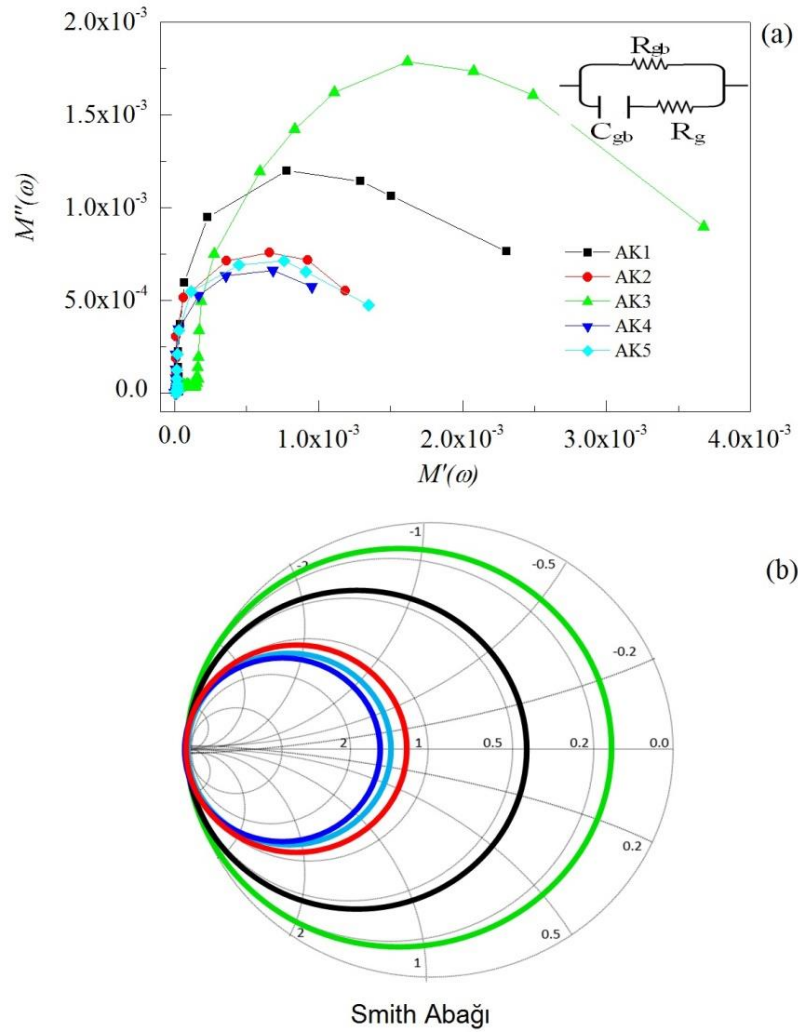
Frekansın artmasıyla logaritmik iletkenliđin sigmoidal arttıđı belirlenmiřtir. Farklı frekans bölgelerinde farklı iletim mekanizmaları tarafından yönetilen $\ln \sigma_{ac}(\omega)$ deđerleri sırasıyla 1. 2. ve 3. bölgeler olarak gösterildi. Bu bölgeler yüksek frekans bölgelerinde polarizasyon (1. bölge), dađılım (2. bölge) ve plato (3. bölge) olmak üzere 3 ayrı kısma ayrılarak verildi. Düşük empedans deđerleri ve yüksek mobilitesi nedeniyle en yüksek $\ln \sigma_{ac}(\omega)$ deđerleri AKI numunesine ait olduđu tespit edildi. Bu iletkenlik mekanizmaları frekans üssü/s-parametreleri ile tanımlandı ve bu s parametreleri Çizelge 4.3'de verildi.

Çizelge 4.3. Farklı derişimlerde AK-45 boya yüklü hidrojjelerin iletkenlik parametreleri

s parametreleri R-Square =0.98	AKI	AK2	AK3	AK4	AK5
I. Bölge	0.29	0.64	0.38	0.22	0.03
II. Bölge	1.10	1.30	1.09	1.16	1.33
III. Bölge	dc Bölgesi				

İletkenlik özellikleri 1. ve 3. bölgelerdeki elektron atlamalarından Jonscher Güç Yasası ile uyumluysen, 2. bölgede Süper Doğrusal Güç Yasası ile uyumlu olduđu belirlendi.

Farklı derişimlerde AK-45 boya yüklü hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün düzlem çizgilerinin ($M''(\omega)-M'(\omega)$) deneysel sonuçları ve onların Smith abağı ile uyumluluđu sırasıyla Şekil 4.29a ve 4.29b'de verildi. Şekil 4.29a'da görüleceđi üzere tüm numunelerin elektrik modülünün Cole-Cole grafiklerinin, eşdeđer elektrik devresini (RC) karşılayan bir yarım daire oluşturduđu gözlemlendi.

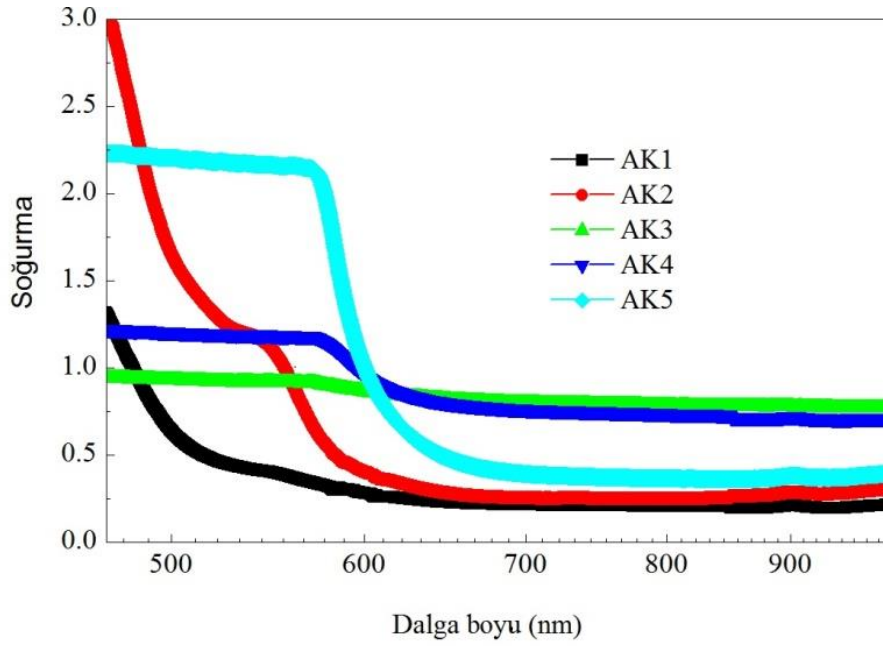


Şekil 4.29. (a) Farklı derişimlerde AK-45 boya yüklü hidrojellerin elektrik modülün düzlem çizgileri ve (b) onların Smith abağına uyarlanmış hali

Elektrik modülüsün Cole-Cole grafikleri incelendiğinde en küçük ve en büyük yarım dairelerin sırasıyla AK4 ve AK3 örneklerine ait olduđu görüldü. Bu, en küçük direncin ve dolayısıyla en yüksek elektriksel iletkenliđin AK4 örneđine ait olduđunu göstermesi açısından önemli bulundu. Tüm örneklerin eşdeđer elektrik devresine karşılık gelen Cole-Cole grafiklerinin empedans devresine uygunluđu Şekil 4.29b' de verilen Smith abağı ile

test edildi (Okutan vd., 2018; Öztürk vd., 2018; Coşkun vd., 2017; Smith, 1939; Jeedi vd., 2022).

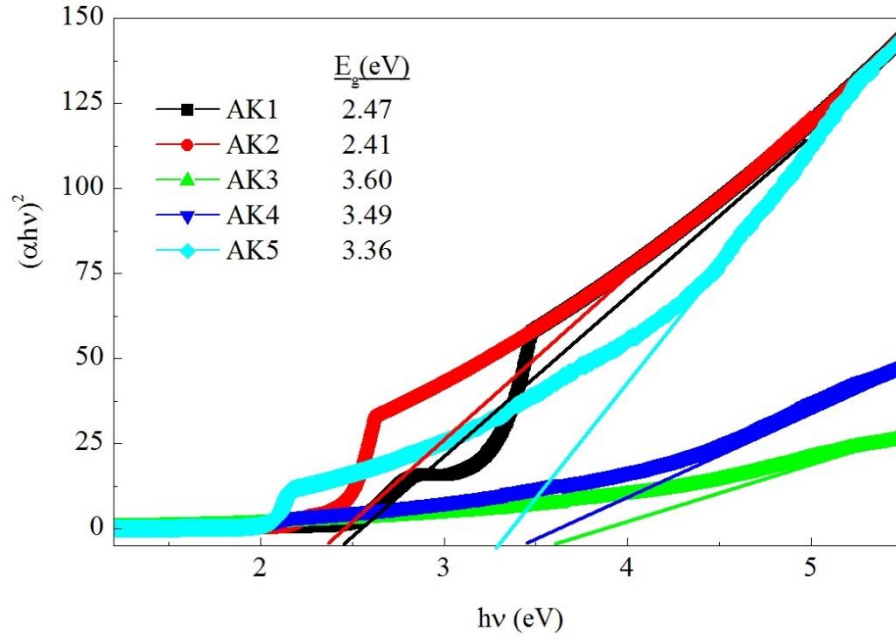
AK-45 boya katkıli hidrojeller için UV spektrumlarının dalga boyu varyasyonu Şekil 4.30'da verildi.



Şekil 4.30. AK-45 boya katkıli hidrojeller için UV spektrumlarının dalga boyu varyasyonu

Numunelerin UV spektrumları, oda sıcaklığında 450-950 nm dalga boyu aralığında kaydedildi. Numunelerin tek pik değeri 550 ile 600 nm arasında gözlemlendi. Bu tepe değerleri, AR moleküllerinin dipolar salınımlarının/dört kutuplarının innervasyonu ile ilgili olduğu belirlendi (Coşkun vd., 2019; Okutan vd., 2018; Owen, 1996). AR5 örneğinin absorptans değerinin dipolar özelliğinden dolayı en yüksek, AR1 örneğinin absorptans değerinin ise en düşük olduğu belirlendi.

Şekil 4.31' de farklı derişimdeki AK-45 boya katkıli hidrojeller için $(ahv)^2$ 'ye karşı (hv) grafiklerinin optik bant boşlukları verildi.



Şekil 4.31. Farklı derişimlerde AK-45 boya katkılı hidrojjeller için $(\alpha hv)^2$ 'ye karşı (hv) grafiklerinin optik bant boşlukları

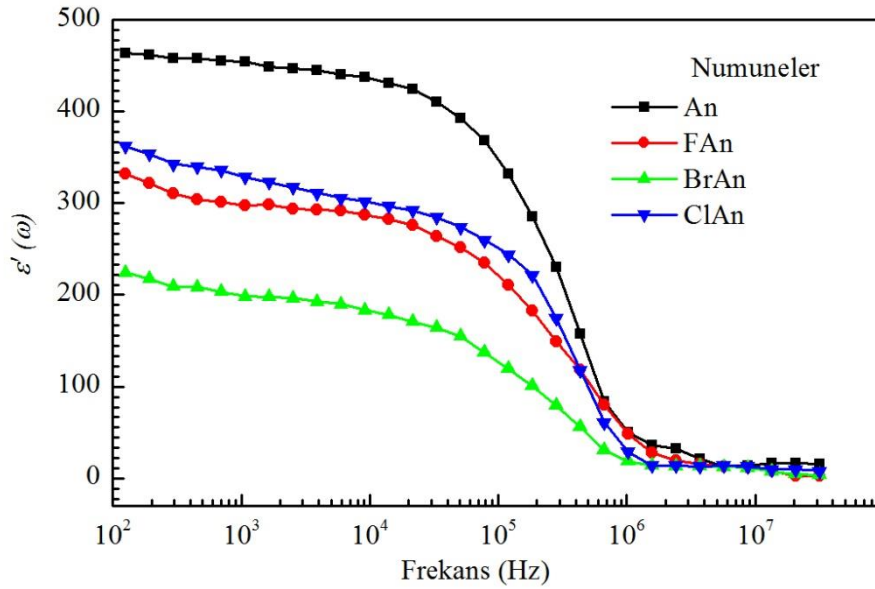
Farklı derişimde AK-45 boya katkılı hidrojjeller için optik bant boşlukları (E_g), Şekil 4.31'deki $(\alpha hv)^2$ 'ye karşı (hv) grafiklerinden belirlendi (Tauc, 1968, Yu vd., 2018). Şekil 4.31'den görülebileceği gibi, farklı derişimlerdeki AK-45 boya katkılı hidrojjeller için optik bant boşlukları (E_g) yeterince büyük bir değere sahiptir. Enerji aralığındaki bu büyük değerlerin, hidrojel ağ yapısında yüklenmiş AK-45 boya moleküllerinin arayüzey etkileşimleri ile ilgili olabileceği sonucuna varıldı. Bu değerlerin, yasak aralıkta optik geçişler sağlayan yüksek enerjili fotonlardan kaynaklanabileceği ve bu nedenle Brown hareketi ile açıklanabileceğini sonucuna varıldı (Coşkun vd., 2019; Yalçın vd., 2013; Öztürk vd., 2018; Okutan vd., 2015; Rodrogez ve Salinas-Rodrogez, 1988; Feynman vd., 1964).

4.6 Anilin ve Anilin Halojenürler Katkılı Hidrojellerin Empedans Spektroskopi Analizi

Anilin ve anilin halojenürler katkılı hidrojjellerin karmaşık dielektrik sabitin gerçek kısmı, dielektrik sabitin sanal kısmı, tanjant faktörü, rezistansı, reaktansı, kapasitansı, karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmı, karmaşık elektrik modülünün sanal kısmı, logaritmik iyonik iletkenliğinin frekansla gelişimleri, karmaşık dielektrik düzlem çizgileri ve bunların teorik Davidson-Cole çizgileri ve Smith abağı eşdeğer empedans devresi

sırasıyla Şekil 4.32, Şekil 4.33, Şekil 4.34, Şekil 4.35, Şekil 4.36, Şekil 4.37, Şekil 4.38, Şekil 4.39, Şekil 4.40, Şekil 4.41, Şekil 4.42a ve Şekil 4.42b' de verildi. Anilin ve anilin halojenürler katkılı bu hidrojenlerin frekansla gelişimine etki eden dielektrik mekanizmaları düşük ve yüksek frekans bölgeleri başta olmak üzere önemli frekans değerlerinde detaylıca incelendi. Bu malzemelerin biyo-sensör, entegre devreler ve kapasitif özellikler gibi opto-elektronik davranışlarının hangi şartlar altında olacağı belirlendi.

Anilin ve anilin halojenürler katkılı hidrojenler için frekansın bir fonksiyonu olarak çizilen karmaşık dielektrik sabitinin gerçek ($\epsilon'(\omega)$) kısmının frekansla değişimi Şekil 4.32'de gösterildi.

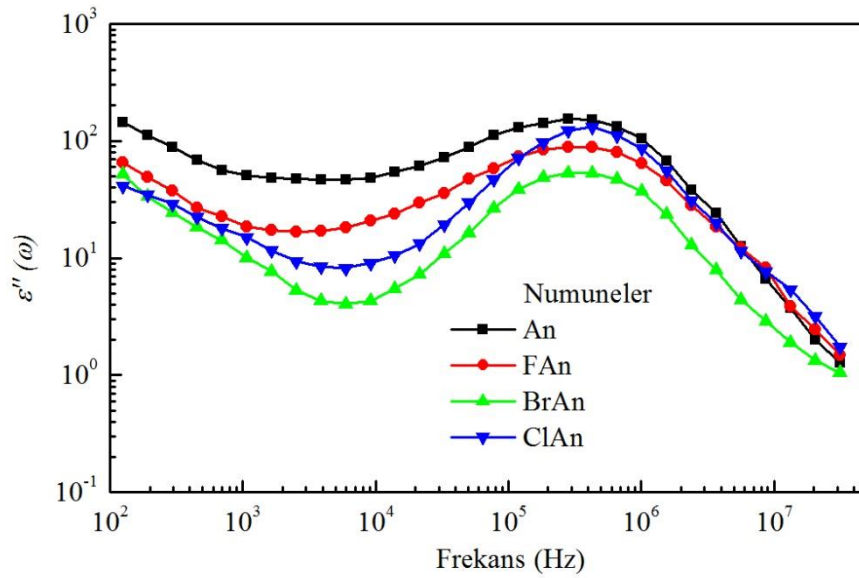


Şekil 4.32. Anilin ve anilin halojenürler katkılı hidrojenlerin karmaşık dielektrik sabitinin gerçek kısmının frekansla değişimi

Anilin ve anilin halojenürler katkılı hidrojenlerin karmaşık dielektrik sabitinin gerçek kısmının ($\epsilon'(\omega)$) deneysel ölçümlerinin değerlendirilmesi, 10^2 ile 10^8 Hz arasındaki frekans aralığında gerçekleştirildi. Dielektrik sabitinin gerçek kısmının artan frekansla lojistik olarak azaldığı görüldü. Düşük frekans bölgesinde elektrot ve arayüz polarizasyonu nedeniyle $\epsilon'(\omega)$ değerlerinin düşük frekans bölgesinde daha yüksek, yüksek frekans bölgesinde ise daha düşük olduğu gözlemlendi. Tüm örneklerin hem yüksek hem de düşük frekans bölgesinde benzer davranış sergilediği tespit edildi. An katkılı hidrojenlerin frekans devrinin diğer numunelere göre daha yüksek ve BrAn katkılı

hidrojellerin daha düşük olduğu şekilden anlaşıldı. 10^4 ile 10^6 Hz arasında artan frekansla $\varepsilon'(\omega)$ değerlerinin monoton olarak azaldığı gözlemlendi. Tüm numuneler için dielektrik sabitinin gerçek ($\varepsilon'(\omega)$) kısımlarının genellikle frekanstan bağımsız olduğu ve 10^6 Hz'in üzerinde yaklaşık sıfır değer aldığı bulundu. 10^4 Hz'den sonra $\varepsilon'(\omega)$ değerlerinin sıfıra doğru gitme eğiliminin yüksek frekans bölgesindeki yüksek kapasitif etkiden kaynaklandığı saptandı (Öztürk vd., 2021; Sengwa ve Sankhla, 2007).

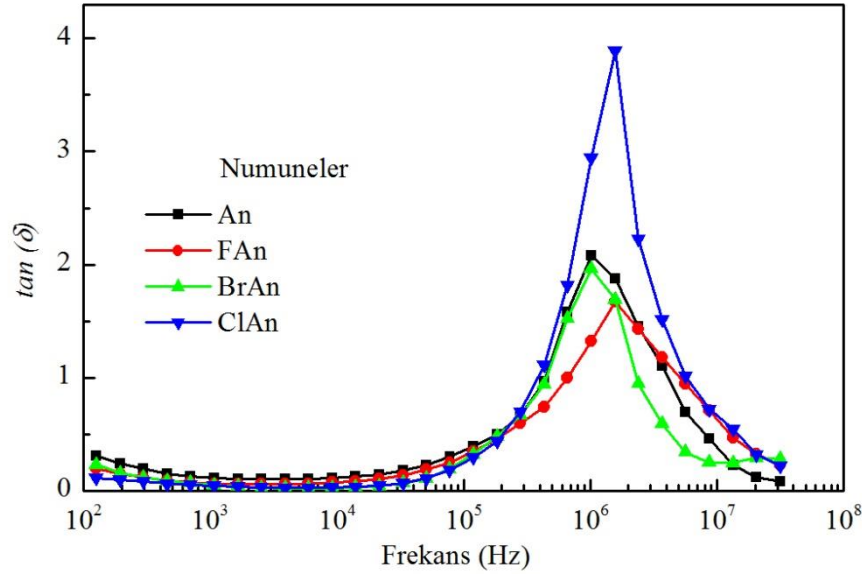
Anilin ve anilin halojenürler katkılı hidrojeller için frekansın bir fonksiyonu olarak çizilen karmaşık dielektrik sabitinin sanal ($\varepsilon''(\omega)$) kısmının frekansla değişimi Şekil 4.33'de gösterildi.



Şekil 4.33. Anilin ve anilin halojenürler katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin sanal kısmının frekansla değişimi

Dielektrik sabitinin hayali ($\varepsilon''(\omega)$) kısımları, Şekil 4.33' de 10^2 ve 10^4 Hz arasında katlanarak azaldığı gözlemlendi. Ancak 10^4 Hz'in üzerinde 10^6 Hz'e kadar lineer olarak azalmakta olup, bu frekansta bir pik elde edildi. Tüm örnekler için 10^6 Hz'e yakın bu pikin nedeninin iletkenlikteki artış, dielektrik gevşeme mekanizması ve ayrıca enerji kaybı ile ilgili olduğu saptandı. Bu pikten sonra, $\varepsilon''(\omega)$ değerleri artan frekansla sert bir biçimde azaldığı gözlemlendi. Pikten sonraki bu azalmanın hareketliliğin artmasından kaynaklandığı belirlendi.

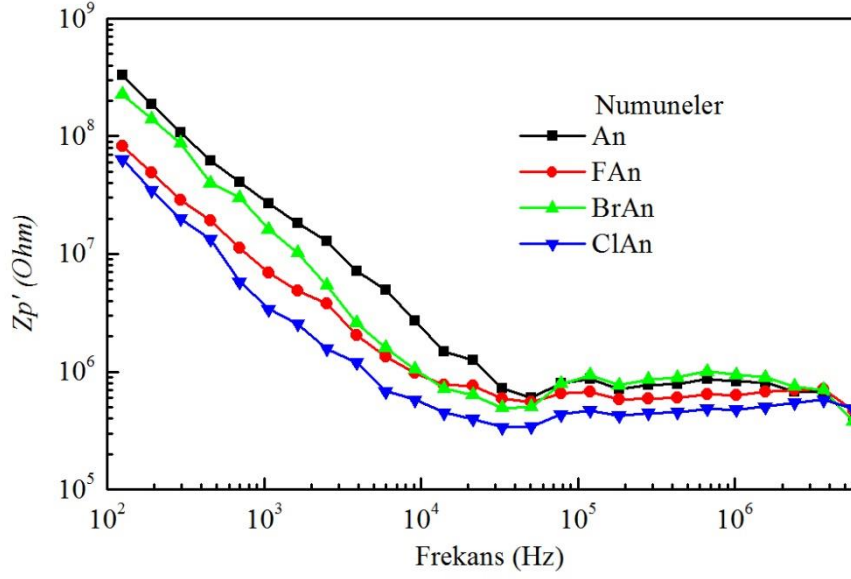
Şekil 4.34’ de anilin ve anilin halojenürler katkıli hidrojellerin tanjant faktörünün frekansla olan değişimine ait deneysel sonuçlar gösterildi.



Şekil 4.34. Anilin ve anilin halojenürler katkıli hidrojellerin tanjant faktörünün frekansla olan değişimi

Tüm örnekler için tanjant faktörünün frekans evriminin Şekil 4.34'de hem yüksek hem de düşük frekans bölgesinde benzer davranış sergilediği görüldü. Tüm örnekler için $\tan(\delta)$ değerlerinin eğilimi düşük frekans bölgesinde sıfıra doğru gittiği belirlendi. Bu eğilim, hidrojel iyonlarının arayüzey etkileşimlerinden kaynaklanan elektrot polarizasyon etkisinden kaynaklandığı tespit edildi. Şekilden de görüleceği üzere, tüm örnekler için $\tan(\delta)$ frekans evriminin artan frekansla bir tepe değerine ulaştığı gözlemlendi (Coşkun vd., 2012; Coşkun vd., 2017; Okutan vd., 2015; Okutan vd., 2018; Öztürk vd., 2018; Öztürk vd., 2021; Yalçın vd., 2021; Coşkun vd., 2019; Yalçın vd., 2013; Ranjan vd., 2014). Sonuç olarak, tüm örnekler için kayıp tanjant faktörünün yüksek frekans bölgesinde gözlemlendiği ve düşük frekans bölgesinde yüksek kapasitif etkinin aktif olduğu belirlendi (Coşkun vd., 2012; Coşkun vd., 2017; Okutan vd., 2018; Öztürk vd., 2018; Öztürk vd., 2021; Yalçın vd., 2021; Coşkun vd., 2019; Yalçın vd., 2013; Arbizzani vd., 2001).

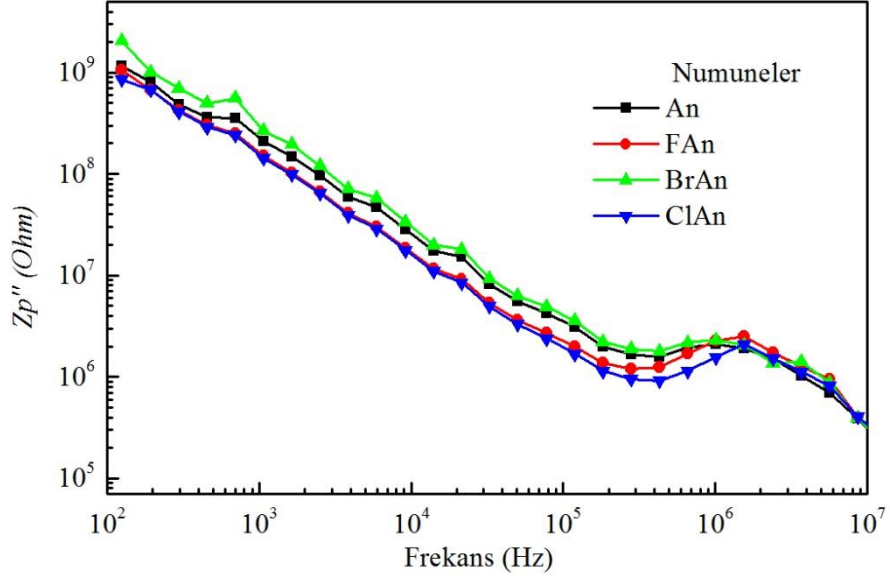
Şekil 4.35’de anilin ve anilin halojenürler katkıli hidrojellerin karmaşık empedansının gerçek kısmının (rezistansın) frekansla değişimi gösterildi.



Şekil 4.35. Anilin ve anilin halojenürler boyası katkılı hidrojelilerin karmaşık empedansının gerçek kısmının (rezistans) frekansla değişimi

Bu rezistansın deneysel ölçümlerinin değerlendirilmesi, 10^2 ile 10^6 Hz arasındaki frekans aralığında gerçekleştirildi. Şekil 4.35, tüm örneklerin direnç değerinin, 10^2 ila 10^5 Hz frekans aralığında artan frekansla neredeyse üssel olarak azaldığını açıkça görüldü. Tüm örneklerin 10^5 Hz'in üzerindeki frekans aralığında neredeyse frekansa bağımsız davranış sergilediği tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde tüm numunelerin direnci yüksek değer alırken uygulanan dış elektrik alanının etkisi altında anilin ve anilin halojenür iyonlarının elektrot polarizasyonu ile yakından ilgili olduğu görüldü. Numunelerin direncinin giderek artan frekansla birlikte yüksek değerler almasını sağlayan elektrot polarizasyonunun da etkisini kaybettiği ve dolayısıyla yüksek kapasitif fonemenlerin etkisiz hale geldiği tespit edildi. Ayrıca katkı konsantrasyonuna bağlı olarak hidrojel ara yüzeyinde oluşan tane sınırlarının dirence etkisinin tamamen ortadan kalktığı ve yukarıda belirtildiği gibi direncin konsantrasyon oranından bağımsız hareket ettiği saptandı (Kennelly, 1893; Belal Hossen ve Akther Hossain, 2015; Horowitz ve Hill, 1989; Kanungo vd., 2014).

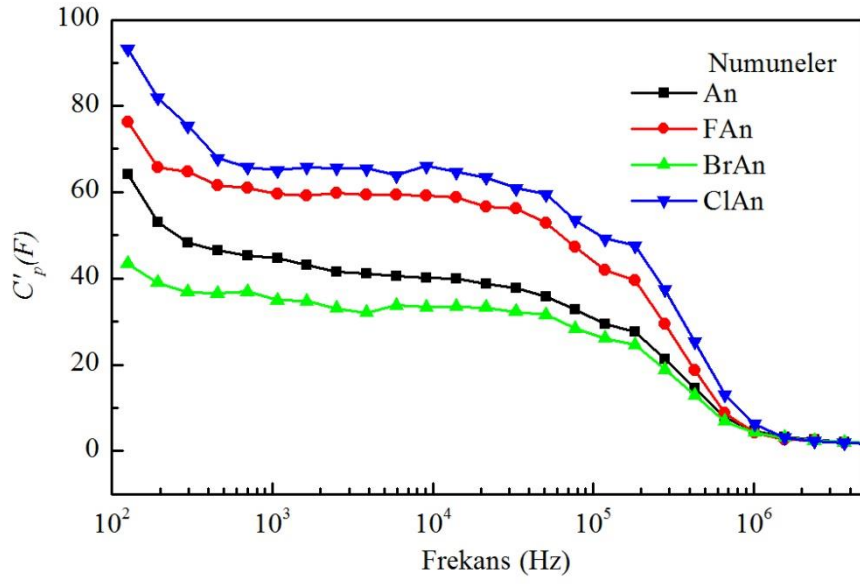
Şekil 4.36'da anilin ve anilin halojenürler katkılı hidrojelilerin karmaşık empedansının sanal kısmının (reaktans) frekansla (10^2 Hz ila 40 MHz aralığında) değişimi gösterildi.



Şekil 4.36. Anilin ve anilin halojenürler boya katkıli hidrojenlerin karmaşık empedansının sanal kısmının (reaktans) frekansla değişimi

Tüm numunelerin karmaşık empedansın sanal/reaktans ($Z''(\omega)$) kısımları 10^2 ila 10^8 Hz frekans aralığında artan frekansla neredeyse lineer olarak azaldığı görüldü ve aynı zamanda 10^5 Hz civarında derin kuyu ve 10^5 Hz'in üzerinde olarak tanımlanan yüksek frekans bölgesinde bir tepe değeri görüldü. Bu derin kuyuya büyük kapasitans etkinin neden olduğu saptandı.

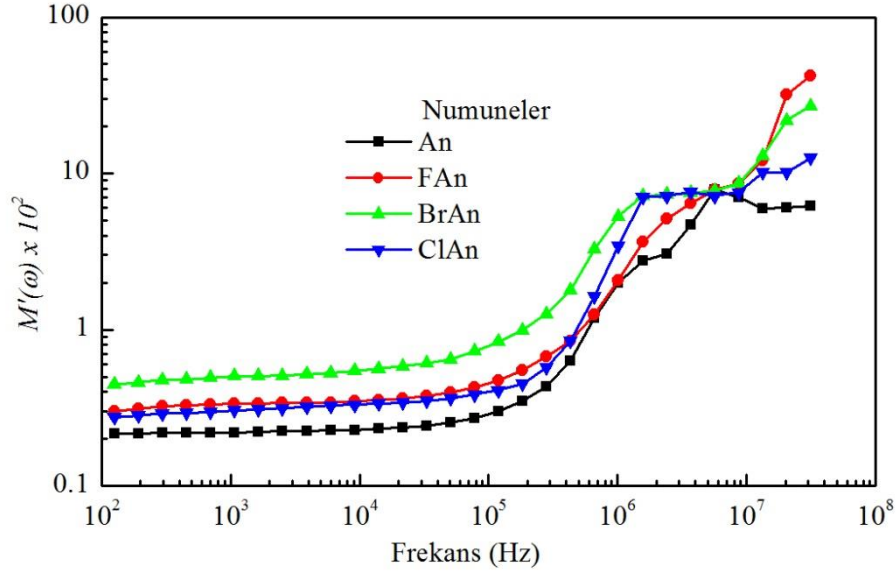
Şekil 4.37' de anilin ve anilin halojenürler boya katkıli hidrojenlerin kapasitansının frekansla değişimi verildi.



Şekil 4.37. Anilin ve anilin halojenürler boyası katkıli hidrojelilerin kapasitansının frekansla değişimi

Şekil 4.37 düşük frekans bölgesinde kapasitans değerlerinin yüksek olduğunu göstermektedir. Bu nedenle, 10^2 ila 10^6 Hz frekans aralığında katkıli hidrojelilerin reaktans ($Z''(\omega)$) ve direnç ($Z'(\omega)$) değerleri üzerinde büyük kapasitans etkileri ve arayüz etkileşimleri olduğu gözlemlendi. Bu bulgu sınır tabaka yük depolama mekanizmasına ve yüklü iç yüzeye atfedildi (Coşkun vd., 2017; Öztürk vd., 2018; Yalçın vd., 2021; Coşkun vd., 2019; Aureli ve Porfiri, 2012; Deepthi, 2020).

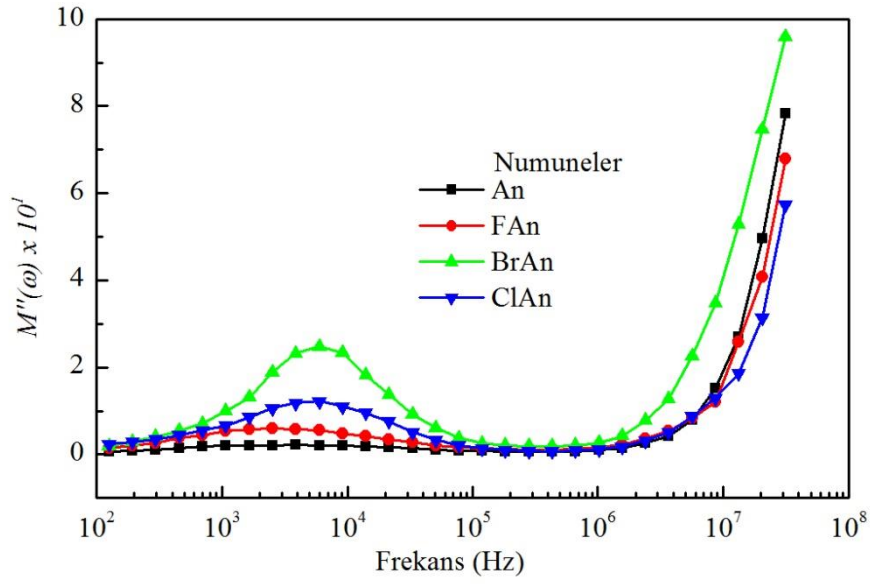
Anilin ve anilin halojenürler katkıli hidrojelilerin karmaşık elektrik modülünün gerçek ($M'(\omega)$) kısmının frekansla değişimi Şekil 4.38'de verildi.



Şekil 4.38. Anilin ve anilin halojenürler katkılı hidrojenlerin karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmının frekansla değişimi

Karmaşık geçirgenliğin gerçek kısmının ($M'(\omega)$) 10^5 Hz'e kadar düşük frekans bölgesinde sabit olduğu görüldü. Bunun nedeninin bu bölgedeki baskılanmış hidrojenlerin değerleri üzerindeki elektrot polarizasyon etkisi olduğu gözlemlendi. Bundan sonra, karmaşık elektrik modülünün gerçek ($M'(\omega)$) kısmının 10^6 Hz'ye kadar artan frekansla asimptotik olarak arttığı tespit edildi. Yüksek frekanslarda karmaşık elektrik modülünün gerçek ($M'(\omega)$) kısmı anilin ve anilin halojenür katkılı hidrojenlerdeki yük taşıyıcıların hareketliliği nedeniyle iletim olgusuna atfedilebilecek maksimum değere ulaştığı saptandı. Bu iletkenliğin ac iletkenliğine göre yük taşıyıcılarının kısa menzilli hareketliliğini öne süren rahatlama mekanizması ile ilgili olduğu bulundu.

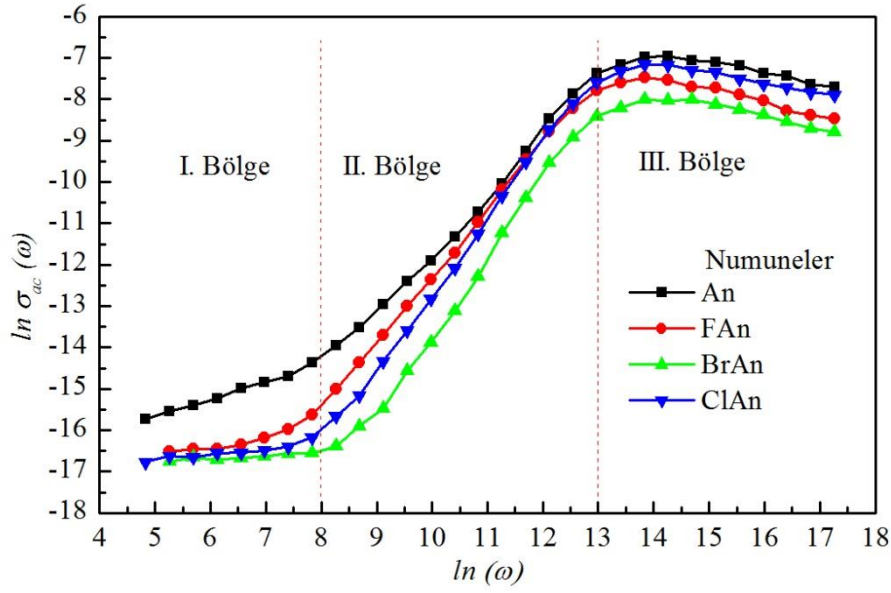
Anilin ve anilin halojenürler katkılı hidrojenlerin karmaşık elektrik modülünün sanal ($M''(\omega)$) kısmının frekansla değişimi Şekil 4.39' da verildi.



Şekil 4.39. Anilin ve anilin halojenürler katkılı hidrojelilerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının frekansla değişimi

Karmaşık elektrik modülünün sanal kısmı ($M''(\omega)$), düşük frekans bölgesinde sıfır olma eğiliminde olduğu görüldü. Bu durumun nedeni, düşük frekans bölgesinde anilin ve anilin halojenür katkılı hidrojelilerin dielektrik özelliklerini belirleyen elektrot polarizasyonu olarak belirlendi. En yüksek $M''(\omega)$ değeri BrAn baskılı hidrojele, en düşük değer An baskılı hidrojele ait olduğu gözlemlendi. BrAn ve ClAn baskılı hidrojel, orta frekans bölgesinde küçük bir tepe noktasına sahipken, yüksek frekans bölgesinde en yüksek değere ulaşmıştı tespit edildi. $M''(\omega)$ ' nin frekansla artarak maksimum değere ulaşmasının nedeni, elektrot polarizasyon etkisinin ortadan kalkması, dipol etkileşimleri, dielektrik gevşeme sürecinin aktivasyonu ve Stokes-Einstein ilişkisine bağlandı. Yüksek frekans bölgesinde anilin ve anilin halojenür boya iyonlarının hareketliliğinin giderek arttığı gözlemlendi (Coşkun vd, 2017; Okutan vd., 2015; Okutan vd., 2018; Öztürk vd., 2018; Coşkun vd., 2019; Deepthi, 2020; Hedvig, 1977; Ishai vd., 2013; Rouahi vd., 2013).

Anilin ve anilin halojenürler katkılı hidrojelilerin logaritmik iyonik iletkenliğinin ($\ln \sigma_{ac}(\omega)$) geniş bir frekans aralığındaki değişimine ait deneysel sonuçlar Şekil 4.40' da verildi.



Şekil 4.40. Anilin ve anilin halojenürler katkılı hidrojelilerin logaritmik iyonik iletkenliğinin ($\ln \sigma_{ac}(\omega)$) frekansla değişimi

Bu numunelerin $\ln(\omega)$ ' nin 10^3 Hz–40 MHz aralığındaki frekansla olan değişimi düşük frekans bölgesinde polarizasyon, orta frekans bölgesinde plato ve yüksek frekans bölgesinde dağılım bölgesi olmak üzere üç ayrı kısma ayrılarak verildi.

Bu numuneler $\ln \sigma_{ac}(\omega)$ ' nin frekansla değişimi düşük frekans bölgesinde polarizasyon, orta frekans bölgesinde dağılım ve ardından yüksek frekans bölgesinde neredeyse frekanstan bağımsız davranan plato bölgesi olmak üzere üç kısma ayırarak verildi (Coşkun vd, 2017; Yalçın vd., 2021; Jonscher, 1977; Gürbüz vd., 2016; Okutan vd., 2021; Pokhriyal ve Biswas, 2016; Yang, 2020). Frekanstan bağımsız iletkenliğin dc iletkenliği (σ_{dc}) ile ilişkili olduğu gözlemlendi. Elektrot polarizasyon etkisinin anilin ve anilin halojenür boya iyonlarının polarizasyonu ile meydana geldiği polarizasyon bölgesinde en yüksek logaritmik iyonik iletkenliğin An boya katkılı hidrojelde ve en düşük logaritmik iyonik iletkenliğin uygulanan dış elektrik alan yönünde BrAn boya katkılı hidrojelde olduğu tespit edildi. Bu bölgede, elektrot ve elektrot arayüzünde anilin ve anilin halojenür boya iyonlarının birikmesi nedeniyle iyonik iletkenliğin giderek azaldığı belirlendi. BrAn boya iyonlarının uygulanan dış elektrik alanın etkisi altında elektrot ve elektrot arayüzünde polarize olduğu ve serbestçe hareket edemediği belirlendi. Artan frekansla iyonik iletkenliğin arttığı dispersiyon bölgesinde, anilin ve anilin halojenür boya katkı hidrojelilerin tüm konsantrasyonları için $\ln(\omega)$ değerinin artan frekansla arttığı bulundu. Anilin ve anilin halojenür boya iyonlarının elektrot ve elektrot

arayüzündeki yüksek hareketliliği, bu bölgedeki $\ln(\omega)$ değerlerinin artışının ana nedeni olarak belirlendi. Her anilin ve anilin halojenür konsantrasyonu için iletim mekanizması hakkında bilgi veren frekans üssü/s-parametreleri, denklem (1.1) ile verilen $\ln\sigma_{AC}(\omega) - \ln(\omega)$ eğrilerinin eğimi ile polarizasyon, plato ve dağılım bölgelerinde ayrı ayrı hesaplandı. Hesaplanan s-parametreleri Çizelge 4.4' de verildi.

Çizelge 4.4. Anilin ve anilin halojenürler boya katkılı hidrojenlerin iletkenlik parametreleri

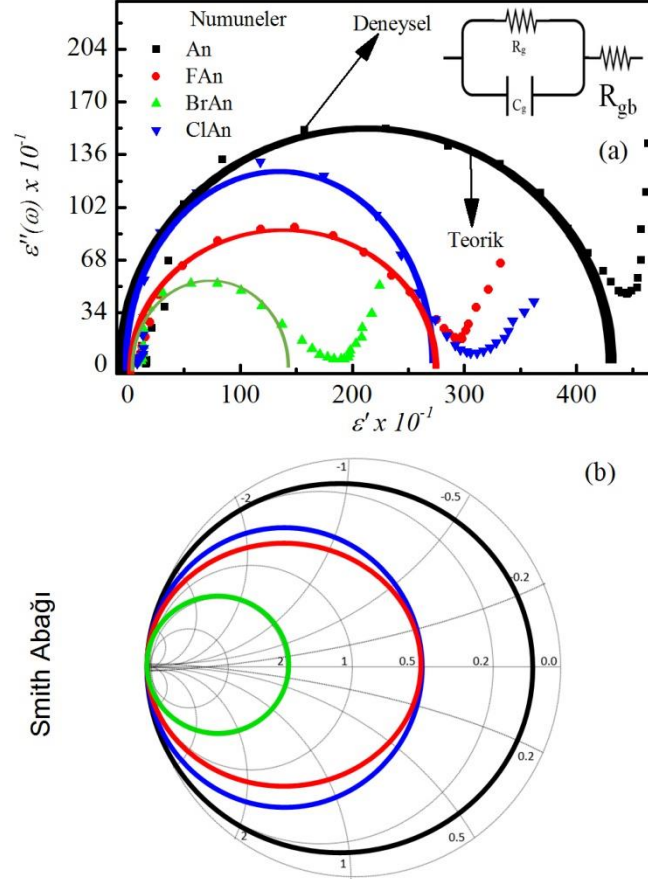
s parametreleri R-Square =0.98	An	FAn	BrAn	ClAn
I. Bölge	0.40	0.24	0.07	0.12
II. Bölge	1.47	1.62	1.89	1.85
III. Bölge	-0.23	-0.30	-0.25	-0.23

Tüm numunelerin frekans üssü 1. frekans bölgesinde $0 < s < 1$ değerlerini almıştır ve bu bölgedeki tüm numunelerin iletkenlik özellikleri Jonscher Kuvvet Yasası ile ilişkilendirildi. 2. Bölgede anilin ve anilin halojenür katkılılanmış hidrojenlerin s parametrelerinin 1'den büyük olduğu gözlemlendi. Bu bölgedeki tüm numunelerin iletim mekanizmasının süper doğrusal güç yasası ($s > 1$) ile ilişkili olduğu tespit edildi. 3. bölgede normalden farklı bir davranış gözlemlendi. Çünkü s parametreleri bu bölgede $s < 0$ olarak hesaplandı. Bunun nedeninin boya katkılı hidrojenlerin içindeki elektrik alan ile dış elektrik alan yönünün ters olması olduğu saptandı

Çizelge 4.5. Oda sıcaklığında anilin ve anilin halojenür serisi numuneler için dielektrik parametreleri

Parametreler R-Square=0.998	An	FAn	BrAn	ClAn
α	0.156	0.278	0.316	0.192
τ	3.95987E-6	3.87771E-6	6.66861E-6	3.7921E-6
ϵ_{∞}	463.73636	332.16455	224.43232	361.94338
ϵ_s	16.12903	2.36799	3.70497	7.93434
$\Delta\epsilon$	447.60733	329.79656	220.72735	354.00904
ϵ''_{max}	156.42	89.72	54.01	127.96
$\omega_c (s^{-1})$	351597.00	333036.70	369703.50	437652.86

Anilin ve anilin halojenür boya katkılı hidrojelilerin karmaşık dielektrik sabitinin Cole-Davidson deneysel ve teorik düzlem çizgileri ve bu sonuçların Smith abağına uyarlanmış hali sırasıyla Şekil 4.41a ve Şekil 41b' de verildi.



Şekil 4.41. (a) Karmaşık dielektrik düzlem çizgileri ve bunların teorik Davidson-Cole çizgileri, (b) Anilin ve anilin halojenür boya katkılı hidrojel için Smith abağı eşdeğer empedans devresi

Şekil 41a' dan ampirik denklemi aşağıda verilen Cole-Davidson gevşeme modeli ile uyumlu olduğu görüldü (Raju, 2017; Nigmatullin ve Ryabov, 1997).

$$\epsilon^*(\omega) - \epsilon_\infty = \epsilon_s - \epsilon_\infty / (1 + i\omega\tau)^\beta \quad (4.1)$$

Burada ϵ_∞ sonsuz frekans dielektrik sabitidir, ϵ_s düşük frekanslı geçirgenlik aynı zamanda statik olarak tanımlanır, τ ise genelleştirilmiş gevşeme süresi ile ilgili bir parametredir. β belirli bir malzeme için bir sabittir. Bu parametre 0 ile 1 ($0 \leq \beta \leq 1$)

arasında deęerler alır. β parametresi bir deęer aldıęında, karmaşık dielektrik düzlem çizgileri Debye gevşeme modeli ile ilişkilendirildi (Raju, 2017; Hill ve Dissado, 1985). Örneklerin α parametre deęerlerinin sırasıyla 0.156, 0.278, 0.316 ve 0.192 olduęu Çizelge 4.5' de görüldü. Bu deęerler sıfıra en yakın deęerlerdir. Bu yüzden Cole-Davidson modelinde bir dairesel eğri yay gibi görüldüğü gözlemlendi. Katkılanmış bir hidrojel numunesi, hidrojel kanallarındaki boya moleküllerinin daha geniş bir dağılıma sahip olması nedeniyle en geniş gevşeme grafiklerine sahip olduęu tespit edildi. Şekil 4.41b'de gösterilen Smith abaęı, deneysel modelin saçılma parametrelerinin ve bunların teorik grafięinin harika bir uyum gösterdięini belirledi. Kısacası, bu şekillere göre deneysel düzlem grafikleri, teorik Cole-Davidson grafikleri ve eşdeęer RC devrelerine karşılık gelen Smith abaęına birbiriyle uyumlu olduęu saptandı. Anilin ve anilin halojenür katkılı hidrojellerde Cole-Cole diyagramı ve Smith abaęına uyarlanan Cole-Davidson gevşeme modeli ile uyumlu olduęu belirlendi. Şekil 4.1a'da gösterilen karmaşık dielektrik sabiti için Cole-Davidson çizgileri incelendięinde, ekstra dirençle birlikte ikinci bir yarım daire oluşturma eğiliminde olduęu gözlemlendi. Bu direnç, anilin ve anilin halojenür boya ve hidrojel molekülleri arasındaki tane sınırlarından kaynaklandıęı bulundu. Şekilde gösterilen RC devresi için farklı konsantrasyonlarda anilin ve anilin halojenür baskılı hidrojellerin farklı direnç ve kapasitans deęerlerine sahip olduęu belirlendi. Farklı konsantrasyonlarda boya katkılı numuneler içerisinde direnci en düşük ve kapasitans deęeri en yüksek olan RC devresinin BrAn katkılı hidrojele ait olduęu anlaşıldı. Dolayısıyla elektronik uygulamalar için en uygun RC devresinin BrAn katkılı hidrojel olduęu saptandı.

BÖLÜM V

SONUÇ VE TARTIŞMA

5.1 Kalsit Katkılı Hidrojeller İçin Sonuç ve Tartışma

KI katkıli hidrojellerin ve KII katkıli hidrojellerin yapısal ve morfolojik özellikleri, X-ışını kırınımı (XRD), taramalı elektron mikroskobu (TEM) ve enerji dağılımlı X-ışını (EDX) teknikleri kullanılarak analiz edildi. Numunelerin dielektrik ve optik özellikleri, sırasıyla empedans spektroskopisi (ES) ve UV-Vis spektroskopi teknikleri kullanılarak belirli frekans ve dalga boyu aralığında analiz edildi. Ayrıca logaritmik iletkenlik eğiminden her iki örneğin farklı frekans bölgelerindeki iletkenlik mekanizmalarını tanımlayan frekans üssü (s-parametresi) bulundu. Her iki numunenin dielektrik özellikleri sırasıyla düşük, orta ve yüksek frekans bölgelerinde Maxwell-Wagner/Koop'un teorisi ve Brown hareketi, polarizasyon mekanizmaları ve dielektrik gevşeme mekanizması ile uyumludur (Maxwell, 1873; Wagner, 1914). Düşük frekans bölgesinde, her iki numune için elektrot ve arayüz polarizasyonu, kalsit moleküllerinin hidrojel kanalları içindeki hareketinin arayüz etkileşimleri nedeniyle sınırlı olmasına neden olan çok sayıda tane sınırına atfedildi. Kalsit katkıli hidrojellerin kapasitans değerleri artan frekansla dielektrik gevşeme nedeniyle azalırken, KII örneğinin moleküllerinin daha kolay polarize olduğu ve kapasitans değerinin daha yüksek olmasına neden olduğu belirlendi. Aynı zamanda tüm frekans aralığında molarite arttıkça kalsit katkıli hidrojellerin $\log \sigma_{ac}(\omega)$ değerleri de arttığı tespit edildi. Ayrıca kalsit katkıli hidrojellerin optik davranışlarının Tauc kanunu (Tauc, 1968) ile uyumlu olduğu belirlendi. Dolayısıyla bu kalsit katkıli hidrojellerin opto-elektronik cihazlarda kullanılabileceği sonucuna varıldı. KI ve KII örneklerinin karmaşık elektrik modülünün düzlem grafiklerinin, sırasıyla Davidson-Cole ve Havriliak-Negami gevşeme modellerine göre davrandığı bulundu (Havriliak ve Negami, 1966; Cole ve Robert, 1941; Maaroufi vd., 2016). Kalsit katkıli hidrojellerin deneysel karmaşık elektrik modülü düzlem grafiklerinin teorik Cole-Cole grafikleri elde edildi ve bunların empedans devresine karşılık gelen Smith abağı ile uyumluluğu tespit edildi (Cole ve Cole, 1941; Belal Hossen ve Akther Hossain; 2015). Farklı proseslerle üretilen kalsit katkıli hidrojellerin Cole-Cole grafikleri ve Smith abağına uyarlanan KI ve KII örneklerinin farklı eşdeğer elektronik devrelere karşılık geldiği belirlendi. Sonuç

olarak hem KI hem de KII örneklerinin yüksek dielektrik değerleri ve düşük dielektrik kayıpları nedeniyle farklı elektronik devrelerde kullanılabilceđi sonucuna varıldı.

5.2 Asidik Kırmızı Boya (AK-45) Katkılı Hidrojeller İin Sonu ve Tartıřma

Farklı dozda AK-45 boya katkılı hidrojellerin kristalografik, topografik ve düzlemsel özellikleri, X-ıřını kırınımı (XRD), taramalı elektron mikroskobu (TEM) ve enerji dağılımlı X-ıřını (EDX) kullanılarak oda sıcaklığında analiz edildi. Örneklerin optik ve dielektrik özellikleri, sırasıyla 450 ve 950 nm dalga boyunda ve 100 Hz - 40 MHz frekans aralığında UV spektroskopisi ve empedans spektroskopisi (IS) teknikleri kullanılarak analiz edildi. Karmařık elektrik modülünün Cole-Cole izimlerinin uyarlandıđı Smith abađından malzemelerin ne tür bir RC devresine eřdeđer olduđu belirlendi. Bu nedenle AK-45 baskılı hidrojellerin opto-elektronik cihazlarda kullanılabilceđi sonucuna varıldı. Logaritmik iletkenlik eğiminden tüm numunelerin farklı frekans bölgelerindeki iletkenlik mekanizmalarını açıklayan frekans üssü (s -parametresi) bulundu. Düşük frekanslarda dielektrik tepkiye frekansa bađlı büyük katkıların, Maxwell-Wagner ve Koop'un teorileri olarak bilinen yük birikimlerinden kaynaklandıđı belirlendi. Orta ve yüksek frekans bölgelerindeki dielektrik özelliklerin kaynađı, sırasıyla polarizasyon mekanizmasına ve dielektrik gevşemeye bađlandı. Ayrıca yasak enerji boşluklarındaki optik geçiřlerin yüksek enerjili fotonlardan kaynaklandıđı sonucuna varıldı ki bu Brownian hareketi ile açıklanabilir. Katyonik boya katkılı hidrojellerin kayıp teđet faktörü düşük frekans bölgesinde bulunurken, anyonik boyalar (AK-45) katkılı hidrojellerin kayıp teđet faktörü yüksek frekans bölgesinde bulundu. AK-45 katkılı hidrojeller için logaritmik iletkenliđin ($\log \sigma_{ac}(\omega)$) artan frekansla sigmoidal olarak arttıđı özelti miktarına göre detaylı olarak ortaya konuldu. AK-45 baskılı hidrojellerin karmařık dielektrik sabiti, elektrik modülü ve empedansın Cole-Cole grafiklerinin eř zamanlı olarak gözlemlenmesi nedeniyle opto-elektronik cihazlarda ok işlevli olarak kullanılabilceđi belirlendi. Karmařık elektrik modülü, karmařık geirgenliđin tersi ile tanımlanır ve kaplanmış hidrojel kompozitin elektrik iletimini ve kaplanmış hidrojel kompozitin dinamik özelliklerini yansıtır.

5.3. Anilin ve Anilin Halojenür Boyaları Katkılı Hidrojeller İin Sonu ve Tartıřma

Anilin ve anilin halojenür boyları baskılı hidrojellerin kristalografik, yapısal, optik ve dielektrik özellikleri, oda sıcaklığında XRD, EDX, TEM ve UV-Vis absorpsiyon

spektroskopisi teknikleri kullanılarak analiz edildi. Numunelerin dielektrik ve optik özellikleri, oda sıcaklığında 190 nm ve 850 nm dalga boyu arasında 100 Hz ila 40 MHz aralığında UV-Vis spektroskopisi ve empedans spektroskopisi (ES) teknikleri kullanılarak incelendi. (1 1 1), (3 1 1) ve (5 1 1) düzlemlerinin pikleri, anilin ve anilin halojenür boyaları katkılı hidrojenlerin diğer piklerinden daha yüksektir çünkü anilin ve anilin halojenür boya molekülleri hidrojen bağları ile daha fazla etkileşime girer. 20.31° açı ve (111) düzlemi ile katılan anilin ve anilin halojenürler için en yüksek tepe noktasının, anilin ve anilin halojenürler arasındaki boya molekülleri ve hidrojen bağları arasındaki heterojen dağılımın moleküller arası kırınımdan kaynaklandığı sonucuna varıldı. Anilin ve anilin halojenür katkılı hidrojen moleküllerinin dipolar salınımlarının innervasyonu ile ilgili BrAn katkılı hidrojen örneğinin opto-elektronik uygulama için diğer örnekler göre daha uygun olabilecek yüksek enerji bant aralığına sahip olduğu sonucuna varıldı. Kabul edilen Smith abağından anilin ve anilin halojenür katkılı hidrojenlerin dielektrik düzlem çizimlerinin Cole-Davidson gevşeme modeliyle uyumlu olduğu ve bir RC devresine eşdeğer olduğu sonucuna varıldı, bu da onu opto-elektronik alanlardaki uygulamalar için harika bir aday haline getirdi. Tüm numuneler için iletkenlik mekanizmalarını tanımlayan s-parametreleri hesaplandı. Tüm parametreler 1. frekans bölgesinde $0 < s < 1$ arasında hesaplandı. Dolayısıyla bu bölgedeki tüm numunelerin iletkenlik mekanizmasının Jonscher Kuvvet Yasası ile uyumlu olduğu söylenebilir. Ancak ikinci bölgede 1'den büyük olarak hesaplandı. Bu bölgede tüm numuneler için iletkenlik mekanizması Süper Doğrusal Güç Kanunu ile ilişkilendirildi. Bunların aksine üçüncü bölgede tüm örnekler için s parametreleri beklenmedik bir şekilde sıfırın altında hesaplandı. Bunun nedeni, dış elektrik alanın anilin ve anilin halojenür katkılı hidrojenlerin iç elektrik alanı üzerinde sıkıştırma olmasıdır. Bu nedenle negatif iletkenlik olduğu tespit edildi.

Her üç numuneninde (kalsit, asidik kırmızı-45 boya, anilin ve anilin halojenür boya katkılı hidrojenler) hidrojenlerle aşırı kopolimerizasyonunun başarılı olduğu saptandı. KII, AR4 ve An katkılı hidrojenlerin kapasitans değerlerinin diğer numunelere göre daha yüksek değer aldığı belirlendi. Bu sebepten yüksek kapasitif özelliklerin ihtiyaç duyulduğu elektronik devreler için daha uygun oldukları tespit edildi. Hem kalsit, hem asidik kırmızı-45 boya hem de anilin ve anilin halojenür boya katkılı hidrojenlerin karmaşık dielektrik sabitinin gerçek kısmının ($\epsilon'(\omega)$) düşük frekans bölgesinde yüksek değer aldığı, yüksek frekans bölgesinde ise daha düşük değerler aldığı gözlemlendi.

Düşük frekanslarda en yüksek $\varepsilon'(\omega)$ değerininin kalsit katkılı, en küçük değerin ise AK-45 katkılı örnekler için tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde $\varepsilon'(\omega)$ değerlerinin yüksek olması elektrot polarizasyona atfedildi. Bu örneklerin tanjant faktörünün ($\tan(\delta)$) tepe değerine sahip olması frekans salınımbağımlılığından dolayı olduğu gözlemlendi. Kalsit katkılı hidrojenlerin tepe değeri düşük frekans bölgesinde (10^3 - 10^4 Hz) gözlenirken AR-45 ve anilin ve Anilin halojenür katkılı hidrojenlerin tepe değeri yüksek frekans bölgesinde (10^6 - 10^7 Hz) gözlemlendi. Düşük frekanslarda en yüksek $M'(\omega)$ değerini anilin ve anilin halojenür katkılı hidrojenler alırken, yüksek frekanslarda ise iyonik iletkenlikten dolayı bütün numunelerin $M'(\omega)$ değerlerinin yüksek olduğu görüldü. Bütün örneklerin özellikle düşük frekans bölgelerinde yüksek kapasitans değerleri aldığı saptandı. Anilin ve anilin halojenür boya katkılı hidrojenler en yüksek kapasitif değer alırken en düşük kapasitif değeri ise AR-45 boya katkılı hidrojenlerin aldığı tespit edildi. Kalsit katkılı hidrojenlerin diğer numunelere göre daha yüksek iyonik iletkenliğe sahip olduğu tespit edildi. Bunun sebebi kalsit moleküllerinin hidrojel ağları içerisindeki mobilitesinin daha yüksek olmasına bağlandı. Boya iyonu katkılanmış hidrojenlere kıyasla daha yüksek iyonik iletkenlik ve daha düşük empedans değerlerine sahip olan kalsit moleküllü katkılanmış hidrojenlerin teknolojik uygulamalarda kullanımının daha uygun olduğu tespit edildi.

Kalsit katkılı hidrojenlerin Cole–Cole ve Havrialik Negami, AK-45 boya katkılı hidrojenlerin Cole–Cole, anilin ve anilin halojenür katkılı hidrojenlerin Davidson-Cole modellerine göre düzlem grafiklerine karşılık gelen Smith abağı eğrileri elde edildi. Bu Smith abağı eğrilerinden yararlanılarak her bir örneğe karşılık gelen eşdeğer elektrik devreleri tespit edildi. Bu sonuçlara göre kalsit, AR-45 boya, anilin ve anilin halojenür boya katkılı hidrojenlerin optoelektronik devreler, süper kapasitörler, ilaç salınım sistemleri, iyon değişim uygulamaları, yapay organ, kontakt lens, biyosensör, boyar madde uzaklaştırma ve kozmetik sektörü teknolojilerinde kullanılacak nitelikte malzemeler olduğu öngörüldü (Coşkun vd., 2017; Okutan vd., 2015; Öztürk vd., 2018; Yalçın vd., 2023).

KAYNAKLAR

Ahmed, E.M., “Hydrogel: Preparation, characterization, and applications: A review”, *Journal of Advanced Research*, 6, 105–121, 2015.

Alpaslan, D., Hidrojel ve kompozitlerin sentezi, karakterizasyonu ve bazı radyonükleitlerin sulu ortamdan kazanımı, Doktora Tezi, *Yüzüncü Yıl Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, Van, s. 1-8, 2014.

Anderson, J.M. and Langone, J. J., “Issues and perspectives on the biocompatibility and immunotoxicity evaluation of implanted controlled release systems”, *Journal of Controlled Release* 57, 107–113, 1999.

Anisha, S., Kumar, S.P., Kumar, G.V. and Garima, G., “Hydrogels: a review”, *International Journal of Pharmaceutical Sciences Review and Research* 4(2), 97-105, 2010.

Arbizzani, C., Gallazzi, M.C., Mastragostino, M., Rossi, M. and Soavi, F., “Capacitance and cycling stability of poly(alkoxythiophene) derivative electrodes”, *Electrochemistry Communications* 3, 16–19, 2001.

Aureli, M. and Porfiri, M., “Effect of electrode surface roughness on the electrical impedance of ionic polymer–metal composites”, *Smart Mater. Struct.*, 21, 105030, 2012.

Balan, K.E., Uyarıya duyarlı hidrojellerin sentezlenmesi ve ilaç salım davranışlarının incelenmesi, Yüksek Lisans Tezi, *İnönü Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, Malatya, s. 9-10, 2021.

Batyuk, L., Kizilova, N. , “Modeling of dielectric permittivity of the erythrocytes membrane as a three-layer model”, *Publishing House “Baltija Publishing”* 18–37, 2018.

Belal Hossen, M. and Akther Hossain, A.K.M., “Complex impedance and electric modulus studies of magnetic ceramic Ni_{0.27}Cu_{0.10}Zn_{0.63}Fe₂O₄”, *J. Adv. Ceram.*, 4, 217–225, 2015.

Callister, W.D. and Rethwisch, D.G., Materials science and engineering: an introduction, 10th ed., *John Wiley & Sons, Inc.*, New York, 2007.

Caspers, F., “the Smith chart”, *RF engineering basic concepts* 1201.406, 2012.

Chaterji, S., Kwon, I.K. and Park, K., “Smart polymeric gels: Redefining the limits of biomedical devices”, *Progress in polymer science* 32(8-9), 1083-1122, 2007.

Chen, N., Wan, C., Zhang, Y. and Zhang, Y., “Effect of nano-CaCO₃ on mechanical properties of PVC and PVC/Blendex blend”, *Polymer Testing* 23(2), 169-174, 2004.

Chen, X., Martin, B.D., Neubauer, T.K., Linhardt, R.J., Dordick, J.S. and Rethwisch, D.G., “Enzymatic and chemoenzymatic approaches to synthesis of sugar based polymer and hydrogels”, *Carbohydr Polym.* 28, 15–21, 1995.

Chen, J., Garcia, E.S., Zimmerman, S.C., “Intramolecularly cross-linked polymers: from structure to function with applications as artificial antibodies and artificial enzymes”, *Accounts of chemical research* 53(6), 1244-1256, 2020.

Cho, M.S., Cho, Y.H., Choi, H.J. and Jhon, M.S., “Synthesis and Electrorheological Characteristics of Polyaniline-coated PMMA Microsphere: Size Effect”, *Langmuir* 19 (14), 5875–5881, 2003.

Cole, K.S. and Cole, R.H., “Dispersion and Absorption in Dielectrics: I - Alternating Current Characteristics”, *Journal of Chemical Physics* 9, 341–351, 1941.

Cook, A.B., Bibic, L., “Macromolecules, Actually: From Plastics to DNA”, *Frontiers for Young Minds*, 7, 2019.

Coşkun, R., Okutan, M., Öztürk, M. and Yalçın, O., “Experimental model to describe the dielectric response of different dye and nanoparticles doped hydrogels for biological cell membranes and biological systems”, *Journal of Molecular Liquids* 296, 112072, 2019.

Coşkun, R., Yalçın O., Okutan, M. and Öztürk, M., “Impedance properties and comparison effects of different dose safranin doped hydrogels”, *Journal of Non-Crystalline Solids* 460, 153–160, 2017.

Çakır, M., “İnşaat yapı malzemelerin elektriksel özelliklerinin belirlenmesi ve elektromanyetik ekranlama etkinliğinin incelenmesi”, Yüksek Lisans Tezi, *Akdeniz Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, Antalya, s. 12-13, 2016.

Davidson, D.W. and Cole, R.H., “Dielectric relaxation in glycerine”, *The Journal of Chemical Physics* 18(10), 1417-1417, 1950.

Debashish, R., Cambre, J.N. and Brent, S., “Sumerlin future perspectives and recent advances in stimuli-responsive materials”, *Prog Polym Sci.* 35(12), 278–301, 2010.

Debye, P., Polar Molecules, *Dover Publications Inc.*, Reinhold Publishing Corporation, Almanya, 1929.

Deepthi, P.R., Sukhdev, A., Kumar, P.M., Shanthi, J. and Hemaraju, B.C., “Growth and impedance analysis of pure TGAc and dye doped TGAc crystals-enhanced dielectric permittivity for energy-storage devices”, *SN Appl. Sci.*, 2, 1493, 2020.

Dehghani, M.H., Salari, M., Karri, R.R., Hamidi, F. and Bahadori, R., “Process modeling of municipal solid waste compost ash for reactive red 198 dye adsorption from wastewater using data driven approaches”, *Scientific Reports* 11(1), 1-20, 2021.

Delibalta, M.S., “Niğde kalsit işletmelerinin önemi ve uygulanabilir arazi rehabilitasyon modülleri”, *Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi Mühendislik Bilimleri Dergisi* 6(1), 158-165, 2017.

Delipınar, D., “Probertit, Elektrokoagülasyon Termal Atık Ve Elektrokoagülasyon Bor Atığının Dielektrik Özelliklerinin Empedans Spektroskopisi Yöntemi İle İncelenmesi”, Yüksek Lisans Tezi, *Yıldız Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, İstanbul, s. 12–27, 2013.

Deraman, S.K., Mohamed, N. S. and Subban, R.H.Y., “Ionic Liquid Incorporated PVC Based Polymer Electrolytes: Electrical and Dielectric Properties”, *Sains Malaysiana*, 43(6), 877–883, 2014.

Dewi, A.H., Ana, I.D. and Jansen, J., “Calcium carbonate hydrogel construct with cynamaldehyde incorporated to control inflammation during surgical procedure”, *Journal of Biomedical Materials Research Part A* 104(3), 768-774, 2016.

Ding, L., Jani, D., Linhardt, J., Künzler, J.F., Pawar, S., Labenski, G. and Knox, W.H., “Large enhancement of femtosecond laser micromachining speed in dye-doped hydrogel polymers”, *Optics Express* 16(26), 21914-21921, 2008.

Dirac, P.A.M., “On the theory of quantum mechanics”, *Proc. R. Soc. Lond.*, 112(762), 661-677, 1926.

DPT, Sekizinci Beş Yıllık Kalkınma Planı, Madencilik Özel İhtisas Komisyonu Raporu Endüstriyel Hammaddeler Alt Komisyonu Genel Endüstri Mineralleri (Asbest-Grafit-Kalsit-Fluorit-Titanyum Çalışma Grubu Raporu), *DPT 2618- ÖİK: 629*, Ankara, 53-69, 2001.

El-Gendy, Y.A., Yahia, I.S. and Yakuphanoglu, F., “Investigation of Nanocrystalline CdS/Si Diode Using Complex Impedance Spectroscopy”, *Mater. Res. Bull.*, 47, 3397–3402, 2012.

El Khaled, D., Castellano, N. N., Gázquez, J.A., Perea-Moreno, A. J. and Manzano-Agugliaro, F., “Dielectric Spectroscopy in Biomaterials: Agrophysics”, *Materials*, 9(5), 310–336, 2016.

Estroff, L.A., Addadi, L., Weiner, S. and Hamilton, A. D., “An organic hydrogel as a matrix for the growth of calcite crystals”, *Organic & biomolecular chemistry* 2(1), 137-141, 2004.

Fennell, E. and Huyghe, J.M., “Chemically responsive hydrogel deformation mechanics: A review”, *Molecules* 24(19), 3521, 2019.

Fernandes, P.R., Da Silva, K.A., Mukai, H. and Muniz, E.C., “Optical, morphological and dielectric characterization of MBBA liquid crystal-doped hydrogels”, *Journal of Molecular Liquids* 229, 319-329, 2017.

Feynman, R., Robert, B.L. and Sands, M., “The Brownian Movement”, *The Feynman Lectures of Physics* 1 (1964) 1-41.

Fröhlich, H., Theory of Dielectrics, *Clarendon Press*, Oxford, 1958.

Garnica-Palafox, I.M. and Sánchez-Arévalo, F.M., “Influence of natural and synthetic crosslinking reagents on the structural and mechanical properties of chitosan-based hybrid hydrogels”, *Carbohydrate polymers* 151, 1073-1081, 2016.

George, M., Nair, S.S., Malini, K.A., Joy, P.A. and Anantharaman, M.R., “Finite size effects on the electrical properties of sol–gel synthesized CoFe₂O₄ powders: deviation from Maxwell–Wagner theory and evidence of surface polarization effects”, *Journal of Physics D: Applied Physics* 40(6), 1593, 2007.

Gibas, I. and Janik, H., “Synthetic polymer hydrogels for biomedical applications”, *Chem. Chem. Technol.* 4(4), 297-304, 2010.

Glenn, G.M., Orts, W.J. and Nobes, G.A.R., “Starch, fiber and CaCO₃ effects on the physical properties of foams made by a baking process”, *Industrial Crops and Products* 14(3), 201-212, 2001.

Gogulamurali, N., Suthanthiraraj, S.A., Maruthamuthu, P., Chowdari, B.V.R., Chandra, S., Singh, S. and Srivastava (Eds.), P.C., “Solid State Ionics: Materials and Applications”, *World Scientific Singapore* 373–377, 1992.

Gonzalez, G., Microwave transistor amplifiers: analysis and design, 2nd ed., *Prentice hall*, New Jersey, 1997.

Günel, E., Dielektrik durulmaya kesirli olasılık dağılımlı kusur difüzyon yaklaşımı, Yüksek Lisans Tezi, *Kastamonu Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, Kastamonu, s. 3-5, 2017.

Gürbüz, O., Gelir, A., Erden, İ., Fırat, Y. and Okutan, M., “Role of ion conducting polymeric electrolyte in suppressing deterioration of cathode electrodes in dye-sensitized solar cells”, *Dyes and Pigments* 134, 269-275, 2016.

Haberey, F. and Wijn, H.P.J., “Effect of temperature on the dielectric relaxation in polycrystalline ferrites”, *Phys. Status Solidi (b)* 26, 231-240, 1968.

Hacker, M.C. and Mikos, A.G., Synthetic Polymers. In: Principles of Regenerative Medicine, 2nd ed., *Academic Press*, San Diego, 2011.

Han, L., Yan, L., Wang, M., Wang, K., Fang, L., Zhou, J. and Lu, X., “Transparent, adhesive, and conductive hydrogel for soft bioelectronics based on light-transmitting polydopamine-doped polypyrrole nanofibrils”, *Chemistry of Materials* 30(16), 5561-5572, 2018.

Hart, J.P. and Abass A.K., “A disposable amperometric gas sensor for sulphur-containing compounds based on a chemically modified screen printed carbon electrode coated with a hydrogel”, *Analytica Chimica Acta* 342(2-3), 199–206, 1997.

Havriliak, S. and Negami, S.A., “Complex plane analysis of α -dispersions in some polymer systems”, *Journal of Polymer Science Part C: Polymer Symposia* 14, 99-117, 1966.

Hedvig, P., Dielectric Spectroscopy of Polymers, 1st ed., *Adam Hilger Ltd*, Bristol, 1977.

Hoffman, A.S., “Hydrogels for biomedical applications”, *Advanced Drug Delivery Reviews* 64, 18–23, 2012.

Hofmeister, A. M., Measurements, mechanisms, and models of heat transport, 1st ed., *Elsevier*, 2018.

Hornebecq, V., Reau, J. M. and Ravez, J., “New Li⁺ ferroelectric conductors with tetragonal tungsten bronze structure”, *Solid State Ionics* 127, 231-240, 2000.

Horowitz, P., Hill, W. and Robinson, I., The art of electronics, *Cambridge university press*, Cambridge, 1989.

Iannarelli, A., Niasar, M.G. and Ross, R., “Electrode interface polarization formation in dielectric elastomer actuators”, *Sensors and Actuators A: Physical* 312, 111992, 2020.

Jethava, H.O., Joshi, M.J. and Kanchan, D.K., “Impedance and dielectric studies of gel grown lead-iron mixed levo tartrate crystals”, *Int. J. Eng. Innov. Tech.* 5(3), 99-106, 2015.

Jiang, X., Zhao, X., Peng, G., Liu, W., Liu, K. and Zhan, Z., “Investigation on crystalline structure and dielectric relaxation behaviors of hot pressed poly (vinylidene fluoride) film”, *Current Applied Physics* 17(1), 15-23, 2017.

Jonscher, A.K., “The ‘universal’ dielectric response”, *Nature* 267, 673–679, 1977.

Kannaujia, R., Prasad, V., Rawat, P., Rawat, V., Thakur, A., Majumdar, S. and Srivastava, C.M., “Facile synthesis of CuFe₂O₄ doped polyacrylic acid hydrogel nanocomposite and its application in dye degradation”, *Materials Letters* 252, 198-201, 2019.

Kanungo, I., Fathima, N.N., Jonnalagadda, R. R. and Nair, B. U., “Elucidation of hydration dynamics of locust bean gum–collagen composites by impedance and thermoporometry”, *Carbohydrate polymers* 103, 250-260, 2014.

Kasap, S.O., Principles of Electronic Materials And Devices, *McGraw- Hill*, New York, 2018.

Kennelly, A.E., “Impedance”, *Transactions of the American Institute of Electrical Engineers* 10, 172–232, 1893.

Kışmir, Y., Bazı polimer jellerin hazırlanması ve ilaç aktif madde salınımında kullanılması, Doktora Tezi, *İstanbul Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, İstanbul, s. 7-9, 2011.

Koehler, J., Brandl, F. P. and Goepferich, A. M., “Hydrogel wound dressings for bioactive treatment of acute and chronic wounds”, *European Polymer Journal* 100, 1-11, 2018.

Koetting, M.C., Peters, J. T., Steichen, S.D. and Peppas, N.A., “Stimulus-responsive hydrogels: Theory, modern advances, and applications”, *Materials Science and Engineering: R: Reports* 93, 1-49, 2015.

Koops, C.G., “On the dispersion of resistivity and dielectric constant of some TEMiconductors at audiofrequencies”, *Phys. Rev.*, 83, 121–124, 1951.

Kyritsis, A., Pissis, P. and Grammatikakis, J., "Dielectric relaxation spectroscopy in poly (hydroxyethyl acrylates)/water hydrogels", *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics* 33(12), 1737-1750, 1995.

Liu, Y., Liu, J., Chen, S., Lei, T., Kim, Y., Niu, S. and Bao, Z., “Soft and elastic hydrogel-based microelectronics for localized low-voltage neuromodulation”, *Nature biomedical engineering* 3(1), 58-68, 2019.

Lizawa, T., Taketa, H., Maruta, M., Ishido, T., Gotoh, T. and Sakohara, S., “Synthesis of porous poly (N-isopropylacrylamide) gel beads by sedimentation polymerization and their morphology”, *Journal of applied polymer science* 104(2), 842-850, 2007.

Maaroufi, A., Oabi, O. and Lucas, B., “Ac-conductivity and dielectric response of new zinc-phosphate glass/metal composites”, *Physica B: Condensed Matter* 492, 31-38, 2016.

Macdonald, J.R., “Impedance Spectroscopy”, *Annals of Biomedical Engineering* 20, 289–305, 1992.

Majcher, M.J. and Hoare, T., “Applications of Hydrogels”, *Funct. Biopolym.* 14, 453, 2019.

Matsumiya, Y., Watanabe, H., Urakawa, O., Inoue, T. and Kwon, Y., “Effect of head-to-head association/dissociation on viscoelastic and dielectric relaxation of entangled linear polyisoprene: An experimental test”, *Macromolecules* 53(3), 1070-1083, 2020.

Maxwell, J.C., A Treatise on Electricity and Magnetism, *Clarendon Press*, Oxford, 1873.

Mc Crum, N.G., Read, B.E. and Williams, G., Anelastic and Dielectric Effects in Polymeric Solids, **John Wiley**, London, 1967.

Mirigliano, M., Radice, S., Falqui, A., Casu, A., Cavaliere, F. and Milani, P., “Anomalous electrical conduction and negative temperature coefficient of resistance in nanostructured gold resistive switching films”, *Scientific Reports* 10(1), 19613, 2020.

Miyata, T., Asami, N. and Uragami, T., “A reversibly antigen-responsive Hydrogel”, *Nature* 399(6738), 766, 1999.

Mondal, A.K., Wu, S., Xu, D., Zou, Q., Chen, L., Huang, L. and Ni, Y., “Preparation of lignosulfonate ionic hydrogels for supercapacitors, sensors and dye adsorbent applications”, *International Journal of Biological Macromolecules* 187, 189-199, 2021.

Mukhopadhyay, T., Adhikari, S. and Batou, A., “Frequency domain homogenization for the viscoelastic properties of spatially correlated quasi-periodic lattices”, *International Journal of Mechanical Sciences* 150, 784-806, 2019.

Nair, L.S. and Laurencin, C.T., “Biodegradable polymers as biomaterials”, *Progress in polymer science* 32(8-9), 762-798, 2007.

Nart, Z., İners-Süspansiyon Polimerizasyon Yöntemiyle Hazırlanan Mikrokürelerin Karakterizasyonu ve İlaç Salınımı Çalışmaları, Yüksek Lisans Tezi, *Marmara Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, İstanbul, s. 3-26, 2008.

Nelson, S. O., “Measurement of microwave dielectric properties of particulate materials”, *Journal of food engineering* 21(3), 365-384, 1994.

Neethu, T.M., Dubey, P.K. and Kaswala, A.R., “Prospects and applications of hydrogel technology in agriculture”, *Int. J. Curr. Microbiol. App. Sci.* 7(5), 3155-3162, 2018.

Okutan, M., Coşkun, R., Öztürk, M., Özsucu, C. and Yalçın, O., “Optic and Dielectric Properties of Different Amount NiFe₂O₄ Nanoparticles Loaded Hydrogels: Synthetic Circuits Applications”, *ECS Journal of Solid State Science and Technology* 7, N101–N109, 2018.

Okutan, M., Coşkun, R., Öztürk, M. and Yalçın, O., “Dielectric properties of Rhodamine-B and metal doped hydrogels”, *Physica B*, 457, 5–11, 2015.

Omran, A.S.A.S.A., Semiconductors and Dielectrics, *Sinai University*, Sina, 2020.

Owen, T., Fundamentals of UV-Visible Spectroscopy, 12, Hewlett-Packard Company, Germany, 14–25, 1996.

Özsucu, C., “Farklı dozlarda NiFe₂O₄ nanoparçacık katkılı hidrojellerin dielektrik özelliklerinin araştırılması”, Yüksek Lisans Tezi, *Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, Niğde, s. 9–11, 2019.

Öztürk, M., “Bazı Metal ve Boya İyonları Katkılı Hidrojellerin Dielektrik Özelliklerinin İncelenmesi”, Doktora Tezi, *Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, Niğde, s. 8-11, 2018.

Öztürk, M.C., Structural, optical, and mechanical properties of polyacrylamide hydrogels doped with multiwalled carbon nanotubes, PhD Thesis, *İ.T.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü*, İstanbul, s. 1-6, 2022.

Öztürk, M., Coşkun, R., Okutan, M. and Yalçın, O., “Origin of the synthetic circuits and the Brownian motion in stretchable crystal violet doped and biocompatible composite hydrogels”, *Journal of Molecular Liquids* 249, 211–218, 2018.

Öztürk, M., Okutan, M., Coskun, R., Çolak, B. and Yalçın, O., “Evaluation of the effect of dose change of Fe₃O₄ nanoparticles on electrochemical biosensor compatibility using hydrogels as an experimental living organism model”, *J. Mol. Liq.* 322, 114574, 2021.

Pal, K. and Banerjee, I., *Polymeric Gels*, 1st ed., *Woodhead Publishing*, Duxford, 2018.

Pande, P.P., “Polymer hydrogels and their applications”, *International journal of materials science* 12(1), 11-14, 2017

Panprung, S., Uracha, R. and Pitt, S., “Preparation and characterization of asiaticoside-loaded alginate films and their potential for use as effectual wound dressings”, *Carbohydr Polym.* 83(4), 1457–1469, 2011.

Philippova, O.E. and Khokhlov, A.R., *Polymer Science: A Comprehensive Reference*, *Moscow State University*, Moscow, 2012.

Pillai, O. and Panchagnula, R., “Polymers in drug delivery”, *Current opinion in chemical biology* 5(4), 447-451, 2001.

Pokhriyal, S. and Biswas, S., “Doping dependent high-frequency dielectric properties of $\text{Hf}_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_2$ nanoparticles”, *Materials Today: Proceedings* 3, 1311–1319, 2016.

Popescu, M. and Bunget, I., Physics of Solid Dielectrics, *Elsevier*, Amsterdam, 1984.

Pozar, D.M., Microwave Engineering, 3rd ed., *John Wiley & Sons, Inc.*, New York, 2005.

Purohit, V. and Choudhary, R.N.P., “Structural, dielectric and impedance properties of lead-free $\text{Bi}(\text{Sr}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3$ ceramic”, *Materials Science & Engineering B* 243, 30-37, 2019.

Raja, P.B., Munusamy, K.R., Perumal, V. and Ibrahim, M.N.M., “Characterization of nanomaterial used in nanobioremediation”, *Nano-bioremediation: fundamentals and applications* 57-83, 2022.

Raju, G.G., Dielectrics in electric fields: Tables, Atoms, and Molecule, 2nd ed., *CRC press*, Florida, 2017.

Ramesh, S. and Arof, A.K., “Ionic conductivity studies of plasticized poly(vinyl chloride) polymer electrolytes”, *Materials Science and Engineering B*, 85, 11–15, 2001.

Ranjan, R., Kumar, N., Behera, B. and Choudhary, R.N.P, “Investigations of impedance and electric modulus properties of $\text{Pb}_{1-x}\text{S}_{mx}(\text{Zr}_{0.45}\text{Ti}_{0.55})_{1-x/4}\text{O}_3$ ceramics”, *Adv. Mater. Lett.*, 5, 138–142, 2014.

Ranko, R., and Hermann, W., “The Dielectric Modulus: Relaxation Versus Retardation”, *Solid States Ionics* 105, 167-173, 1998.

Rao, K.S., Prasad, D.M., Krishna, P.M., Tilak, B. and Varadarajulu, K.C., “Impedance and modulus spectroscopy studies on $\text{Ba}_{0.1}\text{Sr}_{0.81}\text{La}_{0.06}\text{Bi}_2\text{Nb}_2\text{O}_9$ ceramic”, *Materials Science and Engineering B* 133, 141–150, 2006.

Richert, R. and Wagner, H., “The dielectric modulus: Relaxation versus retardation”, *Solid State Ionics*, 105(1-4), 167–173, 1998.

Rodriguez, R.F. and Salinas-Rodriguez, E., “Brownian motion and correlation functions in a viscoelastic fluid”, *Journal of Physics A: Mathematical and General* 21(9), 2121, 1988.

Rouahi, A., Kahouli, A., Challali, F., Besland, M.P., Vallée, C., Yangui, B., Salimy, S., Goulet, A. and Sylvestre, A., “Impedance and electric modulus study of amorphous TiTaO thin films: highlight of the interphase effect”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 46, 065308-065315, 2013.

Rout, A. and Agrawal, S., “Investigation of electrical conduction in $\text{Ca}_{6-x}\text{Na}_2\text{Y}_2(\text{SiO}_4)_6\text{F}_2:x\text{Eu}^{3+}$ ceramic by complex impedance and electric modulus spectroscopy”, *Ceramics International* 47(5), 7032-7044, 2021.

Saha, S., Nandy, A., Pradhan, S.K. and Meikap, A.K., “Electrical transport and dielectric modulus formalism of CuO doped ZrO_2 partially stabilized solid solution”, *Materials Research Bulletin*, 88, 272–280, 2017.

Said, M.I., Aly, A.A., El-Said, A. I. Ve Abou-Taleb, A., “Controlled synthesis of ZnO nanoparticles from a Zn (II) coordination polymer: Structural characterization, optical properties and photocatalytic activity”, *Applied Organometallic Chemistry* 34(10), e5858, 2020.

San, S.E., Okutan, M., Köysal, O. and Ono, H., “Dielectric properties of laser-induced conditions in a hybrid composite made by doping a side-chain liquid crystalline polymer”, *Journal of non-crystalline solids* 351(33-36), 2764-2767, 2005.

Scaife, B. K. P., Principles of Dielectrics, *Clarendon Pres, Oxford U.K*, 1989.

Schexnailder, P. and Schmidt, G., “Nanocomposite polymer hydrogels”, *Colloid and Polymer Science* 287(1), 1-11, 2009.

Sengwa, R.J. and Sankhla, S., “Dielectric dispersion study of coexisting phases of aqueous polymeric solution: Poly(vinyl alcohol) + poly(vinyl pyrrolidone) two-phase systems”, *Polymer* 48, 2737–2744, 2007.

Serizawa, T., Matsukuma, D. and Akashi, M., “Loading and release of charged dyes using ultrathin hydrogels”, *Langmuir* 21(17), 7739-7742, 2005.

Sharma, P., Kanchan, D.K., Pant, M. and Singh, K.P., “Conductivity studies in proton irradiated AgI-Ag₂O-V₂O₅-TeO₂ super-ionic glass system”, *Materials Sciences and Applications*”, 1(02), 59, 2010.

Shima, P.D., Philip, J. and Raj, B., “Role of microconvection induced by Brownian motion of nanoparticles in the enhanced thermal conductivity of stable nanofluids”, *Applied Physics Letters* 94(22), 223101, 2009.

Skinner, D.L. and Moon, E.L., Calcium Carbonate Filler, United States Patent, No: 4,170,658 dated 9.10.1979, 1979.

Smetana, K., “Cell biology of hydrogels”, *Biomaterials* 14, 1046–1050, 1993.

Smith, P., “Transmission line calculator”, *Electronics* 12 (1), 29-31, 1939.

Smith, P.H., Electronic Applications of the Smith Chart: In Waveguide, Circuit, and Component Analysis, *SciTech Publishing*, 1995.

Sop, E.S., Doku genişletme amaçlı hidrojel sentezi, karakterizasyonu ve şişme kinetiği, Yüksek Lisans Tezi, *Hacettepe Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, Ankara, s. 4-11, 2013.

Sun, S., Mao, L. B., Lei, Z., Yu, S. H. and Cölfen, H., “Hydrogels from amorphous calcium carbonate and polyacrylic acid: bio-inspired materials for “mineral plastics”, *Angewandte Chemie International Edition* 55(39), 11765-11769, 2016.

Sun, X., Zhang, G., Shi, Q., Tang, B. and Wu, Z.J., “Preparation and characterization of water swellable natural rubbers”, *J Appl Polym Sci.* 86, 717-720, 2002.

Tabata, Y., “Biomaterial technology for tissue engineering applications”, *Journal of the Royal Society interface* 6, 311-324, 2009.

Tangboriboon, N., Khongnakhon, T., Kittikul, S., Kunanuruksapong, R. and Sirivat, A., “An innovative CaSiO₃ dielectric material from eggshells by sol–gel process”, *Journal of sol-gel science and technology* 58(1), 33-41, 2011.

Tareev, B., Physics of Dielectric Materials, *Mir Publishers*, Moscow, 1979.

Tauc, J., “Optical properties and electronic structure of amorphous Ge and Si”, *Mater. Res. Bull* 3, 37–46, 1968.

Thakur, S., Thakur, V.K. and Arotiba, O.A., History, classification, properties and application of hydrogels: An overview, *Springer Nature Singapore Pte Ltd*, Singapore, 2018.

Toker, C., “Ayçiçeği Çekirdeği, Bezelye, Domates Kabuğu Ve Karalahana Özü Katkılı Hidrojellerin Dielektrik Ve Optik Özelliklerinin İncelenmesi”, *Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, Niğde, s. 14–16, 2020.

Tomadoni, B., Casalongué, C. and Alvarez, V.A., “Biopolymer-based hydrogels for agriculture applications: Swelling behavior and slow release of agrochemicals”, *Polymers for Agri-food applications* 99-125, 2019.

Tsangaris, G.M., Psarras, G.C. and Kouloumbi, N., “Electric modulus and interfacial polarization in composite polymeric systems”, *Journal of Materials Science* 33, 2027–2037, 1998.

Tüylek, Z., “Sağlık Alanında Kullanılan Polimerik Biyomateryaller”, *Tıp Fakültesi Klinikleri Dergisi* 3(2), 67-76, 2020.

Ullah, F., Othman, M.B.H., Javed, F., Ahmad, Z. and Akil, H.M., “Classification, processing and application of hydrogels: A review”, *Materials Science and Engineering: C* 57, 414-433, 2015.

Ulusoy, A. ve Dikmen, N., “Hidrojellerin Tıpta Uygulamaları”, *Arşiv Kaynak Tarama Dergisi* 29(2), 129-137, 2020.

Van Zanten, J.H. and Rufener, K.P., “Brownian motion in a single relaxation time Maxwell fluid”, *Phys. Rev. E.* 62, 5389–5396, 2000.

Varan, M., Ergüzel, A.T., Genç, H.H., Ulusoy, B., Öylek, İ. and Ay, M. “Design and implementation of an open source transmission line impedance matching educational framework”, *Computer Applications in Engineering Education* 28(3), 724-736, 2020.

Volkov, A.S., Kuposov, G.D., Perfil’ev, R.O. and Tyagunin, A.V., “Analysis of experimental results by the Havriliak–Negami model in dielectric spectroscopy”, *Optics and Spectroscopy* 124, 202-205, 2018.

Wagner, K.W., “Erklärung der dielektrischen Nachwirkungsvorgänge auf Grund Maxwellscher Vorstellungen”, *Arch. Electrotech.*, 2, 371–387, 1914.

Wang, F., Li, Z., Khan, M., Tamama, K., Kuppusamy, P., Wagner, W.R. and Guan, J., “Injectable, rapid gelling and highly flexible hydrogel composites as growth factor and cell carriers”, *Acta biomaterialia* 6(6), 1978-1991, 2010.

Wichterle, O. and Lim, D., “Hydrophilic gels for biological use”, *Nature* 185(4706), 117-118, 1960.

Von Hippel, A.R., Dielectrics and Waves, *John Wiley & Sons*, New York, 1959.

Yalçın, O., Coşkun, R., Okutan, Öncan, M. and Yeşilot, G., “Crystallographic, Structural, Optical, and Dielectric Properties of Aniline and Aniline Halide Imprinted Hydrogels for Optoelectronic Applications”, *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* 2023.

Yang, L., Chu, J.S. and Fix, J. A., “Colon-specific drug delivery: new approaches and in vitro/in vivo evaluation”, *International journal of pharmaceutics* 235(1-2), 1-15, 2002.

Yaxiong, L. and Zhong, X., “Research on Nano-CaCO₃ as Filler for Latex Paint”, *Guangdong Chemical Industry* 33(2), 58, 2006.

Youssef, A.M., Hasanin, M.S., Abd El-Aziz, M.E. and Turkey, G.M., “Conducting chitosan/hydroxyethyl cellulose/polyaniline bionanocomposites hydrogel based on graphene oxide doped with Ag-NPs”, *International Journal of Biological Macromolecules* 167, 1435-1444, 2021.

Yurdakul, K.. Kalsiyum karbonat (CaCO₃) dolgulu polietilen filmlerin hazırlanması ve geçirgenlik özelliklerinin incelenmesi, Yüksek Lisans Tezi *İstanbul Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, İstanbul, s. 10-83, 2011.

Zengin, S., “Farklı montmorillonit kil numunelerinin dielektrik özellikleri üzerine nemin etkisi”, Yüksek Lisans Tezi, *Selçuk Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, Konya, s. 11–34, 2007.

Zhao, W., Jin, X., Cong, Y., Liu, Y. and Fu, J., “Degradable natural polymer hydrogels for articular cartilage tissue engineering”, *Journal of Chemical Technology & Biotechnology* 88(3), 327-339, 2013.

Zhu, J. and Marchant, R.E., “Design properties of hydrogel tissue-engineering scaffolds”, *Expert review of medical devices* 8(5), 607-626, 2011.

ÖZ GEÇMİŞ

Mehmet ÖNCAN tarihinde doğdu. İlk, orta ve lise öğretimini doğduğu ilde tamamladı. yılında girdiği Gaziantep Üniversitesi Mühendislik Fakültesi Fizik Mühendisliği bölümünden yılında mezun oldu. yılında Gaziantep Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsünde Fizik Mühendisliği programında eğitime başladı ve yılında bu programdan ayrıldı. Aynı yıl Bitlis Eren Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Yoğun Madde Fiziği Anabilim Dalı'nda tezli yüksek lisansa başladı. yılında yüksek lisans proramından mezun oldu. 2017 yılında Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Fizik Anabilim Dalı'nda doktora eğitime başladı. İyi derecede İngilizce bilmektedir. Kalsit ve boya iyonları katkılı hidrojellerin dielektrik özelliklerinin incelenmesi üzerine çalışmaktadır.

TEZ ÇALIŞMASINDAN ÜRETİLEN ESERLER

Bu tez çalışmasından, 3 (üç) adet uluslararası makale ve 1 (bir) adet bildiri üretilmiştir. Bu üretilen çalışmalar aşağıda sunulmuştur.

Yalçın, O., Öztürk, M., Okutan, M., Coşkun, R., Öncan, M., “Determination of the effects of the production process for the calcite doped hydrogels on electronic circuit applications”, *Physica B: Condensed Matter* 621, 413282, 2021.

Coşkun, R., Okutan, M., Yalçın, O., Öztürk, M., Kırsoy, A., Öncan, M., “Equivalent device and optical band gaps analysis of acidic red dye imprinted hydrogels”, *Journal of Polymer Research* 29(5), 1-10, 2022.

Yalçın, O., Coşkun, R., Okutan, Öncan, M. and Yeşilot, G., “Crystallographic, Structural, Optical, and Dielectric Properties of Aniline and Aniline Halide Imprinted Hydrogels for Optoelectronic Applications”, *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* 2023.

Öncan, M., Öztürk, M., Coşkun, R., Okutan, M., Yalçın, O., “Determination of RC circuit of calcite-doped hydrogels from dielectric plane plots”, *III. International Turkic World Congress on Science and Engineering*, 14-15 June 2021, Niğde, Türkiye, Page: 228.

