



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

BAZI METAL VE BOYA İYONLARI KATKILI HİDROJELLERİN DİELEKTRİK
ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ

MUHİTTİN ÖZTÜRK

Haziran 2018

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

BAZI METAL VE BOYA İYONLARI KATKILI HİDROJELLERİN DİELEKTRİK
ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ

MUHİTTİN ÖZTÜRK

Doktora Tezi

Danışman

Prof. Dr. Orhan YALÇIN

Haziran 2018

Muhittin ÖZTÜRK tarafından Prof. Dr. Orhan YALÇINDanışmanlığında hazırlanan 'Bazı Metal ve Boya İyonları Katkılı Hidrojellerin Dielektrik Özelliklerinin İncelenmesi' adlı bu çalışma jürimiz tarafından Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Fizik Ana Bilim Dalı'nda Doktora tezi olarak kabul edilmiştir.


Başkan : Prof. Dr. Yusuf YERLİ Yıldız Teknik Üniversitesi


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


Üye : Doç. Dr. Yusuf CUNEDİOĞLU Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi


Üye : Doç. Dr. Mustafa OKUTAN Yıldız Teknik Üniversitesi


Üye : Doç. Dr. Ahmet BAYKAL Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi

ONAY:

Bu tez, Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulunca belirlenmiş olan yukarıdaki jüri üyeleri tarafından .../.../20... tarihinde uygun görülmüş ve Enstitü Yönetim Kurulu'nun .../.../20... tarih ve sayılı kararıyla kabul edilmiştir.

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

Doç. Dr. Murat BARUT
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.



Muhittin ÖZTÜRK

ÖZET

BAZI METAL VE BOYA İYONLARI KATKILI HİDROJELLERİN DİELEKTRİK ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ

ÖZTÜRK, Muhittin

Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi

Fen Bilimleri Enstitüsü

Fizik Anabilim Dalı

Danışman : Prof. Dr. Orhan YALÇIN

Haziran 2018, 157 sayfa

Bu tez çalışmasında, radikalik katılım polimerizasyon tekniği ile opto-elektronik cihazlarda akıllı sentetik devreler için rodamin-B, safranin, kristal mor, malaşit yeşil oksalat ve metal iyonları (Ag^{+1} , Mn^{+2} , Ni^{+2} , Co^{+2} , Cr^{+3}) yüklü hidrojeller sentezlendi. Farklı boya ve metal iyonları katkıli hidrojellerin morfolojik karakterizasyonları taramalı elektron mikroskobu ve optik mikroskobu kullanılarak yapıldı. Boya ve metal iyonları katkıli hidrojellerin dielektrik özellikleri geniş bir frekans aralığında ve oda sıcaklığında empedans spektroskopisi ile detaylıca incelendi. Ayrıca elektrik modül tabanlı Cole-Cole diyagramları ve bunların Smith-Chart' a uyarlanmış halleri, Brown hareketi, iyonik iletim, viskoelastik davranışlar, konsantrasyona bağlı dalgalanma özelliği ve toplam polarizasyon etkiler farklı boya ve metal iyonları katkıli hidrojellerde gözlemlendi. Gözlenen devre ve viskoelastik sistemdeki Brownian hareketinin boya iyonları ve hidrojeller arasındaki etkileşimlerden, boya molekülleri ve oksijen grupları arasındaki Coulomb etkileşiminden ve kompozit hidrojel kanallarındaki iyon göçünden kaynaklandığı belirlendi. Boya ve metal iyonları katkıli hidrojellerin potansiyel uygulamaları opto-elektronik, biyosensörler, mikrobiyal yakıt hücreleri, süper kapasitörler, ilaç dağıtım, doku rejenerasyonu ve hibrid tip organlar olarak sunuldu.

Anahtar Sözcükler: Hidrojeller, iyonik boyalar, metal iyonları, dielektrik özellikler, empedans spektroskopisi, Brown hareketi, Cole-Cole diyagram, Smith-Chart

SUMMARY

INVESTIGATION OF THE DIELECTRIC PROPERTIES OF SOME METAL AND DYE IONS-DOPED HYDROGELS

ÖZTÜRK, Muhittin

Niğde Ömer Halisdemir University

Graduate School of Natural and Applied Sciences

Department of Physics

Supervisor : Prof. Dr. Orhan YALÇIN

June 2018, 157 pages

In this thesis, rhodamine-B, safranin, crystal violet, malachite green oxalate and metal ions (Ag^+ , Co^{2+} , Cr^{3+} , Mn^{2+} , Ni^{2+}) loaded hydrogels were synthesized for smart synthetic circuit in opto-electronic devices by using the radical participation polymerization technique. The morphological characterization of different dye-and metal ions-doped hydrogels were performed by using scanning electron microscopy and optical microscopy. Dielectric properties of dye-and metal ions-doped hydrogels were investigated in an extended frequency range by impedance spectroscopy at room temperature in detail. In addition, the electric modulus based Cole-Cole diagrams and their adopted to Smith-Chart, the Brownian motion, the ionic conduction, the viscoelastic behavior, the fluctuation feature of the concentrations and the total polarization effects were investigated for different dye and metal ions doped hydrogels. The observed circuit and Brownian motion in viscoelastic system were determined to originate from the interaction between dye ions and hydrogels, coulomb interaction between dye molecules and oxygen groups and the ion-migration in the composite hydrogels channels. The potential applications of dye and metal ions doped hydrogels were presented include the topics such as opto-electronics, biosensors, microbial fuel cells, super capacitors, drug delivery, tissue regeneration and hybrid-type organs.

Keywords: Hydrogels, ionic dyes, metal ions, dielectric properties, impedance spectroscopy, Brownian motion, Cole-Cole diagram, Smith-Chart

ÖN SÖZ

Bu doktora tezinde, hidrojel sentezlemede en çok tercih edilen ve aynı zamanda en uygun sentezleme tekniklerinden biri olan radikal katılım polimerizasyon yöntemi ile saf hidrojeller sentezlendi. Bu hidrojellere Ag^{+1} , Mn^{+2} , Ni^{+2} , Co^{+2} , Cr^{+3} metal ve RB, SR, KrM, MYO boya iyonları katılarak üretilen örneklerin dielektrik özellikleri Empedans Spektroskopi tekniği ile detaylıca araştırıldı. Bu numunelerin morfolojik karakterizasyonu Taramalı Elektron Mikroskop (SEM) ve Optik Mikroskop (OM) gibi teknikler vasıtasıyla yapıldı. Boya iyonları yüklenmiş hidrojellerin, metal iyonu katılanmış hidrojellere kıyasla daha yüksek iyonik iletkenlik ve daha düşük empedans değerlerine sahip olduğu tespit edildi. Boya yüklenmiş örneklerin eşdeğer bir elektrik devresine karşılık gelen Cole–Cole çizgilerinin Smith Chart diyagramıyla uyumlu olduğu belirlendi. Dolayısıyla bu malzemelerin elektronik devre teknolojilerinde kullanılabileceği sonucuna varıldı.

Tez çalışmam boyunca her türlü bilgi, yardım ve desteğini esirgemeyen tez danışmanım Sayın Prof. Dr. Orhan YALÇIN' a en kalbi teşekkürlerimi sunarım. Tez çalışmam süresince hidrojellerin sentezlenmesi aşamasında büyük destek sağlayan Bozok Üniversitesi Kimya Bölümü Öğretim Üyesi Sayın Doç. Dr. Ramazan COŞKUN ve üretilen örneklerin Empedans Analizör ölçümlerinde bana yardımcı olan Yıldız Teknik Üniversitesi Fizik Bölümü Öğretim Üyesi Sayın Doç. Dr. Mustafa OKUTAN hocalarıma ayrı ayrı minnet ve şükranlarımı sunarım. Yaşamım boyunca maddi ve manevi desteğini benden esirgemeyen babam İsmail ÖZTÜRK'e ve tez sürecinde destek ve anlayışlarını benden esirgemeyen sevgili eşim Esra ÖZTÜRK' e en kalbi teşekkürlerimi sunarım.

Bu teze FEB2015/03-DOKTEP numaralı proje ile finansal destek sağlayan Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri (BAP) Birimine ve çalışanlarına katkılarından dolayı teşekkür ederim. Ayrıca ismini yazamadığım ama bu tezin oluşmasında en küçükte dahi katkısı olan herkese en içten dileklerle teşekkür ederim.

İÇİNDEKİLER

ÖZET	iv
SUMMARY	v
ÖN SÖZ.....	vi
İÇİNDEKİLER DİZİNİ	vii
ÇİZELGELER DİZİNİ	ix
ŞEKİLLER DİZİNİ	x
FOTOĞRAF VE MALZEMELER DİZİNİ	xv
SİMGE VE KISALTMALAR	xvi
BÖLÜM I GİRİŞ	1
BÖLÜM II KURAMSAL BİLGİ	8
2.1 Dielektrik Malzeme	8
2.2 Dielektrik Sabitin Frekans Bağımlılığı	10
2.1.1 Dielektrik özellikleri	11
2.1.2 Empedans özellikleri.....	14
2.1.3 Elektrik modül özellikleri	15
2.1.4 İletkenlik özellikleri	16
2.3 Polarizasyonların Sınıflandırılması.....	17
2.4 Dielektrik Durulma Mekanizmaları.....	21
BÖLÜM III DENEYSEL KISIM	27
3.1 Saf Hidrojellerin Sentezlenmesi	27
3.2 Bazı Metal ve Boya İyonlarının Hidrojellere Yüklenmesi	29
3.3 Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM).....	30
3.4 Optik Mikroskobu (OM).....	31

3.5 Empedans Spektroskobi (ES)	32
BÖLÜM IV DENEYSEL SONUÇLAR VE TARTIŞMA.....	33
4.1 Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) Analizi	33
4.2 Optik Mikroskobu (OM) Analizi	35
4.3 Metal ve Rodamin-B Katkılı Hidrojellerin Empedans Spektroskobi Analizi	36
4.4 Safranin Katkılı Hidrojellerin Empedans Spektroskobi Analizi.....	55
4.5 Kristal Mor Katkılı Hidrojellerin Empedans Spektroskobi Analizi	79
4.6 Malaşit Yeşil Oksalat Katkılı Hidrojellerin Empedans Spektroskobi Analizi	100
BÖLÜM V SONUÇ.....	121
KAYNAKLAR	129
ÖZ GEÇMİŞ	156
TEZ ÇALIŞMASINDAN ÜRETİLEN ESERLER	157

ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 2.1. “s” parametrelerine bağlı olarak oluşan iletkenlik mekanizmaları.....	17
Çizelge 4.1. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojenlerin karmaşık elektrik modülünün maksimum pik değerleri ve kritik frekans değerleri .	49
Çizelge 4.2. Dielektrik parametrelerin (α ve τ) hesaplanması	58
Çizelge 4.3. Farklı derişimlerde safranin boya yüklü hidrojenlerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının pik değerleri ve kritik frekans değerleri.....	69
Çizelge 4.4. SR boya katkılı hidrojenlerin hesaplanan s- parametre değerleri.....	78
Çizelge 4.5. Farklı derişimlerde kristal mor boya yüklü hidrojenlerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının pik değerleri ve kritik frekans değerleri	92
Çizelge 4.6. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya yüklü hidrojenlerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının pik değerleri ve kritik frekans değerleri	113

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 2.1. Polarizasyon tiplerinin frekansla olan değişimi.....	18
Şekil 2.2. Tek durulma zamanlı karmaşık dielektrik sabit için Cole-Cole diyagramı... 23	
Şekil 2.3. Tek durulma zamanlı karmaşık elektrik modül için Cole-Cole diyagramı ... 24	
Şekil 2.4. Smith Chart diyagramı.....	25
Şekil 3.1. Hidrojellerin sınıflandırılmasının şematik gösterimi.....	28
Şekil 3.2. Saf hidrojinin şematik gösterimi.....	28
Şekil 3.3. Rodamin-B (RB) (a), Safranin (SR) (b), Kristal Mor (KrM) (cc) ve Malaşit Yeşil Oksalat (MYO) (d) iyonik boya ve metal iyonlarının kimyasal yapısının şematik gösterimi	29
Şekil 3.4. RB, SR, KrM, MYO boya ve Ag^{+1} , Mn^{+2} , Ni^{+2} , Co^{+2} , Cr^{+3} metal iyonları katkılı hidrojellerin şematik gösterimi	30
Şekil 4.1. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin gerçek kısmının frekansla değişimi	37
Şekil 4.2. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin sanal kısmının frekansla değişimi.....	39
Şekil 4.3. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojellerin tanjant faktörünün frekansla değişimi.....	40
Şekil 4.4. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojellerin karmaşık empedansının gerçek kısmının frekansla değişimi	42
Şekil 4.5. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojellerin karmaşık empedansının sanal kısmının frekansla değişimi.....	43
Şekil 4.6. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojellerin karmaşık empedansının frekansla değişimi	44
Şekil 4.7. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojellerin faz açısının frekansla değişimi	46
Şekil 4.8. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmının frekansla değişimi	47
Şekil 4.9. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının frekansla değişimi	48

Şekil 4.10. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojenlerin (a) elektrik modülünün Cole-Cole düzlem çizgileri ve (b) onların Smith Chart diyagramına uyarlanmış hali.....	50
Şekil 4.11. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojenlerin kapasitansının frekansla değişimi	51
Şekil 4.12. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojenlerin yüzey öz direncinin frekansla değişimi	52
Şekil 4.13. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojenlerin karmaşık iyonik iletkenliğinin gerçek kısmının frekansla değişimi	53
Şekil 4.14. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojenlerin karmaşık iyonik iletkenliğinin sanal kısmının frekansla değişimi	54
Şekil 4.15a. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojenlerin karmaşık dielektrik sabitinin gerçek kısmının frekansla değişimi.....	56
Şekil 4.15b. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojenlerin karmaşık dielektrik sabitinin gerçek kısmının açısız frekansla Cole-Cole denklemi ile fit edilen değişimi.....	57
Şekil 4.16. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojenlerin karmaşık dielektrik sabitinin sanal kısmının frekansla değişimi	59
Şekil 4.17. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojenlerin tanjant faktörünün frekansla değişimi	60
Şekil 4.18. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojenlerin karmaşık dielektrik sabitinin düzlem çizgileri	61
Şekil 4.19. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojenlerin empedansının gerçek kısmının frekansla değişimi	62
Şekil 4.20. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojenlerin empedansının sanal kısmının frekansla değişimi	64
Şekil 4.21. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojenlerin empedansının frekansla değişimi.....	65
Şekil 4.22. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojenlerin faz açısının (phase angle) frekansla değişimi	66
Şekil 4.23. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojenlerin karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmının frekansla değişimi	67
Şekil 4.24. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojenlerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının frekansla değişimi.....	68

Şekil 4.25. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojellerin elektrik modülün Cole-Cole düzlem çizgileri	70
Şekil 4.26. Farklı derişimlerde safranin boya yüklü hidrojellerin elektrik modülün Cole-Cole düzlem çizgileri (a) ve onların Smith Chart diyagramına uyarlanmış hali (b)	71
Şekil 4.27. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojellerin kapasitansının frekansla deęiřimi	72
Şekil 4.28. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojellerin yüzey özdirencinin frekansla deęiřimi	73
Şekil 4.29. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojellerin karmařık iyonik iletkenlięinin gerçek kısmının frekansla deęiřimi	75
Şekil 4.30. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojellerin karmařık iyonik iletkenlięinin sanal kısmının frekansla deęiřimi	76
Şekil 4.31. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojellerin logaritmik iyonik iletkenlięinin ($\ln \sigma_{ac}(\omega)$) frekansla deęiřimi	77
Şekil 4.32. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojellerin karmařık dielektrik sabitinin gerçek kısmının frekansla deęiřimi	80
Şekil 4.33. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojellerin karmařık dielektrik sabitinin sanal kısmının frekansla deęiřimi	81
Şekil 4.34. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojellerin tanjant faktörünün frekansla deęiřimi	83
Şekil 4.35. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojellerin karmařık dielektrik sabitinin Cole–Cole düzlem çizgileri	84
Şekil 4.36. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojellerin empedansının gerçek kısmının frekansla deęiřimi	85
Şekil 4.37. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojellerin empedansının sanal kısmının frekansla deęiřimi	86
Şekil 4.38. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojellerin empedansının frekansla deęiřimi	87
Şekil 4.39. Farklı derişimlerde kristal-mor boya yüklü hidrojellerin faz açısının frekansla deęiřimi	88
Şekil 4.40. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojellerin karmařık elektrik modülünün gerçek kısmının frekansla deęiřimi	90

Şekil 4.41. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının frekansla deęiřimi.....	91
Şekil 4.42. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojellerin elektrik modülün düzlem çizgileri (a), Maxwell elementli elektrik modülünün Cole-Cole diyagramı (b) ve onların Smith Chart diyagramına uyarlanmış hali (c).....	94
Şekil 4.43. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojellerin kapasitansının frekansla deęiřimi	96
Şekil 4.44. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojellerin yüzey özdirencinin frekansla deęiřimi	97
Şekil 4.45. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojellerin karmaşık iyonik iletkenlięinin gerçek kısmının frekansla deęiřimi	98
Şekil 4.46. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojellerin karmaşık iyonik iletkenlięinin sanal kısmının frekansla deęiřimi.....	99
Şekil 4.47. Farklı derişimlerde malařit yeřil oksalat boya katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin gerçek kısmının frekansla deęiřimi	101
Şekil 4.48. Farklı derişimlerde malařit yeřil oksalat boya katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin sanal kısmının frekansla deęiřimi.....	102
Şekil 4.49. Farklı derişimlerde malařit yeřil oksalat boya katkılı hidrojellerin tanjant faktörünün frekansla deęiřimi.....	104
Şekil 4.50. Farklı derişimlerde malařit yeřil oksalat boya katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin Cole–Cole düzlem çizgileri	105
Şekil 4.51. Farklı derişimlerde malařit yeřil oksalat boya katkılı hidrojellerin karmaşık empedansının gerçek kısmının frekansla deęiřimi	106
Şekil 4.52. Farklı derişimlerde malařit yeřil oksalat boya katkılı hidrojellerin karmaşık empedansının sanal kısmının frekansla deęiřimi.....	107
Şekil 4.53. Farklı derişimlerde malařit yeřil oksalat boya katkılı hidrojellerin karmaşık empedansının frekansla deęiřimi	108
Şekil 4.54. Farklı derişimlerde malařit yeřil oksalat boya katkılı hidrojellerin faz açısının frekansla deęiřimi	110
Şekil 4.55. Farklı derişimlerde malařit yeřil oksalat boya katkılı hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmının frekansla deęiřimi	111
Şekil 4.56. Farklı derişimlerde malařit yeřil oksalat boya katkılı hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının frekansla deęiřimi	112

- Şekil 4.57. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya katkılı hidrojenlerin elektrik modülün düzlem çizgileri (a), Maxwell elementli elektrik modülünün Cole-Cole diyagramı (b) ve onların Smith Chart diyagramına uyarlanmış hali (c)..... 115
- Şekil 4.58.Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya katkılı hidrojenlerin kapasitansının frekansla deęişimi 116
- Şekil 4.59. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya yüklü hidrojenlerin yüzey özdirencinin frekansla deęişimi 117
- Şekil 4.60. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya katkılı hidrojenlerin karmaşık iyonik iletkenliğinin gerçek kısmının frekansla deęişimi 118
- Şekil 4.61. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya katkılı hidrojenlerin karmaşık iyonik iletkenliğinin sanal kısmının frekansla deęişimi 119



FOTOĞRAFLAR VE MALZEMELER DİZİNİ

Fotoğraf 4.1. Saf (50.000X) (a), 100 mg/L malaşit yeşil oksalat boya katkı (50.000X) (b), saf (100.000X) (c) ve 100 mg/L malaşit yeşil oksalat boya katkı (100.000X) (d) hidrojellin SEM görüntüsü33

Fotoğraf 4.2. Saf (a), 50 mg/L rodamin-b (b), 100 mg/L safranin boya (c) ve 100mg/L kristal mor boya katkı (d) hidrojellerin Optik Mikroskop (50X) görüntüsü.....35



SİMGE VE KISALTMALAR

Simgeler	Açıklama
Ag	Gümüş
Co	Kobalt
Ni	Nikel
Mn	Mangan
Cr	Krom
ε^*	Karmaşık dielektrik sabit
ε'	Dielektrik sabitin gerçek kısmı
ε''	Dielektrik sabitin sanal kısmı
M^*	Karmaşık elektrik modül
M'	Elektrik modülün gerçek kısmı
M''	Elektrik modülün sanal kısmı
Z^*	Karmaşık empedans
Z'	Empedansın gerçek kısmı
Z''	Empedansın sanal kısmı
σ^*	Karmaşık iyonik iletkenlik
σ'	İyonik iletkenliğin gerçek kısmı
σ''	İyonik iletkenliğin sanal kısmı
f	Frekans
ω	Açısal frekans
C	Kapasitans
ε_r	Dielektik sabit
ε	Dielektik geçirgenlik
V	Gerilim
Q	Elektriksel yük
ε_0	Boşluğun dielektrik geçirgenliği
A	Levha alanı
l	Levhalar arası mesafe

D	Yüzey yük yoğunluğu/ dielektrik yer değiştirme
D_0	Vakum ortamındaki dielektrik yer değiştirme
E	Elektrik alan
P	Polarizasyon
p	Elektriksel dipol moment
d	Elektriksel yükler arası mesafe
$\tan\delta$	Tanjant kayıp faktörü
i	Sanal sayı birimi
τ	Durulma zamanı
α	Sıcaklığa bağlı parametre
R	Rezistans
X	Reaktans
θ	Faz açısı
C_0	Boşluğun kapasitansı
M_s	En düşük elektrik modül
M_∞	En yüksek elektrik modül
r	Yarıçap
ϵ_∞	En yüksek dielektrik geçirgenlik
ϵ_s	En düşük dielektrik geçirgenlik
ac	Alternatif akım
σ_{AC}	AC iletkenlik
σ_0	Sınırlayıcı sıfır frekans iletkenliği
L	İndüktans

Kısaltmalar

RB

SR

KrM

MYO

Açıklama

Rodamin-B

Safranin

Kristal Mor

Malaşit Yeşil Oksalat

SEM	Taramalı Elektron Mikroskobu
OM	Optik Mikroskop
PAAm	Poliakrilamid
DC	Dođru Akım
AC	Alternatif Akım
MBAAm	Metilenbis (akrilamid)
AAm	Akrilamid
RC	Elektrik Devresi
ES	Empedans Spektroskopi
SP	Süperparamanyetik
OH	Hidrooksit



BÖLÜM I

GİRİŞ

Hidrojeller son 40 yıldır kapsamlı araştırma alanlarından birisidir. Akıllı jeller olarak da bilinen hidrojeller, üç boyutlu ağlarında büyük miktarda su tutabilen ancak çapraz bağlanmış ağları sayesinde suda çözülmeyen hidrofilik yapıdaki polimerler olarak adlandırılır (Ahmed, 2015; Buchholz ve Graham, 1998; Brannon-Peppas ve Harland, 1991; Li vd., 2013). Su tutma kapasitesi ve geçirgenlik bu hidrojin en önemli özelliklerinden birisidir (Hennink ve Nostrum, 2002; Hoffman, 2002). Son yıllarda doğada tabi halde de bulunan doğal hidrojellerin yerini uzun ömürlü, yüksek su emme kapasitesi ve dayanıklı olması nedeniyle sentetik hidrojeller almıştır. Sentetik hidrojeller, sıcaklığın keskin ve güçlü olduğu koşullarda da kararlıdır (Ahmed, 2015).

Biyo-uyumluluk, hidrojellerin sağlaması beklenen en önemli karakteristik özelliklerden birisidir. Hidrojellerin biyo-uyumluluğu sağlayabilmesi için zehirli olmaması gerekir. Hidrofilik yüzeyleri vücut sıvılarıyla temas ettiğinde düşük ara yüzey serbest enerjisine sahip olması nedeniyle hidrojeller iyi bir biyo-uyumluluk gösterir. Ayrıca hidrojellerin yumuşak ve kauçuk yapısı çevresindeki dokuya tahrişi en aza indirir (Anderson ve Langone, 1999; Smetana, 1993). Hidrojelleri oluşturan çapraz bağlar, vizkoelastik ve bazen de saf elastik davranış sergilemelerini sağlar. Dolayısıyla bu çapraz bağlar, hidrojellerin yapısına, elastikliğine ve yapışkanlığına katkıda bulunur. Bu akıllı jeller ağ yapıları arasında önemli su içeriğinden dolayı doğal dokuya benzer derecede bir esnekliğe sahiptir. Ayrıca hidrojellerin polaritesini, yüzey özelliklerini, mekanik özelliklerini ve şişme davranışlarını kontrol ederek kimyası değiştirilebilir (Gulrez vd., 2011).

Hidrojeller, bir dizi klasik kimyasal yollarla sentezlenebilir. Bu yöntemler, polimerizasyon tipi tek adımlı ve reaktif gruplara sahip polimer moleküllerin sentezini içeren çok adımlı sentezleme teknikleridir. Ayrıca bu akıllı jeller uygun çapraz bağlayıcı maddeler ile polimerlerin sonradan çapraz bağlanmaları yöntemiyle de sentezlenebilir. Diğer taraftan araştırmacılar, çapraz bağlanma yoğunluğu gibi yapı üzerindeki moleküler ölçekte kontrollü polimer ağları tasarlayıp biyolojik bozunum, mekanik mukavemet uyarıcılara kimyasal ve biyolojik tepki verebilme gibi özelliklere

sahip özel jeller sentezlemektedirler (Burkert vd., 2007). Hidrojeller dış çevresel koşullarda meydana gelen değişikliklere karşı büzülme veya genişlemek gibi kontrol edilebilir tepkiler verecek şekilde sentezlenir. Bu jeller sıcaklık, elektrik/manyetik alan, ışık, basınç, ses, pH, iyonik kuvvet gibi dış çevreden gelen fiziksel ve kimyasal uyarıcılara karşı hacimlerinde değişiklikler göstererek tepki verir. Hidrojellerin dış ortamdan gelen fiziksel ve kimyasal uyarıcılara karşı hacimlerindeki değişim o kadar köklü olur ki bu durum faz geçişi olarak ortaya çıkar (Jarry vd., 2002; Nho vd., 2005; Schuetz vd., 2008; Shin vd., 2010; Tabata, 2009; Shantha ve Harding, 2002; (Raju ve Raju, 2001; Takeda ve Taniguchi, 1985).

Hidrojeller tamamen katı veya tamamen sıvı olmama özelliklerinden dolayı katı ve sıvılarda bulunmayan durulma, elastik, viskoz gibi birçok davranışlara sahiptir. Ayrıca bu tür hidrojeller çapraz bağlayıcı derişimi, monomerlerin seyreltilmesinin başlangıç derecesi, ağ yapısını oluşturan birimlerin kimyası, denge şişme derecesi ve yük yoğunluğu gibi özellikler de sergiler (Kızılay ve Okay, 2003a; Orakdogan ve Okay, 2006; Funke vd., 1998). Bunlara ilave olarak hidrojellerdeki iletkenlik ve hacim fraksiyonu, çapraz bağ yapısı ve monomer derişimi ile alakalıdır (Yazıcı ve Okay, 2005). Monomer derişimi, çapraz bağ yoğunluğu ve iyonik grupların sayısı ile doğru fakat şişme kapasitesi ile ters orantılıdır (Naghash ve Okay, 1996; Flory, 1953).

Hidrojellerde istenmeyen bir durum olarak görülen optik berraklığı ve mukavemeti köklü bir şekilde azaltan bölgesel jel homojenliği bulunur. Bölgesel jel homojenliği hareketli karşıt iyonların etkileri nedeniyle hidrojellerin iyonizasyon derecesini azaltır (Kızılay ve Okay, 2003b; Bastide ve Candau, 1996; Shibayama, 1998; Lindemann vd., 1997; Ferry, 1980; Rosiak ve Yoshii, 1999).

Wichterle ve Lim tarafından 1954 yılında ilk sentetik hidrojellerin sentezlenmesiyle beraber hidrojel ürünler teknolojide birçok alanda kullanım fırsatı buldu (Wichterle ve Lim, 1960). Hidrojel teknolojilerinden hijyenik ürünlerde (Singh vd., 2010), tarımda (Amulya, 2010), ilaç dağıtımında (Singh vd., 2010; Amulya, 2010; Mehrdad vd., 2009; Singh vd., 2010; Kashyap vd., 2005), yapay kar üretiminde (Singh vd., 2010), gıda katkı maddelerinde (Chen vd., 1995), biyomedikal uygulamalarda (Stamatialis vd., 2008; Kaihara vd., 2008), doku mühendisliğinde (Zhang vd., 2011), yara bezlerinde

(Sikareepaisan vd., 2011) ve biyosensör uygulamalarda (Krsko vd., 2009; Wang vd., 2010) yararlanılır.

Hidrojeller biyomedikal ve eczacılığın pratik uygulamaları için son zamanlarda birçok araştırmacının ilgisini çekmektedir. Fizyolojik koşullar oluştuğunda istenilen süre boyunca hidrojeller bütünlüğünü koruyabilmektedir. Hidrojellerin düşük molekül ağırlığına sahip, biyomakromoleküllerin geçişlerinin kolay olduğu bir malzeme olması ve biyolojik sistemler ile biyo-uyumluluk içerisinde oluşu en büyük avantajıdır (Jeong vd., 2002).

5 ve 10 mg BaFe₁₂O₁₉ (16 ve 21 nm çaplı) nanoparçacık içeren poliakrilamid (PAAm) hidrojellerin şişme ve manyetik özellikleri incelenmiştir. Nanoparçacık içeren hidrojellerin şişme özelliklerinin değişmesinin manyetik özelliklerini etkileyeceği belirlenmiştir (Sözeri vd., 2013).

Manyetik NiFe₂O₄ nanoparçacık içeren poliakrilamid (PAAm) hidrojellerin elektriksel ve manyetik özelliklerinin incelendiği çalışmada, NiFe₂O₄ nanoparçacık varlığının hidrojellerin daha homojen olmasına katkı sağladığı görüldü. Süperparamanyetik (SP) özelliklere sahip olan nanoparçacık katkılı hidrojellerin manyetik adsorbant uygulamaları için çok uygun olduğu tespit edildi (Chen vd., 2013).

Hidrojellerin kapasitör özelliklerini iyileştirmek için nitrojen katkılı hidrojeller sentezlenmiştir. Bu hidrojellerin çok hızlı bir şarjda/deşarjda bile yüksek güç yoğunluğuna sahip olması nedeni ile süperkapasitör özelliği sergilediği saptandı. Dolayısıyla bu tür hidrojellerin elektronik devrelerde çok yüksek güç yoğunluklu kapasitör olarak kullanılabilmesi öngörüldü (Hoffman, 2012).

Hidrojellerin canlı hücreleri barındıracak ve hücrelerin rahatlıkla çoğalmalarını sağlayacak kadar geniş gözenekler içermesi nedeniyle doku zedelenmesinin onarılması, organ tahribatlarının tedavisi ve organ yenilenmesinde kullanılabilmesi belirlendi (Sözeri vd., 2013).

İyon yüklemenin hidrojellerin şişme davranışları üzerinde oluşturacağı etkileri incelemek amacıyla poli (akrilamid-ko-N, N'-metilenbisakrilamid) hidrojeller piratin fluoroprobun (trisodyum 8-hidroksipiren-1, 3,6-trisülfonat) iyonları yüklenerek

sentezlenmiştir. Yüklenen iyon derişiminin hidrojjelerin şişme kinetiğini önemli ölçüde deęiştirdiđi saptanmıştır (Alveroglu vd., 2009). Mevcut nöral protez uygulamalarında kullanılmak üzere nörotrofin katkılanmış hidrojjelerin nöron-cihaz temasını geliştirdiđi, güç gereksinimini düşürdüđü ve elektrot yoğunluđunu artırdıđı tespit edilmiştir (Winter vd., 2007).

Kobalt katkılı hidrojjelerin manyetik özellikleri üzerine kobalt derişiminin güçlü etkisinin olduđu tespit edildi. Kobalt katkılanmış hidrojjelerin dış alana karşı diamanyetik bir tepki verdiđi gözlemlendi (Sözeri vd., 2009).

Mikro-parçacık ve yüksek elektromekanik özelliklere sahip olan aljinat katkılı hidrojjelerin, vücuttaki kondrosit mekanik iletimde ve doku iskelesinde kullanılabileceđi tespit edildi (Rouillard vd., 2010).

Dodesilbenzen sülfonik asit katkılı hidrojjelerin düşük frekans bölgesindeki (50 Hz–1 MHz) dielektrik ve iletkenlik özelliklerinin arayüzey polarizasyondan etkilendiđi ve yüksek deđerler aldıđı tespit edildi. Ayrıca katkı derişiminin artmasıyla hidrojjelerin içinde iletim kanallarının artıđı ve buna bađlı olarak iletkenliđinin de artıđı görüldü (Afzal vd., 2010).

Protonik iletkenliđin polimerik zincirlerin hareketliliđine ve moleküler hareketliliđin de polimer-su etkileşime bađlı olduđu tespit edildi (Pissis vd., 1999).

Malaşit yeşil boya katkılı metil metakrilat/poli (vinilasetat) ince filmlerde iletim karakteristiđi üzerinde Schottky-Richards mekanizmasının hakim olduđu tespit edildi. Ayrıca bu çalışmada malaşit yeşil boyada bulunan bölgesel dipollerin dielektrik özellikler üzerine büyük etkisinin olduđu belirlendi (Abd-ElKader vd., 2013). Tekrarlanan donma/çözülme tekniđi ile sentezlenen hidrojjelerin diđer hidrojjelerden farklı olarak karmaşık dielektrik davranış sergiledikleri tespit edildi. Bu yöntemle sentezlenen hidrojjelerde dielektrik sabitinin ve kayıp faktörünün çapraz bağlanma yoğunluđunun artmasıyla artıđı görüldü. Ayrıca bu tür hidrojjelerdeki dielektrik spektrumlarının uç kutup gruplarındaki hidroksit (OH) bölgesel hareketlilik ve durulma mekanizmasından kaynaklandıđı saptandı (Londono vd., 2012).

Zümrüt nanoparçacık katkılı polianilin hidrojellerin saf polivinil pirolidon ve polivinil alkol hidrojellere göre çok daha yüksek hidrasyon oranı sergilemekle birlikte benzer şişme davranışı gösterdikleri tespit edildi. Ayrıca doğru akım iletkenliğinin tüm hidrojeller için benzer olmakla birlikte, polivinil pirolidon hidrojellerin nanoparçacık katkılı polianilin hidrojellere kıyasla daha yüksek değerler aldığı tespit edildi (Dispenza vd., 2007).

Poli-hidroksietil akrilat hidrojellerin dielektrik geçirgenliğinin, iletkenliğinin ve elektrik modülünün suyun bir fonksiyonu olarak değiştiği belirlendi (Pissis ve Kyritsis, 1997).

Hidrojellerin dielektrik ve iletkenlik özelliklerinin incelendiği çalışmada, dielektrik/iletkenlik değerlerinin serbest iyonların hidrojel kanallar içinde rahat hareket edememesinden dolayı arttığı belirlendi (Sasaki vd.,1999; Aouada vd., 2006).

Bu doktora tezinde çapraz bağlayıcı olarak N, N'-metilenbis akrilamid (MBAAm), başlatıcı olarak potasyum peroksodisülfat ve monomer olarak da 2-akrilamido-2-metilpropan sülfonik asit (AMPS), itakonik asit (IA) kullanılarak poli (AMPS-ko-IA) çapraz bağlı saf hidrojeller sentezlendi. Sentezlenen bu saf hidrojellere bazı metal ve boya iyonlarının katılanması ile üretilen numunelerin dielektrik ve elektriksel karakterizasyonu Empedans Spektroskopi tekniği ile yapıldı. Üretilen bu katkılı hidrojellerin morfolojik karakterizasyonu ise Taramalı Elektron Mikroskopi (SEM) ve Optik Mikroskopi (OM) teknikleri kullanılarak gerçekleştirildi.

Öncelikle dielektrik ve iletkenlik özellikleri bilinen bazı geçiş metalleri ile aynı derişimde (50 mg/L) iyonik boya katkılı hidrojeller frekansın bir fonksiyonu olarak incelendi. Düşük ve yüksek frekans bölgelerinde boya iyonları katkılı hidrojellerin empedans değerinin hangi fiziksel özelliklere karşı geldiği belirlendi. İyonik boya katkılı hidrojeller ile metal iyonları katkılı hidrojellerin iyonik iletkenlikleri detaylıca karşılaştırıldı. Bunlara ilave olarak dielektrik sabitin gerçek ve sanal kısmının düşük frekans ve yüksek frekans bölgelerindeki toplam polarizasyona etkileri detaylıca araştırıldı. Bu tez çalışmasından elde edilen sonuçlar literatürle karşılaştırıldı (Sredić vd., 2008; Dispenza vd., 2006; Konsta vd., 1991; Jia vd., 2003; Wan vd., 1995). (Ramesh vd., 2011; Rajendran vd., 2004; Liew vd., 2012).

Diğer taraftan hidrojellere farklı derişimlerdeki iyonik boyalar katkılanarak boya derişiminin hidrojellerin dielektrik ve iletkenlik özellikleri üzerine etkileri yine frekansın bir deęişkeni olarak incelendi. Katkılanmış bütün boyalarda derişimin deęişimine baęlı kalmaksızın dielektrik deęerlerinin düşük frekans bölgelerinde elektrot polarizasyon etkiden dolayı yüksek deęerler aldığı görüldü (Saha vd., 2017; Dereman vd., 2014; Sengwa ve Sankhla, 2007a). Artan frekansla birlikte iyonik boya katkılı hidrojellerin dalgalı hareketlerinin boya iyonları ile hidrojellerin bantları arasında oluşan ara yüzey etkileşimlerden ve Brown hareketinden (Brownian motion) tespit edilerek literatürle karşılaştırılması yapıldı (Xu vd., 2014; Mahmoodi vd., 2012; Dutta ve Biswas, 2002; Mishra ve Rao, 1998).

İyonik boya ve metal iyonları katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabit ve elektrik modül düzlem çizgileri (Cole-Cole düzlem çizgileri) non-Debye durulma modeli ile açıklandı. Bu katkılı hidrojellerin Cole-Cole düzlem çizgilerinin oluşması, bu malzemelerin elektriksel kullanımı ile ilgili önemli sonuçlara götürdüğü belirlendi. Her bir malzeme için Cole-Cole düzlem çizgileri ve bu çizgilerin Smith Chart diyagramındaki karşılıkları çizildi. Smith Chart diyagramlarından iyon katkılı hidrojellerin elektrik modülünün düzlem çizgilerinin eşdeęer bir elektrik devresine (RC) karşılık geldięi gösterildi. Bu durumdan iyon katkılı hidrojellerin ne tür bir entegre devrede kullanılabileceęi tespit edildi (Boyd, 1980; Böettcher ve Bordewijk, 1978; Cole ve Cole, 1941; Smith, 1939).

Bu giriş bilgisinden sonra ikinci bölümde dielektrik malzeme, dielektrik sabitin frekans baęımlılıęı, dielektrik özellikler, polarizasyonların sınıflandırılması ve dielektrik durulma mekanizmaları gibi konularda kurumsal bilgiler verildi. Üçüncü bölümde ise bu tez çalışmasında kullanılan saf hidrojellerin sentezlenmesi ve sentezlenen hidrojellere bazı metal ve boya iyonlarının katkılanmasından kısaca bahsedildi. Ayrıca yine bu bölümde üretilen numunelerin morfolojik karakterizasyonunda ve ölçümlerinde kullanılan taramalı elektron mikroskobu, optik mikroskobu ve empedans spektroskopisinin çalışma prensipleri hakkında bilgi verildi. Deneysel sonuçlar ve tartışmanın yer aldığı dördüncü bölümde ise üretilen metal ve iyonik boya katkılı hidrojellere ait veriler ve fiziksel yorumlar tartışıldı. Üretilen numunelerin opto elektronik ve sensör uygulamalar açısından elverişli bir ürün olacaęının bir kanıtı olarak görülen elektrik modüle ait Cole-Cole çizgileri ve onların elektronik devrelerin teorik

alt yapısı olan Smith Chart diagramı ve elde edilen malzemelerin ne tür bir elektrik/elektronik devrede kullanılabileceği detaylıca tartışıldı.



BÖLÜM II

KURAMSAL BİLGİ

2.1 Dielektrik Malzeme

Bir dış elektrik alan uygulandığında net bir elektriksel yük akışı olmayan fakat yüklerin yer değiştirerek polarize olabilme yeteneğine sahip olduğu ve yük veya enerjinin depolanabildiği maddelere dielektrik malzeme denir (Tareev, 1975; Ren ve Lam, 2008). Başka bir deyişle dielektrik madde, serbest elektronu olmayan dolayısıyla elektriksel olarak yalıtkan olan malzemedir. Bu malzemeler elektriksel olarak yalıtkan olmalarına rağmen uygulanan dış elektriksel alanın etkisiyle yer değiştirebilen elektrik yük taşıyıcılarının düzenine sahiptir. Dielektrik malzemelere bir dış elektrik alan uygulandığı zaman, alan etkisinde kalan elektriksel yüklü elektronlar, iyonlar ve moleküller yön değiştirirler. Elektriksel yüklerin yönlerinin değişmesine bağlı olarak elektriksel yük merkezleri kayar ve neticede bir polarizasyon oluşur. Ayrıca dielektrik malzemelerin valans ve iletim bantları arasındaki enerji aralığı 2 eV den büyük ve özgül dirençleri 10^4 (ohm.m) ve üzeri değerdedir. Bu malzemelerde, iletken malzemelerin aksine yüklerin hepsi belirli atom veya moleküllere sıkıca bağlıdır. Bu bağlanma nedeni ile yüklerin tek yapabildiği atomun veya molekülün içinde biraz hareket edebilmektir (Callister, 2007; Zengin, 2007; Delipınar, 2013).

Dielektrik malzemeler deneysel olarak tayin edilebilen boyutsuz bir büyüklük olan ve ' ϵ_r ' ile sembolize edilen dielektrik sabitle karakterize edilir. Elektrik alan varlığında oluşan dipol etkileşimler bu malzemelerin kondansatör üretimine elverişli olmasını sağlayan yüzey tabakalardaki elektriksel yüklerin birikmesini sağlar. Kondansatöre bir dış gerilim uygulandığı zaman plakalardan biri negatif diğeri ise pozitif elektriksel yüklerle yüklenmiş olur. İki plaka arasındaki ilgili elektrik alan pozitiften negatife yönelir. Kapasitans (C), her iki plakada depolanan yük miktarı ile ilgili olup, kapasitansın değeri

$$C = \frac{Q}{V} \quad (2.1)$$

ifadesinden hesaplanır.

Burada V , kondansatör boyunca uygulanan voltaj ve Q ise elektriksel yüküdür. Diğer taraftan kondansatörün plakalarının paralel olduğu ve bu plakalar arasının da vakumlu olduğu düşünülürde kapasitans

$$C = \epsilon_0 \frac{A}{l} \quad (2.2)$$

eşitliğinden elde edilir. Burada A levhaların alanını, l ise levhalar aralarındaki mesafeyi temsil eder. ϵ_0 , vakumun geçirgenliği olarak ifade edilir ve evrensel bir sabit olup, değeri $8.85 \times 10^{-12} \text{ C}^2/\text{Nm}^2$ dir. Plakalar arasındaki bölgeye kondansatörün yük depolama kapasitesini artıran bir dielektrik malzeme yerleştirilirse bu durumda kapasitans

$$C = \epsilon \frac{A}{l} \quad (2.3)$$

ifadesinden hesaplanır. Burada ϵ , dielektrik ortamın geçirgenliği olup vakumun geçirgenliğinden büyüktür. Genellikle dielektrik sabiti olarak adlandırılan göreceli geçirgenlik ise

$$\epsilon_r = \frac{\epsilon}{\epsilon_0} \quad (2.4)$$

eşitliği ile verilir ve dielektrik ortamın geçirgenliğinin vakumun geçirgenliğine oranına eşittir.

Diğer taraftan kondansatörlerde, yüzey yük yoğunluğunun (D) veya kondansatör plakasının birim alanı başına düşen yük miktarının (C/m^2) elektrik alanla orantılı olduğu görülür. Literatürde yüzey yük yoğunluğu olan ' D ' çoğu zaman dielektrik yer değiştirme olarak da tanımlanır. Bir vakum ortamında dielektrik yer değiştirme ifadesi

$$D_0 = \epsilon_0 E \quad (2.5)$$

şeklinde tanımlanır. Denklem (2.5)' de D_0 , vakum ortamındaki dielektrik yer değiştirme ve E , uygulanan dış elektrik alan olarak belirlenir.

Benzer şekilde dielektrik ortam varlığında ise

$$\mathbf{D} = \epsilon \mathbf{E} \quad (2.6)$$

eşitliği mevcuttur. Burada D , dielektrik ortamdaki yer değiştirme olarak tanımlanır. Ayrıca bir dielektrik malzemenin varlığında kondansatörün plakaları üzerindeki yüzey yük yoğunluğu

$$\mathbf{D} = \epsilon \mathbf{E} + \mathbf{P} \quad (2.7)$$

eşitliği ile ifade edilir. Denklem (2.7)' de P , polarizasyon ifadesidir. Birçok dielektrik malzeme için polarizasyon uygulanan harici elektrik alanla orantılıdır. Bu orantı,

$$\mathbf{P} = \epsilon_0(\epsilon_r - 1)\mathbf{E} \quad (2.8)$$

Denklem (2.8)' deki gibi gösterilir. Burada ϵ_r , uygulanan dış elektrik alanın büyüklüğünden bağımsızdır.

Kapasitansın açıklanmasında en iyi yaklaşımlardan biri de alan vektörleri yardımıyla olacaktır. Bilindiği üzere her bir elektrik dipolü için pozitif ve negatif elektrik yükü arasında bir ayrım vardır. Bir elektriksel dipol moment (p)

$$\mathbf{p} = qd \quad (2.9)$$

şeklinde verilir. Denklem (2.9)' da q , her dipol yükünün büyüklüğü ve d , negatif ve pozitif yükler arası mesafedir. Elektrik dipol moment, negatif yükten pozitif yüke doğru yönelmiş bir vektördür. Bir elektrik alanının varlığında, elektrik dipolü uygulanan alan yönünde yönelten bir kuvvet oluşur. Bu kuvvetin etkisiyle dipollerin uygulanan dış elektrik alan yönünde hizalanmasında polarizasyonu oluşturur.

2.2 Dielektrik Sabitin Frekans Bağımlılığı

Dielektrik malzemeleri en iyi karakterize eden olgu olan dielektrik sabitin frekans bağımlılığı, bu malzemelerin teknolojik uygulamaları açısından oldukça önemlidir. Genellikle dielektrik malzemelere bir dış elektrik alan veya gerilim uygulandığında zamanla akımın yönü değişir yani akım alternatiftir (ac). Bir ac elektrik alanı tarafından

polarize olmaya maruz kalmış dielektrik malzeme düşünülürken, belirli bir süreç içerisinde oluşan dipoller, her yön değiştirme işleminde uygulanan harici alanın yönüne bağlı olarak yeniden yönelmeye çalışır. Farklı polarizasyon tipleri için, dipollerin alan yönünde yeniden hizalanabilme kabiliyetine bağlı olarak minimum ve maksimum hizalanma süreleri farklılık gösterir (Callister, 2007).

Dielektrik malzemelerde dış elektrik alan etkisinde oluşan polarizasyonun durulma için gereken minimum yeniden yönelim süresine karşılık gelen frekansa durulma frekansı denilir. Bir dipole uygulanan elektrik alan frekansı durulma frekansını aştığı zaman, dipolün yönelim yönünü kaydırmaya devam edemez ve dolayısıyla dielektrik sabite katkıda bulunmaz.

Bir dielektrik malzeme içinde polarizasyon mekanizması sona erdiğinde, dielektrik sabit değerinde artan frekansla birlikte ani bir düşüş görülür. Aksi durumda eğer polarizasyon mekanizması devam ediyorsa, dielektrik sabit değeri hemen hemen frekanstan bağımsız davranış sergiler. Dielektrik sabitin frekans bağımlılığı, daha çok frekans spektrumunun düşük olduğu bölgelerde aktiftir. Bir ac elektrik alanına tabi tutulan dielektrik malzeme tarafından elektrik enerjisinin emilmesi, dielektrik kayıp olarak adlandırılır. Bu kayıp, dielektrik malzeme içinde oluşan dipol polarizasyonun etkisini kaybettiği durulma frekansı civarındaki frekanslarda önem kazanır. Ayrıca dielektrik malzemelerin teknolojiadaki kullanımı düşünülürken, dielektrik kaybın düşük olması tercih edilir (Delipmar, 2013; Callister, 2007; Zengin, 2007).

2.2.1 Dielektrik özellikler

Dielektrik özelliklerin analizinde faydalanılan en temel yaklaşım kapasitans ve kayıp faktörü değerlerinin ölçülmesidir. Ölçülen kapasitans ve kayıp faktörü değerlerinden yola çıkılarak karmaşık dielektrik sabitin gerçek ve sanal kısımlarının değerleri belirlenir. Elektrik enerjisinin depo edilebilme özelliği olan kapasitans ifadesini dielektrik sabitin gerçek kısmına bağlayan denklem aşağıdaki gibi ifade edilir (Delipmar, 2013; Coşkun vd., 2012; Zengin, 2007).

$$\varepsilon' = \frac{Cd}{\varepsilon_0 A} \quad (2.10)$$

Denklem (2.10)'daki d ve A , malzemenin kalınlığı ve malzemenin alanı olarak tanımlanır.

Dielektrik malzemelerin en temel özelliklerini karmaşık dielektrik sabiti ($\varepsilon^*(\omega)$) gösterir. Uygulanan dış elektrik alan etkisinde dielektrik malzemenin içerisinde ne kadar enerji depolandığını dielektrik sabitin gerçekte kısmı, malzemelerde meydana gelen enerji kaybı olduğunu ise dielektrik sabitinin sanal kısmını gösterir. Bu durum Denklem (2.11)'deki gibi ifade edilir (Cho vd., 2003; Scaife, 1989; Kaya ve Fang, 1997; Coşkun vd., 2012).

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon'(\omega) - i\varepsilon''(\omega) \quad (2.11)$$

Denklem (2.11)'deki $\varepsilon'(\omega)$ ve $\varepsilon''(\omega)$, sırasıyla karmaşık dielektrik sabitin gerçekte ve sanal kısmına karşılık gelmektedir. Ayrıca dielektrik malzemelerdeki kayıp olarak açığa çıkan enerjinin, malzemelerde depolanan enerjiye oranı 'tanjant kayıp faktör' olarak tanımlanır ve aşağıdaki gibi ifade edilir.

$$\tan\delta = \frac{\varepsilon''(\omega)}{\varepsilon'(\omega)} \quad (2.12)$$

Dielektrik malzemelerde oluşan enerji depolama ve kayıp faktörüyle ilgili süreçler hakkındaki en net bilgi, Cole-Cole durulma modellerinden faydalanarak elde edilir. Cole-Cole çizgileri bir dielektrik malzeme içinde tek durulma zamanının olup olmadığının belirlenmesi açısından son derece önemlidir. Tek durulma zamanlı bir dielektrik malzeme için Cole-Cole çizgileri bir yarım daire ile tanımlanır. Cole-Cole çizgileri aynı zamanda elektriksel bir devreye karşılık gelir. Cole-Cole çizgileri tam bir daire oluşturduğu zaman bu Smith Chart diyagramındaki direnç devresini karşılık gelir (Cole ve Cole, 1941; Smith, 1939; Townsend, 1995; Tiwari, 2011; (Tsangaris vd., 1998). Bu Cole-Cole durulma sürecini anlatan karmaşık dielektrik sabit ifadesi:

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon'(\omega) - i\varepsilon''(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + (i\omega\tau)^{1-\alpha}} \quad (2.13)$$

Denklem (2.13)'deki gibi verilir.

Denklem (2.13)' deki $\omega = 2\pi f$, i ve τ sırasıyla uygulanan elektrik alanın açısal frekansı, sanal sayı birimi ve durulma zamanı olarak tanımlanır. Ayrıca bu denklemdeki ε_∞ ve ε_s sırasıyla yüksek ve düşük frekans dielektrik geçirgenliğini ve α , parametresi ise sıcaklığa bağlı ($0 < \alpha \leq 1$) arasında değerler alan bir soğurma sabiti gösterir. Cole-Cole durulma tipini ifade eden Denklem (2.13)' ü gerçek ve sanal kısımlarına ayırarak olursak:

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_\infty + (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \frac{1}{|A|^2} \left[1 + \sin\left(\frac{\pi\alpha}{2}\right) (\omega\tau)^{1-\alpha} \right] \quad (2.14)$$

ve

$$\varepsilon''(\omega) = (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \frac{1}{|A|^2} \left[(\omega\tau)^{1-\alpha} \cos\left(\frac{\pi\alpha}{2}\right) \right] \quad (2.15)$$

ifadeleri elde edilir. Denklem (2.14 ve 2.15)'deki A ve φ ifadeleri sırasıyla aşağıdaki gibi tanımlanır.

$$A = \left[1 + 2(\omega\tau)^{1-\alpha} \sin\frac{\alpha\pi}{2} + (\omega\tau)^{2(1-\alpha)} \right]^{1/2} \quad (2.16)$$

ve

$$\varphi = \tan^{-1} \left[\frac{(\omega\tau)^{1-\alpha} \cos\frac{\alpha\pi}{2}}{1 + (\omega\tau)^{1-\alpha} \sin\frac{\alpha\pi}{2}} \right] \quad (2.17)$$

Denklem (2.14) ve (2.15)' in en sadeleşmiş hali ise Denklem (2.18) ve (2.19) gibi ifade edilir.

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \left\{ 1 + (\omega\tau)^{1-\alpha} \sin\left(\frac{\pi\alpha}{2}\right) \right\}}{1 + 2(\omega\tau)^{1-\alpha} \sin\left(\frac{\pi\alpha}{2}\right) + (\omega\tau)^{2(1-\alpha)}} \quad (2.18)$$

ve

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

Tek durulma zamanlı homojen dielektrik malzemelerin karmaşık dielektrik sabitleri Debye eşitliği ile tanımlanır (Debye, 1929). Frekansa bağlı olarak dielektrik durulma sürecinin (Laplace dönüşümü ile ifade edilen) Debye modeline uygun olduğu durumlarda (bir dielektrik malzemeye sabit bir elektrik alan uygulandığında frekansın eksponansiyel olarak değiştiği durumlarda) yani Denklem (2.13)' deki $\alpha = 0$ olur. Diğer taraftan $0 < \alpha \leq 1$ arasında olursa non-Debye modeline uyar. $\alpha = 0$ olduğunda, Denklem (2.11)' de verilen karmaşık dielektrik sabit ifadesi aşağıdaki Denklem (2.20)' deki forma dönüşür (Wang ve Richert, 2005).

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + i\omega\tau} \quad (2.20)$$

Debye durulma modelinde, karmaşık dielektrik sabitin gerçekte ve sanal kısmı aşağıdaki Denklem (2.21)'deki gibi ifade edilir.

$$\varepsilon^*(\omega) - \varepsilon_\infty = (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \frac{1}{1 + (\omega\tau)^2} - i(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \frac{\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2} \quad (2.21)$$

Ayrıca $\alpha = 0$ olduğunda, karmaşık dielektrik sabitin gerçekte ve sanal kısmı ile yüksek ve düşük frekansın dielektrik geçirgenliği arasındaki ilişki aşağıdaki Denklem (2.22)'deki gibi verilir (Coşkun vd., 2012; Mitsumata vd., 1998).

$$\left(\varepsilon'(\omega) - \left(\varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{2} \right) \right)^2 + \varepsilon''(\omega)^2 = \left(\frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{2} \right)^2 \quad (2.22)$$

2.2.2 Empedans özellikleri

Uygulanan alternatif akıma karşı koyan, karmaşık bir büyüklük ($Z^*(\omega)$) ile ifade edilen öz dirence empedans denir. Karmaşık empedans ölçümleri, genellikle malzemenin yüzey ve hacim (bulk) özelliklerini ayırt etmek için kullanılır. Malzemelerin yüzey ve hacim özelliklerinin belirlenmesi, o malzemenin iletim özellikleri açısından son derece faydalı bilgiler sunar. Dolayısıyla malzemelerin iletim özelliklerini belirleyen karmaşık empedans, Denklem (2.23)' deki gibi ifade edilir (Heaviside, 1886; Kennelly, 1893; Pissis ve Kyritsis, 1997; Macdonald, 1992).

$$Z^*(\omega) = Z'(\omega) - iZ''(\omega) = R(\omega) - iX(\omega) \quad (2.23)$$

Denklem (2.23)'deki $Z'(\omega)$ ve $Z''(\omega)$ sırasıyla karmaşık empedansın gerçekte ve sanal kısmı olarak tanımlanır. $R(\omega)$ ve $X(\omega)$ ise karmaşık empedansın gerçekte ve sanal kısımlarını ifade eden rezistans ve reaktanstır (Heaviside, 1886; Kennelly, 1893). Empedans fazı, akım ve gerilim arasındaki faz farkından kaynaklanır. Akım ve gerilim arasındaki faz farkı, faz açısı (θ) olarak tanımlanır ve Denklem (2.24)'deki gibi ifade edilir.

$$\theta = \tan^{-1} \left(\frac{Z''(\omega)}{Z'(\omega)} \right) \quad (2.24)$$

2.2.3 Elektrik modül özellikleri

İletkenlik özelliği kazandırılmış dielektrik malzemelerde, yüksek dielektrik geçirgenlik ve yüksek iyonik iletkenlikten dolayı ara yüzeydeki durulumlar net olarak görülemez. Yani ara yüzeydeki dielektrik mekanizmayı yöneten polarizasyon iletkenlikten dolayı belirsizleşir. Bu polarizasyonu net olarak tespit etmek, düşük frekanslardaki iletkenlik ve dielektrik geçirgenliğin değerlerindeki değişiklikleri en aza indirmek için elektrik modül ölçümleri yapılır. Ayrıca düşük frekans bölgelerindeki iyonik iletim ve dipol yönelme etkisini birbirinden ayırt etmek için karmaşık elektrik modül kullanılır (Pissis ve Kyritsis, 1997; Bordi vd., 2007). Karmaşık elektrik modül ($M^*(\omega)$), Denklem (2.25)'deki gibi verilir (Brohede vd., 2005; Dixon, 1990; Smaoui vd., 2009).

$$M^*(\omega) = M'(\omega) + iM''(\omega) \quad (2.25)$$

Yukarıdaki denklemde $M'(\omega)$ ve $M''(\omega)$ sırasıyla karmaşık elektrik modülün gerçekte ve sanal kısımlarına karşılık gelir. Elektrik modül dielektrik sabit ile ters, empedans ile doğru orantılıdır. Bu orantılar Denklem (2.26) ve Denklem (2.27)'deki gibi verilir (Pradhan vd., 2008):

$$M^*(\omega) = \frac{1}{\varepsilon^*(\omega)}, \quad (2.26)$$

$$M^*(\omega) = i\omega\varepsilon_0 Z^*(\omega). \quad (2.27)$$

Ayrıca Denklem (2.13)' den yola çıkarak Denklem (2.26) bağıntısını kullanarak Debye modeli için elektrik modülün düzlem çizgilerinin oluşturduğu yarıçapı $r = \frac{(M_{\infty}(\omega) - M_s(\omega))}{2}$ olan yarım dairenin denklemi;

$$\left(M'(\omega) - \frac{(M_{\infty}(\omega) + M_s(\omega))}{2} \right)^2 + M''(\omega) = \left(\frac{(M_{\infty}(\omega) - M_s(\omega))}{2} \right)^2 \quad (2.28)$$

şeklinde ifade edilir (Tsangaris vd., 1998; Zengin 2007).

2.2.4 İletkenlik özellikleri

Maddelerin iletkenlik özelliklerini belirleyen en önemli etken, atomlarının dış yörüngelerindeki serbest elektron sayılarıdır. Eğer malzemeye bir dış elektrik alan uygulanırsa atomlar/moleküller arasında serbest elektron veya iyon akışı oluşur ve bu malzemeler iletkenlik özellik sergiler (Callister, 2007).

Polimerik malzemelerin serbest elektronlarının iletim sürecine katılmamaları nedeniyle iletkenlikleri zayıftır ve oda sıcaklığında büyük çoğunluğu yalıtıcıdır. Bu nedenle saf polimerlerde dolu olan valans bandı ile boş olan iletim bandı arasındaki bant aralığı genellikle 2 eV den daha büyüktür. İyon katkılı polimerlerde ise gerek katyon gerekse anyonlar bir elektrik yüküne sahiptir ve bir elektrik alan uygulandığında elektriksel yükler göç veya difüzyon olma yeteneğine sahip olurlar. Uygulanan harici elektrik alan altında katyon ve anyonların hareketleri zıt yönde olur.

Bir iyonik polimerin iletkenliği, hem elektronik hem de iyonik katkıların toplamına eşittir. Malzemenin frekans ve sıcaklığa bağlı olarak, toplam iletkenlik üzerinde her iki katkı da etkin olabilir. Alternatif akıma karşı iyon katkılı bir polimerin tepkisi frekansa bağlı karmaşık iyonik iletkenlik ile tanımlanır. Karmaşık iyonik iletkenlik ise:

$$\sigma^*(\omega) = \sigma'(\omega) + i\sigma''(\omega) \quad (2.29)$$

denklemleri ile ifade edilir.

İletkenlik spektrumunun tipik frekans bağımlılığı düşük frekanslı dağılım, orta frekans platosu ve yüksek frekansta genişletilmiş dağılım olmak üzere üç ayırt edici bölge ile ifade edilir. İletkenliğin frekans bağımlılığı veya iyonik iletkenliğin Jonscher tarafından ifade edilen evrensel dinamiği (Jonscher, 1977 ve 1980),

$$\sigma_{AC}(\omega) = \sigma_0(\omega) + A\omega^s \quad (2.30)$$

Denklem (2.30)' deki gibi verilir. Denklemde $\sigma_{AC}(\omega)$ ac iletkenlik, $\sigma_0(\omega)$ sınırlayıcı sıfır frekans iletkenliği, A bir üstel sabit, $\omega = 2\pi f$ açısal frekans ve ' s ' güç yasasının üstel sabiti olarak ifade edilir. Bu s değerlerine bakılarak incelenen örneklerin iletkenlik mekanizmaları hakkında bilgi elde edilmektedir. $\text{Log}\sigma_{AC}-\text{log}\omega$ grafiğinin değişiminden s değerleri hesaplanır. Deneysel olarak " s " değeri log-log grafiği eğiminden hesaplanıp meydana gelen iletkenlik mekanizma türleri Çizelge 2.1' de verilmektedir (Tiwari vd., 2013; Lunkenheimer vd., 2006; Cramer ve Buscher, 1998; Elliott, 1994; Ke vd., 2010; Tiwari ve Shahi, 2005).

Çizelge 2.1. " s " parametrelerine bağlı olarak oluşan iletkenlik mekanizmaları

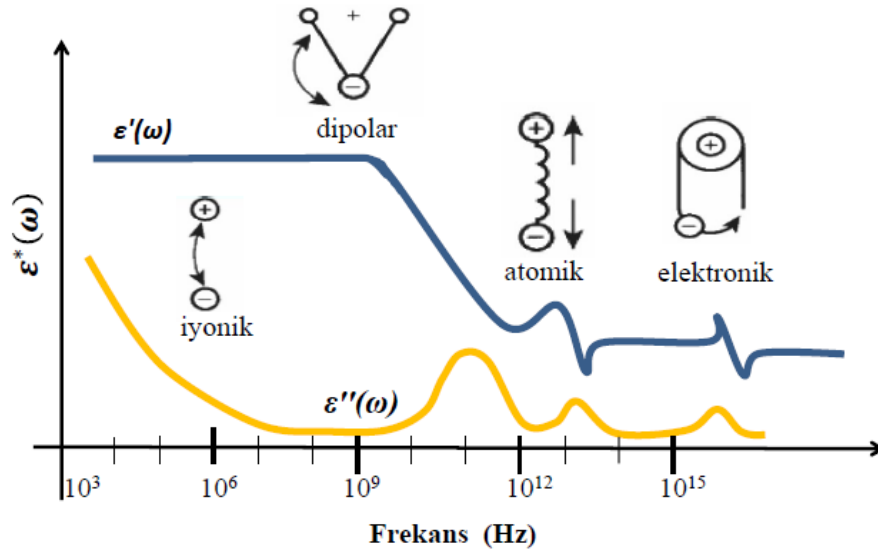
" s " parametre değerleri	İletkenlik mekanizması
$s \approx 0$	DC iletkenlik
$0 < s < 0,7$	İlişkili Bariyer Atlamalı (Correlated Barrier Hopping)
$0,7 \leq s < 1$	Kuantum Mekanik Tünel (Quantum Mechanical Tunneling)
$s = 1$	Neredeyse sürekli kayıp (Nearly Constant Loss)
$s > 1$	Süper Doğrusal Güç Kanunu (Super Linear Power Law)

2.3 Polarizasyonların Sınıflandırılması

Polarizasyon, uygulanan bir dış elektrik alan etkisindeki atomik veya moleküler dipol momentlerin uygulanan alan yönünde hizalanmasıdır. Bir dielektrik malzeme, toplam geçirgenliğine katkıda bulunacak birkaç dielektrik mekanizmaya veya polarizasyon etkisine sahip olabilir. Mikroskobik seviyede, malzemenin dielektrik özellikleri üzerine birkaç dielektrik mekanizmanın etkisi aynı anda olabilir (Callister, 2007; Feldman vd.,

2006). Frekans deęiřimi ile birlikte dielektrik özellikleri belirleyen çok farklı polarizasyon tipleri (elektrot polarizasyon, iyonik polarizasyon, dipol polarizasyon vb.) vardır. Bu polarizasyon tipleri farklı frekans bölgelerinde kendilerini göstermektedirler. Düşük frekans bölgesinde, katkılı hidrojenlerin dielektrik özelliklerini etkileyen en önemli faktör elektrot polarizasyondur; yüksek frekans bölgesinde yönelim polarizasyonudur.

Atomların ya da moleküllerin içinde yük hareketlilięi olduęu zaman polarizasyon atomik, elektronik, iyonik ve yönelim (dipolar) olmak üzere dört tipe ayrılarak incelenir. Lakin bir dış elektrik alan uygulandıęı zaman malzeme boyunca serbest yükler rahatça hareket edemiyorsa (yük hareketlilięi bölgesel olarak sınırlandırılmışsa) bu dört polarizasyondan farklı olarak elektrot veya ara yüzey polarizasyon oluşur. Genellikle dielektrik maddeler malzemenin cinsine veya uygulanan harici elektrik alanın biçimine baęlı olarak bu polarizasyon tiplerinden en az birini sergiler.



Şekil 2.1. Polarizasyon tiplerinin frekansla olan gelişimi (El Khaled vd., 2016; Delipinar, 2013; Zengin, 2007)

Özellikle dipol yönelim ve iyonik iletkenlik mikrodalga frekanslarında güçlü bir şekilde etkileşime girer. Atomik ve elektronik mekanizmalar nispeten zayıftır ve genellikle mikrodalga bölgede sabittir. Elektrot veya ara yüzey polarizasyon serbest elektronların/iyonların rahatça hareket edemedięi yani mobilitenin düşük olduęu malzemelerde düşük frekans ($10\text{ Hz}-10^4\text{ Hz}$) bölgelerinde etkindir. Her dielektrik mekanizmasının karakteristik bir "kesme frekansı" vardır. Frekans arttıkça, dielektrik

sabite katkı sađlayan yavař mekanizmalar sırayla ortadan kalkar ve yerini daha hızlı olan mekanizmalara bırakır. Dielektrik kayıp faktörü, her kritik frekansa karşılık gelecek bir pik (tepe) deęerine sahiptir. Her mekanizmanın büyüklüęü ve kesme frekansı farklı malzemeler için benzersizdir, birbirinden farklılık gösterir. Mesela su düşük frekanslarda güçlü bir dipolar etkiye sahiptir, fakat dielektrik sabiti 22 GHz civarında çarpıcı bir şekilde devreden çıkar. Yani bu frekans bölgesinde dielektrik sabit frekans deęişiminden etkilenmez.

Elektrot Polarizasyon

Elektrot polarizasyon pozitif ve negatif yüklerin uygulanan bir dış alanın etkisiyle yöneliminden kaynaklanır. Dielektrik malzemelere harici bir elektrik alan uygulandığında serbest hareket eden pozitif ve negatif yükler elektrotlar arasında sınırlandırılıp, alan etkisiyle zıt yönlerde harekete zorlandığında elektrot polarizasyon meydana gelir. Malzemelerin dielektrik özelliklerinin düşük frekans bölgesinde yüksek deęerler almasının en temel nedeni elektrot polarizasyon etkisinin bu bölgede çok etkin olmasıdır. Elektrot polarizasyon etki artan frekansla birlikte malzemenin dielektrik özellikleri üzerindeki etkinliğini kaybeder. Mikrodalga frekans bölgelerine gelindiğinde elektrot polarizasyon tamamen kaybolur; yerini iyonik ve dipolar polarizasyona bırakır (Feldman vd., 2006; Delipınar, 2013; Callister, 2007; Zengin, 2007).

Atomik Polarizasyon

Kızıl ötesi veya bu frekans bölgelerine yakın aralıklarda gerçekleşen atomik polarizasyon, uygulanan bir dış elektrik alan tarafından etkilenen ve bağları iyonik bağla bağlanmış malzemelerin iyonlarını bir arada tutan iyonik bağların bozulması ile oluşur. Birbirine yakın olan pozitif ve negatif iyonlar (katyonlar ve anyonlar) uygulanan harici elektrik alanın yönüne baęlı olarak birlikte yakınlaşır veya uzaklaşır. Burada katyonlar ve anyonlar arasında bir kutup çifti oluşur, fakat geçici bir polarizasyondur. Atomik boyutlarda meydana gelen bu geçici polarizasyona, atomik polarizasyon denir (Feldman vd., 2006; Delipınar, 2013; Callister, 2007; Zengin, 2007).

Elektronik Polarizasyon

Elektronik polarizasyon tüm atomların içerisinde bir dereceye kadar indüklenebilir. Bir malzeme üzerinde alan etkisi yokken elektronlar çekirdek çevresinde homojen olarak dağılmış ve yük merkezleri çakışıktır. Bir dış elektrik alan uygulandığında ise, pozitif yüklü çekirdeğe göre negatif yüklü elektron bulutunun merkezinin yer değiştirmesiyle elektronik polarizasyon vuku bulur. Başka bir deyişle, harici bir elektriksel alan uygulandığında eksi yüklü elektronlar alanın artı elektroduna, artı yüklü çekirdek eksi elektroduna doğru çok az da olsa yer değiştirir. Elektronik polarizasyon, bir elektrik alanının varlığında olur ve tüm dielektrik malzemelerde bulunur. Elektronik polarizasyon, ışık dalgalarının elektronları kolaylıkla etkileyebilecekleri 10^{14} Hz civarındaki frekanslarda oluşur. Elektronik polarizasyon bütün dielektrik malzemelerde oluşmasına rağmen, dielektrik sabite katkısı oldukça düşüktür(Callister, 2007; Zengin, 2007; Feldman vd., 2006; Delipınar, 2013).

İyonik polarizasyon

İyonik polarizasyon yalnızca iyonik olan malzemelerde gerçekleşir. En basit manada iyonik polarizasyon uygulanan dış elektrik alan etkisiyle katyonların bir yönde anyonların ise bu yöne zıt yönde yönelerek yer değiştirmesidir. Bir malzeme içerisinde iyonik polarizasyon oluştuğu zaman net dipol moment oluşur (Callister, 2007).

Yönelim (Dipolar) Polarizasyonu

Yönelim polarizasyonu ilk defa Debye tarafından incelenmiş ve dipolar polarizasyon olarak adlandırılmıştır. Malzeme içinde elektronların düzenli dağılımı, sürekli bir dipol momentin oluşmasını sağlar. Uygulanan bir dış elektrik alan olmadığı durumlarda, bu dipol momentler rastgele yönelmiş durumdadır ve polarizasyon oluşmaz. Düzenli yönelim yalnızca kalıcı dipol momentlere sahip olan maddelerde gerçekleşir. Yönelim polarizasyonu kalıcı momentlerin uygulanan alanın yönünde hizalanmasından kaynaklanır. Bu hizalama (dönüşüm) eğilimi atomların termal titreşimleri tarafından engellenir ve böylece sıcaklık arttıkça polarizasyon azalır. Yönelim polarizasyon mikrodalga bölgesine düşen frekans aralığında meydana gelir. Bu bölgede, enerji alan yahut veren dipollerin yönelim polarizasyonu oldukça uzun bir zamanda gerçekleşir. Bu

gerçekleşme zamanını belirleyen temel faktörler, moleküllerin boyutları ve viskoziteleri (iç sürtünme katsayıları) olarak belirlenir. Dielektrik malzemelerde moleküler boyutların ve iç sürtünme katsayılarının büyük olmasından dolayı yönelimli polarizasyon oldukça yavaştır ve durulma tipindeki bir polarizasyon olarak görülür. Ayrıca, yönelimli polarizasyonun en aktif görüldüğü dielektrik maddeler, kendiliğinden kutuplu olan polar maddelerdir (Zengin, 2007; Delipınar, 2013). Bilindiği üzere yönelimli polarizasyonlarda genellikle durulma süreçleri etkin olur. Bu nedenle malzemenin dielektrik özellikleri üzerine yönelimli polarizasyon etkisini daha iyi analiz edebilmek için ‘Debye’ ve ‘Cole-Cole’ durulma modelleri kullanılır.

2.4 Dielektrik Durulma Mekanizmaları

Dielektrik malzemelerde durulma mekanizmaları ‘ τ ’ ile sembolize edilen ve bir malzeme içinde bulunan atom veya moleküllerin mobilitesinin (hareketliliğinin) bir ölçüsü olan “durulma zamanı” ile tanımlanır. Dielektrik malzemelerin içinde bulunan serbest yüklerin uygulanan dış alan etkisiyle hizalanmaları sürecinde meydana gelen iç çarpışmalar, durulma zamanının eksponansiyel olarak azalmasına neden olur. Uygulanan alan malzeme üzerinden kaldırıldığında süreç 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.

Dielektrik Durulma

Dielektrik malzemelerde oluşan her polarizasyon mekanizması bir rezonans veya dielektrik durulma (polarizasyonu oluşturan iyonların durulması) frekansına sahiptir. Rezonans frekans etkisi, kızıl ötesi ve üzeri frekanslarda oluşan atomik ve elektronik polarizasyonda görülür. Dielektrik durulma frekansı ise tamamen yüklerin yönelimini kontrol eden dipol polarizasyonla ilişkilidir. Durulma frekansının altındaki frekanslarda uygulanan elektrik alan, yüklerin alan yönünde hizalanmasına izin verecek kadar yavaş olup dipol polarizasyon kolaylıkla oluşur. Bu durumda dielektrik malzeme içinde oluşan enerji kaybı ihmal edilecek kadar küçüktür. Lakin durulma frekansının üzerindeki frekanslarda uygulanan alan yüklerin polarizasyon oluşturmaya izin verecek kadar yavaş değildir. Bu bölgede polarizasyon uygulanan dış elektrik alana uymakta zorlanır

ve aralarında bir faz farkı oluşur. Bu yüzden durulma frekansının üzerindeki frekanslarda dipolar polarizasyon sistem üzerindeki etkinliğini tamamen kaybeder ve enerji kaybı maksimum seviyeye ulaşır.

Dipolar polarizasyonlarda durulma frekansları etkili olduğu için durulma denklemleri kullanılır. Bu denklemler tek zamanlı durulma gösteren sistemleri ifade eden ‘Debye’ ve ‘Cole-Cole’ durulma modelleri ile çok zamanlı durulmalara karşılık gelen ‘Cole-Davidson’ ve ‘Havriliak-Negami’ durulma modelleridir. Bu tez çalışmasında üretilen numunelerin dielektrik ölçümleri 100 Hz-40 MHz frekans aralığında gerçekleştirildiği için elektrik alan etkisi ile oluşan dipolar polarizasyonlar ‘Debye’ ve ‘Cole-Cole’ durulma modelleriyle uyumlu tek zamanlı durulma sergiledi. Bu nedenle dielektrik durulmaları açıklamakta, ‘Debye’ ve ‘Cole-Cole’ durulma modelleri kullanıldı (Zengin, 2007; Feldman vd., 2006; Delipınar, 2013).

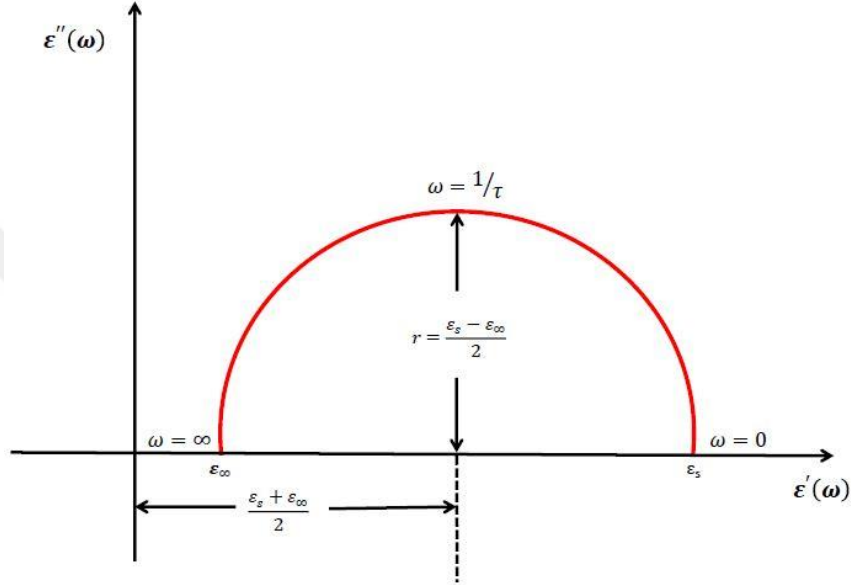
Debye Durulma Modeli

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). Bir dielektrik madde için karmaşık dielektrik sabit ifadesi Denklem (2.11)’ de verilmiştir. Buna ilaveten dielektrik sabitin Debye eşitliği, Denklem 2.22’ de verilmiştir.

Cole-Cole Durulma Modeli

Dielektrik maddelerin geçirgenlik, dielektrik kayıplar gibi karakteristik özelliklerini belirlemek için frekansa ve sıcaklığa bağlı bazı ölçümlerin yapılması gerekir. Dielektrik özellikleri belirleyen ölçümlerin daha doğru analiz edilebilmesi noktasında frekans değişimine bağlı olarak çizilen düzlem çizgilerinin önemi büyüktür. Bu anlamda

dielektrik malzemede yük depolama ve enerji kayıplarının bir ölçüsü olan karmaşık dielektrik sabitin sanal kısmının gerçek kısmına karşılık ($\varepsilon''-\varepsilon'$) aynı kartezyen koordinat sistemi üzerinde çizilen düzlem çizgilerinin grafiği en etkili yaklaşımdır. Bu grafik sayesinde malzemenin yük depolama ve enerji kaybı net bir şekilde görülür. Aslında bu grafik literatürde argand çizimi (karmaşık sayıların grafik gösterimi) olarak bilinmekte olup, ilk defa Cole ve Cole tarafından gerçekleştirildiği için Cole-Cole diyagramı olarak da bilinmektedir (Cole ve Cole, 1941; Daniel, 1967).

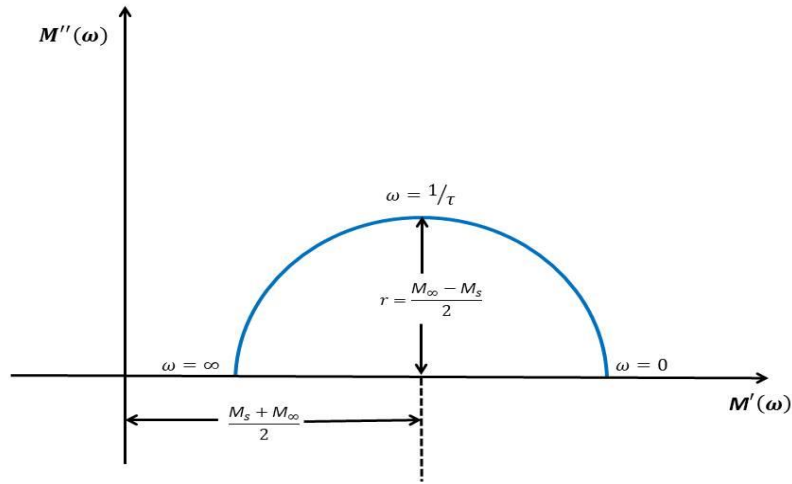


Şekil 2.2. Tek durulma zamanlı karmaşık dielektrik sabit için Cole-Cole diyagramı

Bir dielektrik malzeme, merkezinin yatay eksenine $\varepsilon'' = 0$ üzerinde duran ve kayıp faktörünün tepe değeri $1/\tau'$ da meydana gelen yarı dairesel görünecek tek bir durulma frekansına sahiptir. Birden fazla durulma frekansına sahip malzemelerde ise Cole-Cole düzlem çizgileri simetrik veya merkezinin yatay ekseninin $\varepsilon'' = 0$ altında kalacağı simetrik olmayan bir yay oluşturur. Yani merkezi yatay ekseninde bulunan bir yarı daire oluşur. Ayrıca dielektrik sabitin sanal kısmının maksimum değeri bu yarıçapa eşit olur ve frekans eğri üzerinde saat yönünün tersine hareket eder (Zengin, 2007; Delipınar, 2013).

Eğer bir dielektrik malzeme, çoklu durulma frekansına sahip ise merkezi $\varepsilon'' = 0$ ekseninin altında kalan, yarıçapı $r = \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{2}$ olan bir yarı daire veya bir ark (yay) oluşturma eğilimindedir. Ayrıca dielektrik sabitin sanal kısmının maksimum değeri bu yarıçapa eşit olur ve frekans eğri üzerinde saat yönünün tersine hareket eder. Benzer

durumlar karmaşık elektrik modül ve empedans için de geçerlidir (Zengin, 2007; Tsangaris vd., 1998).



Şekil 2.3. Tek durulma zamanlı karmaşık elektrik modül için Cole-Cole diyagramı

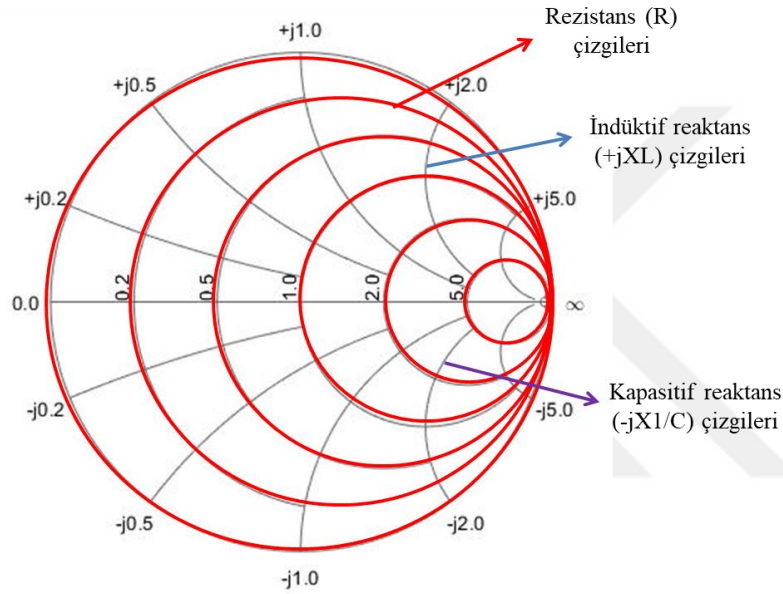
Diğer taraftan malzeme tek bir durulma frekansına sahip ise, Cole-Cole diyagramı Debye durulma modeline indirgenir. Aslında bir malzemenin Cole-Cole düzlem çizgileri, Debye durulma modelinin karmaşık düzlemdeki ark şekli ile genelleştirilmiş halidir. Bu durum Denklem (2.13)' de verilmişti. Denklem (2.13)' deki α , sıcaklığa bağlı bir parametre olup sıfıra eşit olması durumunda ($\alpha = 0$) bu eşitlik Debye durulma modeline indirgenir.

Smith-Chart Diyagramı

Smith-Chart (Smith Abağı) 1939'da P.H. Smith tarafından geliştirilen bir grafik hesaplama aracıdır. Bu grafik iletim hattı parametrelerinin değerlendirilmesini büyük ölçüde basitleştirir. Smith Abağı mikrodalga elektroniğinde sık sık karşımıza çıkan iletim hattı ve karmaşık empedans problemlerinin çözümünde kullanılan en güçlü yöntemlerden biridir. Mikrodalga elektroniğinde empedans uyumunun sağlanması son derece önemlidir. Bu uyum Smith Abağı kullanılarak çok basit bir şekilde sağlanabilir.

Mikrodalga devrelerde bir hattın sonuna eklenen yükün empedansı hattın empedansına uymazsa veyahut da uç uca eklenen iki hattın empedans değerleri birbirlerine uymazsa

bu durumda gelen enerjinin bir kısmı soğurulurken bir kısmı da yansımaya uğrar. Oysaki mikrodalga devrelerde bilginin yani enerjinin kayıpsız olarak iletimi esastır. Herhangi bir devrede tek bir frekans değeri için hat empedansın mikrodalga devresine sıfır yansıma ile mükemmel uyumu sağlanabilir. Lakin birçok devrede empedans uyumunun sadece bir tek frekans değerinde değil belli bir frekans aralığında etkili olması istenir. Belli bir frekans aralığı seçildiği durumda ise yük empedansı ile hat empedansının uyum sağlaması oldukça zordur. Bu durumda devre empedansının hesaplanması için kullanılacak en faydalı ve kolay yöntem Smith Abağıdır.



Şekil 2.4. Smith-Chart diyagramı

Herhangi bir elektronik devrede iletim hattının karmaşık empedansı (Z^*) hem gerçek hem de sanal bileşeni olmak üzere $Z^* = R \pm jX$ şeklinde tanımlanır. Burada 'R' ve 'X' sırasıyla devrenin rezistans ve reaktansını ifade eder. Karmaşık empedansın rezistansı $Z_R = R$ olarak verilir. Diğer taraftan karmaşık empedansın reaktansı ise iki şekilde sunulur. Eğer reaktans '-jX' ile tanımlanmış ise devrenin kapasitansını ($Z_C = -j(1/\omega C)$), '+jX' ile tanımlanmış ise devrenin indüktansını ($Z_L = j(\omega L)$) ifade eder. Dolayısıyla devredeki karmaşık empedansı tanımlayan Smith Abağı rezistans ve reaktans çizgilerinden meydana gelir. Smith Abağındaki rezistans koordinatları grafiğin yatay merkez çizgisinin sağ ucuna teğet olmak üzere bir dizi dairelerden oluşur. Bu teğetlik noktasına ortak nokta veya sonsuzluk noktası denir. Teğet olan her daire sabit bir direnç (R) değerini temsil eder. Smith Abağındaki en büyük daire sıfır sabit değerine karşılık

gelir. Diğer taraftan en küçük daire ise en yüksek direnç değerini temsil eder. Aşağıın üst yarısı, indüktif reaktans ($+jXL$) için koordinatlar içerir ve böylece her bir kavis yukarı doğru kıvrılarak sabit bir endüktif reaktansı temsil eder. Aşağıın alt yarısı ise kapasitif reaktans ($-jX/C$) için koordinatlar içerir ve her bir ark eğrisi geriye doğru sabit bir kapasitif reaktansa karşılık gelir. Dolayısıyla Smith Chart diyagramındaki çiziler mikrodalga bölgedeki bir RC veya RL devresine karşılık gelirler. Bu bağlamda bir malzemenin iletim mekanizması hakkında en detaylı bilgiyi veren karmaşık dielektrik sabit, elektrik modül ve empedansının Cole-Cole çizgilerinin oluşması yani düzlem çizgilerinin yarım daire oluşturması Smith Chart diyagramındaki bir elektriksel devreye karşılık gelir. O halde bir malzemenin Cole-Cole çizgileri mikrodalga bölgedeki bir RC veya RL devresini temsil eder. Karmaşık dielektrik sabit, elektrik modül ve empedansının Cole-Cole çizgilerinin maksimum olduğu nokta dielektrik durulmanın olduğu noktadır. Dolayısıyla bu bölgede direnç en küçük değerini alır; hatta sıfırdır. Cole-Cole çizgilerinin ϵ'' - ϵ' , M'' - M' ve Z'' - Z' koordinatlarının yatay eksenlerini kestiği noktalarda direnç sıfır ve sonsuz değerindedir (Smith, 1939; Caspers, 2012; Malisuwan ve Sivaraks, 2013).

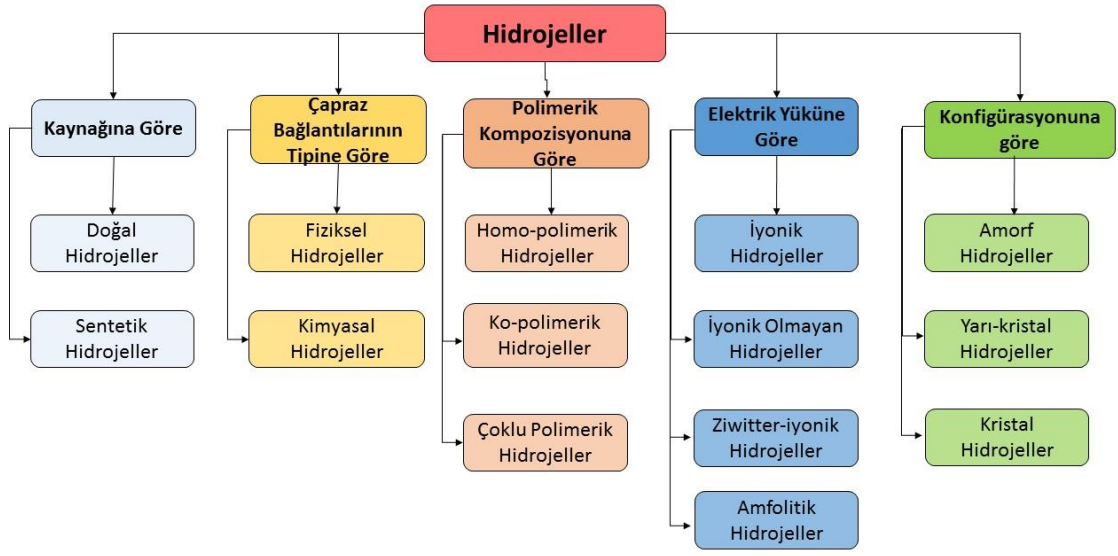
BÖLÜM III

DENEYSEL KISIM

3.1 Saf Hidrojellerin Sentezlenmesi

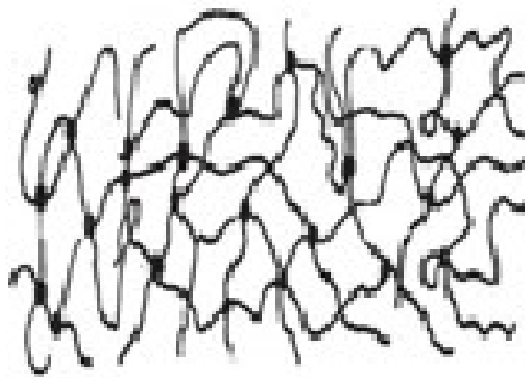
Hidrojeller çok farklı yöntemler kullanılarak sentezlenebilmektedir. Burada önemli olan kullanılan yöntemden ziyade sentezlenen hidrojellerin teknolojik uygulamalarda önem arz edecek işlevsel özelliklerinin bulunmasıdır. Bu bağlamda sentezlenen ideal bir hidrojelde beklenen işlevsel özellikler şöyle ifade edilebilir (Ahmed, 2015; Zohuriaan-Mehr ve Kabiri, 2008; Almdal vd., 1993). Bir jel içinde en yüksek absorpsiyon kapasitesine sahip olması, uygulama gereksinimine bağlı olarak (tercih edilen parçacık boyutuna ve gözeneğe sahip) istenen emilim hızına sahip olması, yük altında en yüksek emme kapasitesine sahip olması gerekir. Ayrıca ideal bir hidrojin en düşük çözünür içerik ve artık monomer yapıya sahip olması, en düşük fiyat, şişme ortamında ve depolama sırasında en yüksek dayanıklılık ve kararlılık, parçalanmayı takiben toksik türlerin oluşumu olmadan en yüksek biyolojik bozunabilirlik, suda şişme sonrası pH-nötrallığı (tarafsızlığı), renksiz, kokusuz ve toksik olmayan bir madde olması ve foto kararlılığının olması beklenir.

Açıkçası herhangi bir yöntem kullanılarak sentezlenen hidrojellerin, yukarıda belirtilen tüm özelliklere aynı anda sahip olması olanaksızdır. Hidrojel sentezlemede farklı yöntemlerin kullanılmasının temel nedeni, yukarıda verilen özellikler içerisinde daha fazlasını kapsayan ideale yakın hidrojeller sentezleyebilmektir. Hidrojeler genel olarak beş ana grupta toplanır. Bunlar aşağıdaki Şekil 3.1' de verildiği gibi kaynağına, çapraz bağlantılarının tipine, polimerik kompozisyonuna, elektrik yüküne ve konfigürasyonuna göre gruplandırılır. Kaynağına göre doğal ve sentetik hidrojeller. Çapraz bağlantılarının tipine göre fiziksel ve kimyasal hidrojeller. Polimerik kompozisyonuna göre homo, ko ve çoklu polimerik hidrojeller. Elektrik yüküne göre iyonik, iyonik olmayan, zwitter-iyonik ve amfolitik hidrojeller. Konfigürasyonuna göre ise amorf, yarı-kristal ve kristal hidrojeller (Ahmed, 2015; Zhao vd., 2013; Lizawa vd., 2007; Yang vd., 2002; Maolin vd., 2000; Hennink ve Nostrum, 2002).



Şekil 3.1. Hidrojellerin sınıflandırılmasının şematik gösterimi

Hidrojellerin en önemli özelliği sıvı ortamlarda şişebilme kapasitesidir. Şişme kapasitesini artırmak için reaksiyon karışımının içerisine bir de monomer dahil edilmesi gerekir. Hidrojellerin sentezlenmesinde kullanılan monomerler, normal polimer oluşum sıcaklığında genellikle katıdır. Bu yüzden hidrojel polimerlerin sentezlenebilmesi için sentezleme süreci boyunca bir sıvı çözeltiliye mutlak ihtiyaç vardır. Sentezlenen hidrojellerin özelliklerini hangi sıvı çözeltide üretildiği ve hangi koşullar altında üretildiği belirler.

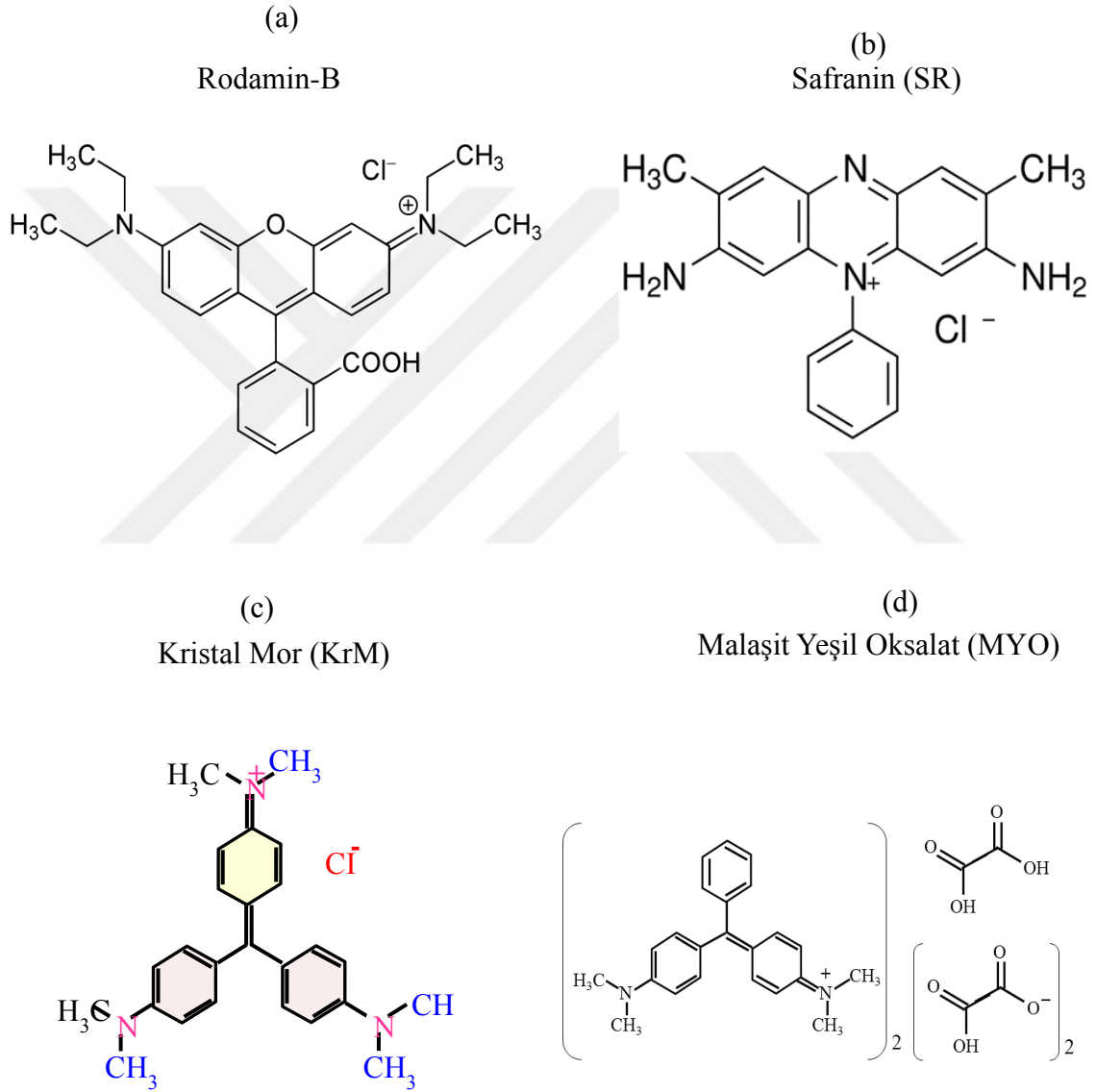


Şekil 3.2. Saf hidrojinin şematik gösterimi

Bu tezde, hidrojel sentezlemede en çok kullanılan ve aynı zamanda en kolay sentezleme tekniği olan radikalit katılma polimerizasyon yöntemi tercih edildi. Bu amaçla, çapraz

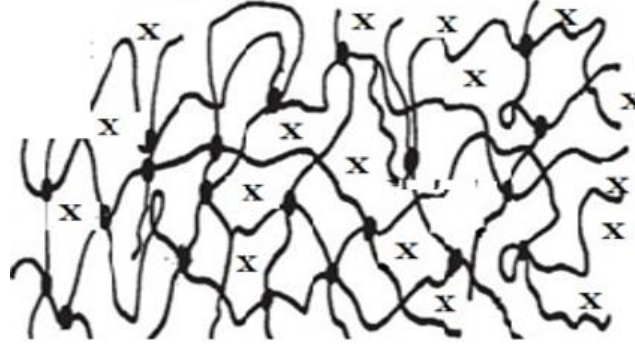
bağlayıcı olarak N, N'-metilenbis akrilamid (MBAAm), başlatıcı olarak potasyum peroksodisülfat ve monomer olarak da 2-akrilamido-2-metilpropan sülfonik asit (AMPS), itakonik asit (IA) kullanılarak poli (AMPS-ko-IA) çapraz bağlı hidrojel sentezlendi ve tez çalışmasında kullanıldı. Sentezlenen hidrojellerin şematik gösterimi Şekil 3.2' de verildi.

3.2 Bazı Metal ve Boya İyonlarının Hidrojellere Yüklenmesi



Şekil 3.3. Rodamin-B (RB) (a), Safranin (SR) (b), Kristal Mor (KrM) (c) ve Malaşit Yeşil Oksalat (MYO) (c) iyonik boya iyonlarının kimyasal yapısının şematik gösterimi (Chan vd., 2013; Blaji vd., 2011; Sartepe vd., 2017; Öztürk vd., 2018)

$$X = \left\{ \begin{array}{l} \text{RB, SR, KrM, MYO,} \\ \text{Ag}^{+1}, \text{Co}^{+2}, \text{Cr}^{+3}, \text{Mn}^{+2}, \text{Ni}^{+2} \end{array} \right\}$$



Şekil 3.4. RB, SR, KrM, MYO boya ve Ag^{+1} , Co^{+2} , Cr^{+3} , Mn^{+2} , Ni^{+2} metal iyonları katkılı hidrojellerin şematik gösterimi

Bu aşamada öncelikle 100 cm^3 lük erlenler içerisine farklı derişimlerde (konsantrasyonlarda) pH' ları = 5,0 olan iyon ya da boya çözeltilerinden 30 cm^3 kondu. Daha sonra bu erlenlere üretilen hidrojellerden 0,1 gram eklendi. Bundan sonra da ağızları sıkı bir tıpa vasıtasıyla kapatıldı. Hazırlanmış bu karışım, iyonların ve boya moleküllerinin hidrojel kanalları içinde homojen olarak dağılması için $25 \text{ }^\circ\text{C}$ ' ye ayarlanmış çalkalayıcıya yerleştirilerek 24 saat boyunca çalkalandı. Çalkalama işlemi bittikten sonra bir süre bekletildi. Bu süre sonunda iyon yüklenmiş hidrojeller erlenlerden alınarak saf su ile yıkandı. Yıkama sürecinde yıkama suyu birkaç kez değiştirildi. Daha sonra $55 \text{ }^\circ\text{C}$ ' de etüvde sabit tartıma gelinceye kadar kurutuldu. Katkılanmış hidrojellerin şematik gösterimi Şekil 3.4' de verildi.

3.3 Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM)

İnsan gözünün görme kabiliyeti sınırlı olduğundan gözün göremediği küçük ayrıntıları görülebilmek için elektronik ve optik cihazlar geliştirilmiştir. Geliştirilen bu cihazlar arasında en önemlilerinden biri çok küçük bir bölgeye odaklanabilen yüksek enerjili elektronların yüzeyi taraması düsturuyla çalışan Taramalı Elektron Mikroskobu (Scanning Electron Microscope) cihazıdır (Karakoç vd., 2016).

Taramalı Elektron Mikroskobu 1930' lu yılların hemen başında Manfred von Ardenne' nin liderliğindeki bir araştırma grubu tarafından geliştirilmiştir. Ticari olarak ilk defa

1965' te kullanılmaya başlanan SEM görüntüsü yüksek voltajla hızlandırılmış elektronların örnek üzerine odaklanması ve bu elektron demetinin örnek yüzeyinde taratılması sürecinde elektron/örnek atomları arasındaki etkilerin uygun algılayıcılarda toplanması ve sinyal güçlendiricilerinden geçirildikten sonra bir katot ışınları tüpünün ekranına aktarılmasıyla elde edilmiştir (Ateş, 2012).

Optik kolon, numune hücresi ve görüntüleme sistemi olmak üzere üç ana bölümden oluşan SEM, birçok dalda araştırma çalışmalarında kullanımının yanında sanayinin değişik kollarında hata analizlerinde, mikro elektronikte yonga üretiminde ve biyolojik/tıbbi uygulamalarda kullanılmaktadır.

3.4 Optik Mikroskobu (OM)

Optik Mikroskop ile (OM) görüntüleme yönteminde, parçacıklar ve bu parçacıklara merceklerle odaklanabilme en önemli adımdır. Mercekler vasıtasıyla parçacıklara odaklanan ışık demeti, yansımaya uğradıktan sonra optik tüp kanalıyla okurlara ulaşır ve akabinde okurlarda görüntü oluşur. Okurlarda oluşan görüntünün büyüklüğünü, cisimlere odaklanan objektifler belirler (Karakoç vd., 2016).

OM yapısında tabana oturan taşıyıcı ayaklı gövde, hassas bir ayarla farklı yönlere hareket ettirilebilen bir nesne sehпасı bulmaktadır. Ayrıca bu nesne sehпасı kontrol kolları vasıtasıyla yatay ve dikey olarak hareket edebilmektedir. Dikey olarak hareket ettirilebilecek durumda olan optik tüp üst kısımdaki gövdeye bağlıdır. Gövdeye bağlı olan optik tüpün en üst kısmında görüntünün oluştuğu okular bulunmaktadır. Ayrıca bu tüpün en alt kısmında ise görüntünün oluşmasını sağlayan farklı ölçeklerdeki objektifler ile aydınlatma sistemi birbiri içinde yer alır. Optik mikroskoplarda herbiri farklı farklı büyütme etkisine sahip olan birden fazla objektifler ve okular bulunmaktadır. Optik mikroskoplarda bu çok sayıdaki objektif ve okular vasıtasıyla gerekli büyütme sağlanır.

OM ile uygun nesnelere yaklaşık 2000 katına kadar büyütülebilmektedir. Böylece bu tür mikroskoblarda erişilebilen maksimum ayırma gücü $d= 0,25 \mu m$ dir. Daha yüksek büyütme de mümkün olmasına rağmen bu işlem ayırma gücünde hiçbir kazanç getirmemektedir. Böyle bir durumda görüntü yalnızca detay göstermeden büyümektedir. Mikroskopik nesnelere spektrumun görünür bölgesindeki ışığı emme yeteneklerine göre ikiye ayrılır ve böylece optik mikroskopların konstrüksiyonunda iki

temel tip görülür. Transmisyon türü optik mikroskobu saydam malzemelerde tercih edilmektedir. Bu tip mikroskoblar gelen ışığın bir kısmını inceleme yapılabilecek şekilde içlerinden geçirebilmektedirler. Saydam maddelerde alttan gelen ışık nesnenin içinden geçerek üst kısımda bulunan objektiflere ulaşmaktadır. Bu tür mikroskoplar ekseri biyolojik çalışmalarda kullanılmaktadır. Refleksiyon türü optik mikroskop ise saydam olmayan maddelerde tercih edilmektedir. Bu tür mikroskoblar gelen ışığın tamamını emdiği için bunların incelenmesi sadece yansıyan ışığın altında olmaktadır. Bu tip mikroskoplar en çok malzeme inceleme gibi alanlarda kullanılmaktadır (Karakoç vd., 2016).

3.5 Empedans Spektroskopisi (ES)

Malzemelerin yük iletim mekanizması hakkında ayrıntılı bilgi edinmek için kullanılan yöntemlerden birisi de Empedans Spektroskopisidir. Empedans spektroskopisi olarak bilinen ac ölçümler malzemenin elektriksel karakterizasyonunda en etkili tekniktir. Malzemelerin elektriksel özelliklerinin frekansın bir fonksiyonu olarak ölçülmesi esasına dayanan Empedans Spektroskopisi metodunda, mümkün olduğu kadar küçük genlikli bir ac sinyali elektrotlar vasıtasıyla malzeme üzerine uygulanarak kapasitans ve kayıp faktörü ölçülür.

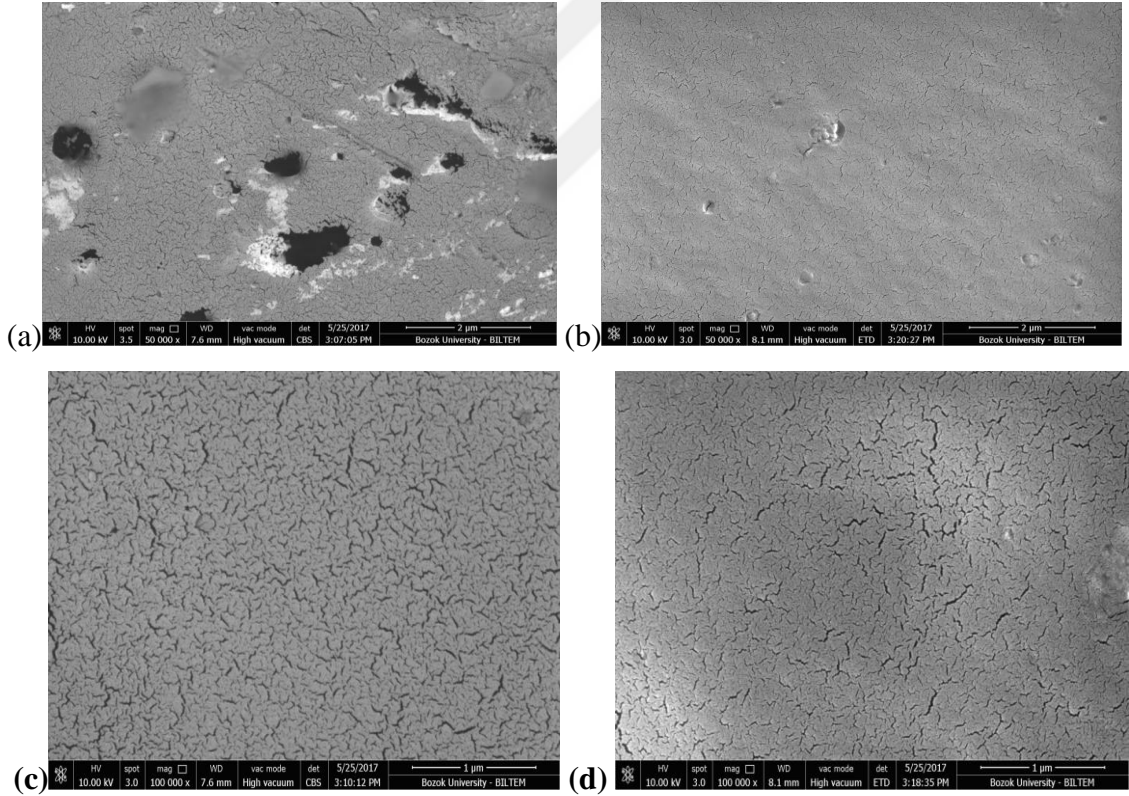
Empedans Spektroskopisi metodu ile geniş bir frekans aralığında kapasitans ve kayıp faktörü ölçüldükten sonra dielektrik sabitin gerçel ve sanal kısımları, iletkenlik, yüzey öz direnci, modulus, empedansın gerçel ve sanal kısımları v.b. gibi parametreler ölçülen kapasitans ve kayıp faktörü değerlerinden hesaplanabilir. Dolayısıyla Empedans Spektroskopisi yöntemiyle malzemelerin yük iletim mekanizması, kimyasal reaksiyon mekanizması, dipol davranışları ve dielektrik sabiti hakkında bilgi edinmek mümkündür (Macdonald, 1992; Çınar, 2015).

BÖLÜM IV

DENEYSEL SONUÇLAR VE TARTIŞMA

4.1 Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) Analizi

Taramalı elektron mikroskobu analizi hidrojellerin gözenek geometrisi, boyutu ve ağının homojenliği/heterojenliği hakkında bilgi verir (Ferreira vd., 2006). Boya katkılı hidrojellerin gözenek geometrisini, boyutunu ve ağının homojenliği/heterojenliğini incelemek amacıyla Fotoğraf 4.1’ de 50.000X büyütülmüş saf hidrojelin (a), ve 50.000X büyütülmüş 100 mg/L malaşit yeşil oksalat yüklü hidrojelin (b), 100.000X büyütülmüş saf hidrojelin ve 100.000X büyütülmüş 100 mg/L malaşit yeşil oksalat (MYO) yüklü hidrojelin yüzeyinin SEM görüntüsü gösterildi.

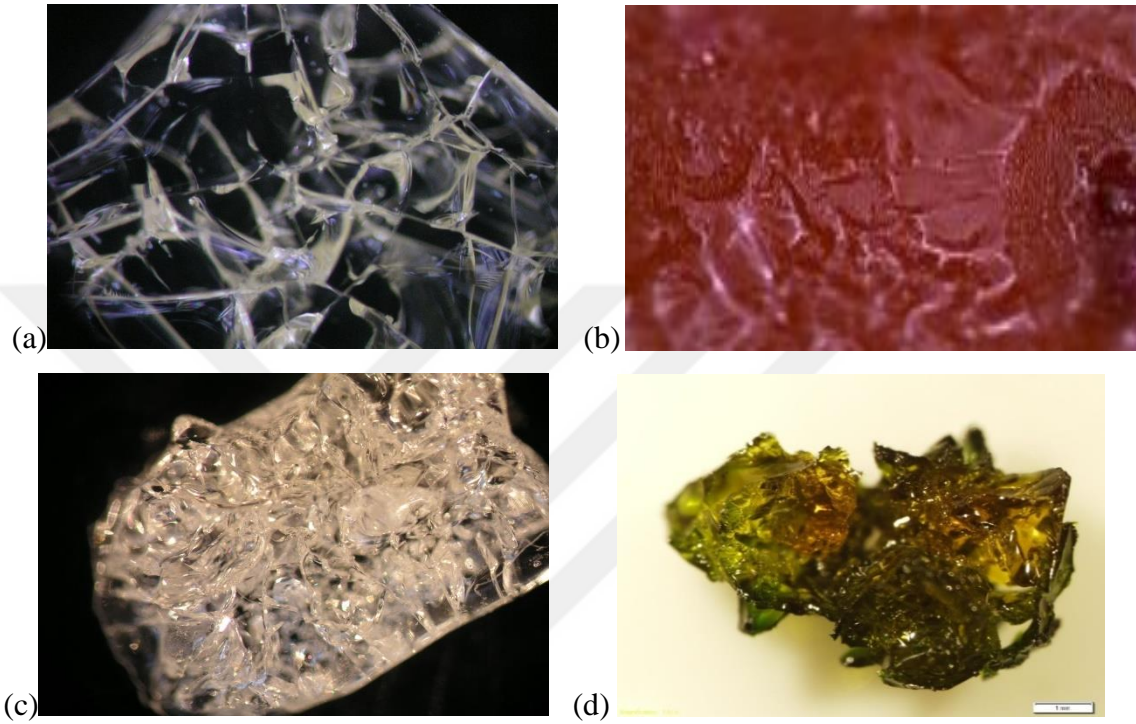


Fotoğraf 4.1. Saf (50.000X) (a), 100 mg/L malaşit yeşil oksalat boya katkılı (50.000X) (b), saf (100.000X) (c) ve 100 mg/L malaşit yeşil oksalat boya katkılı (100.000X) (d) hidrojellin SEM görüntüsü (Bozok Üniversitesi Bilim ve Teknoloji Uygulama ve Araştırma Merkezi)

Fotoğraf 4.1a' da saf hidrojellerin yaklaşık 1 µm boyutlarda ve farklı geometrilere düzensiz gözeneklerle kaplı olduğu belirlendi. Saf hidrojellerin bazı bölgelerinde sentezlemede kullanılan sıvının etkisinden kaynaklanan topaklanmaların olduğu tespit edildi. Diğer taraftan Fotoğraf 4.1b' de 100 mg/L malaşit yeşil oksalat katkılı hidrojellerin hemen hemen pürüzsüz bir yüzeye sahip olduğu gözlemlendi. Katkılanan iyonik boyanın adeta ince bir cilt gibi hidrojeli kapladığı tespit edildi. Fotoğraf 4.1c' de saf hidrojelin hidrojel kanallarından kaynaklanan boşluklar olduğu saptandı. Diğer taraftan Fotoğraf 4.1d' de ise yüklenen malaşit yeşil oksalat boyanın hidrojelin kanallarını ve yüzeyde oluşan boşluklarını homojen bir şekilde dağıtarak doldurduğu belirlendi. Numunelerin 2 µm ölçekli SEM görüntüsünde boya iyonlarındaki topaklanmaya bağlı olarak homojenliğini bölgesel olarak kaybettiği ve bu durumun iletim mekanizmasını olumsuz yönde etkilediği sonucuna varıldı. Ayrıca bu bölgede boya iyonları ile hidrojelin hidroksil grupları arasında güçlü bir etkileşimin olduğu ve buna bağlı olarak da dielektrik sabitin yüksek değerler alacağı öngörüldü (Maji ve Choudhary, 2017; Singh vd., 2017). Ayrıca bu tez çalışmasında kullanılan rodamin-b, safranin ve kristal mor iyonik boya katkılı hidrojellerinde, malaşit yeşil oksalat katkılı hidrojellere benzer SEM görüntüleri sergiledikleri gözlemlendi. Burada detay bir örnek olması açısından farklı ölçekte saf hidrojelin ve MYO katkılı hidrojelin SEM görüntüleri verildi.

4.2 Optik Mikroskobu Analizi

Hidrojellerin içyapısını araştırmak ve anlamak için optik mikroskop tekniği kullanıldı. Saf (a), 50 mg/L rodamin-b (b), 100 mg/L safranin (c) ve 100 mg/L kristal mor (d) boya yüklü hidrojellerin optik mikroskop (50X) görüntüleri Fotoğraf 4.2' de gösterildi.



Fotoğraf 4.2. Saf (a), 50 mg/L rodamin-b (b), 100 mg/L safranin boya (c) ve 100 mg/L kristal mor boya katkılı (d) hidrojellerin Optik Mikroskop (50X) görüntüsü (Bozok Üniversitesi, Yarı iletken fiziği ve nanoteknoloji laboratuvarı)

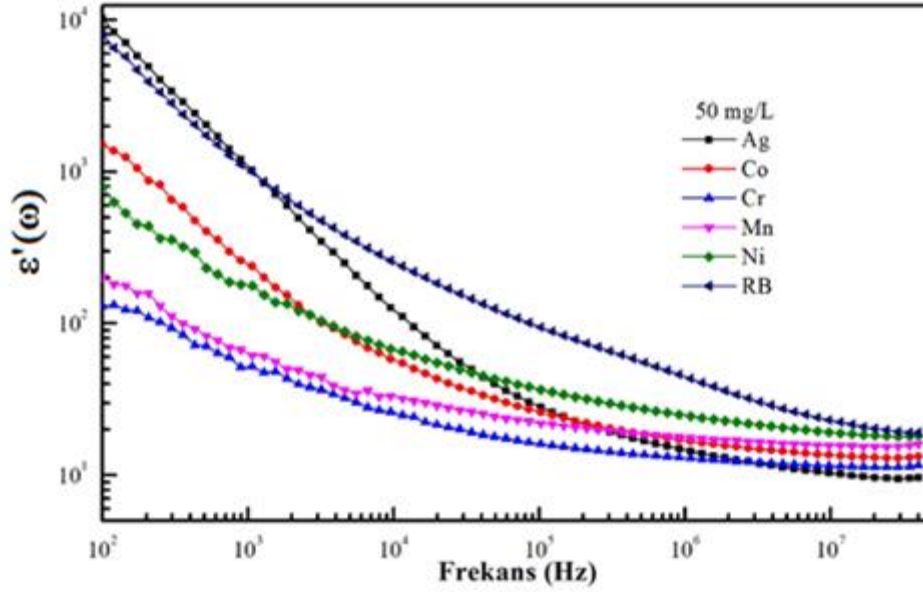
Hidrojel kanalları içinde iyonik boya iyonlarının homojen olarak dağılıp dağılmadığını anlamının en iyi yolu optik mikroskop yöntemi olduğu tespit edildi. Saf hidrojinin optik görüntüsü incelendiğinde, on mikrometre kadar uzanan gözenek açıklıkları olan açık bir makro gözenekli bal peteği benzeri yapılar olduğu belirlendi. Boya iyonları katkılanmış hidrojellerin gözenek açıklıklarının boya ile dolarak tamamen kapandığı tespit edildi. Diğer taraftan boya yüklü tüm hidrojellerin farklı renkler aldığı görüldü. Boya iyonu katkılı hidrojellerde ışık oklüzyonuna neden olan koyu lekelerin kuvvetle muhtemel görüntüleme düzleminde daha düşük düzlemlerde bulunan boya topaklarından kaynaklandığı belirlendi. Ayrıca boya iyonlarının topaklanma oluşturması, tamamen boyaların vizkozitesi ile alakalı olduğu tespit edildi. İyonik boya katkılı numunelerdeki vizkoelastik değişimin faz açısı ve buna bağlı olarak da tanjant faktöründe artan

frekansla birlikte bir tepe değerine sahip olacağı sonucuna varıldı. Ayrıca bu tepe değerine karşılık gelen frekans aralığında dielektrik malzemelerin iletim mekanizmaları hakkında en doğru bilgiyi veren karmaşık elektrik modülün sanal kısmında bir tepe değerine sahip olacağı öngörüldü (Tummala vd., 2017).

4.3 Metal ve Rodamin-B (RB) Katkılı Hidrojellerin Empedans Spektroskopi Analizi

Aynı derişimde (50 mg/L) Ag^{+1} , Co^{+2} , Cr^{+3} , Mn^{+2} , Ni^{+2} metal ve RB boya iyonları katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitin gerçek kısmı, dielektrik sabitin sanal kısmı, tanjant faktörü, rezistansı, reaktans, empedans, faz açısı, karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmı, elektrik modülünün sanal kısmı, elektrik modülünün düzlem çizgileri, kapasitans, yüzey özdirenci, karmaşık iyonik iletkenliğinin gerçek kısmı ve iyonik iletkenliğinin sanal kısmının frekansla gelişimleri sırasıyla Şekil 4.1, Şekil 4.2, Şekil 4.3, Şekil 4.4, 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 ve Şekil 4.14' de verildi. İyon katkılı bu hidrojellerin frekansla gelişimine etki eden dielektrik mekanizmaları düşük ve yüksek frekans bölgeleri başta olmak üzere önemli frekans değerlerinde detaylıca incelendi. Bu malzemelerin biyosensör, entegre devreler ve kapasitif özellikler gibi opto-elektronik davranışlarının hangi şartlar altında olacağı belirlendi.

Ag^{+1} , Co^{+2} , Cr^{+3} , Mn^{+2} , Ni^{+2} metal ve RB boya iyonları katkılı (50 mg/L) hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitin gerçek kısmının ($\epsilon'(\omega)$) frekansla gelişimine ait deneysel sonuçlar Şekil 4.1' de gösterildi. Metal ve boya iyonları katkılı hidrojellerin frekansa bağlı $\epsilon'(\omega)$ değeri 100 Hz–40 MHz aralığında incelendi. Bu hidrojellerin $\epsilon'(\omega)$ değerinin artan frekansla birlikte üstel olarak azaldığı gösterildi. Genel olarak düşük frekans bölgesinde $\epsilon'(\omega)$ daha yüksek, yüksek frekans bölgesinde ise daha düşük değerler aldığı görüldü. Burada Ag^{+1} metal ve RB boya iyonları katkılı hidrojellerin birbiriyle, Co^{+2} ve Ni^{+2} metal iyonları katkılı hidrojellerin birbiriyle, Cr^{+3} ve Mn^{+2} metal iyonları katkılı hidrojellerin de birbiriyle $\epsilon'(\omega)$ değerleri açısından benzer davranışta olduğu tespit edildi. 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans aralığındaki derişime bağlı dalgalı davranışın, metal/boya iyonları ile hidrojellerin bantları arasındaki etkileşimden kaynaklandığı belirlendi.



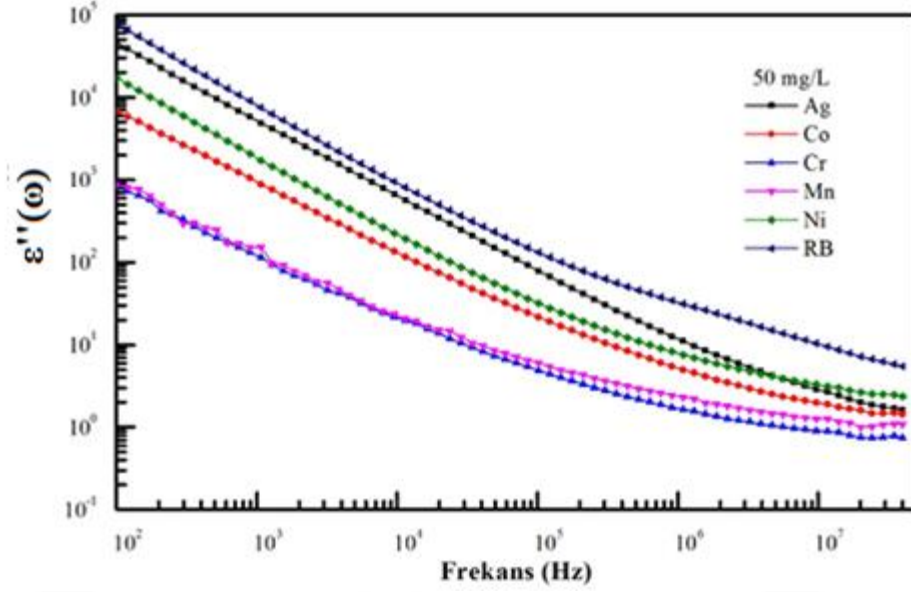
Şekil 4.1. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin gerçek kısmının frekansla değişimi

Düşük frekans bölgesinde, Ag^+ metal ve RB boya iyonları katkılı hidrojellerin $\epsilon'(\omega)$ değerinin diğer metal iyonları katkılı hidrojellere kıyasla daha büyük değerler aldığı belirlendi. Bu bölgede $\epsilon'(\omega)$ ' nün en düşük değerlerinin Cr^{+3} ve Mn^{+2} iyon katkılı hidrojellere ait olduğu bulundu. Yüksek frekans bölgesinde ise RB boya iyonu katkılı hidrojellerin $\epsilon'(\omega)$ değerinin, metal iyonları katkılı hidrojellere kıyasla daha büyük değerler aldığı tespit edildi. Buna rağmen yüksek frekans bölgesinde bütün numunelerin $\epsilon'(\omega)$ değerlerinin benzer davranışlar sergilediği görüldü.

Metal ve boya iyonları katkılanmış hidrojellere bir elektrik alan uygulandığı zaman, elektrot-elektrolit ara yüzeyinde serbest yük taşıyıcıları olan metal ve boya iyonları bir polarizasyon oluşturur (Dutta ve Biswas, 2002; Ramesh vd., 2011; Rajendran vd., 2004; Liew vd., 2012). Düşük frekans bölgesinde $\epsilon'(\omega)$ ' nün yüksek değerler alması, serbest yük taşıyıcılarının ara yüzeyde oluşturduğu polarizasyon etkiden kaynaklandığı belirlendi (Mishra ve Rao, 1998). Yani bu bölgede güçlü boya iyonu dağılımına bağlı olarak yüksek polarizasyonun oluştuğu ve $\epsilon'(\omega)$ ' nün yüksek değerler aldığı saptandı (Singh vd., 2017). Artan frekansla birlikte uygulanan dış elektrik alanın periyodik ters çevrimine bağlı olarak $\epsilon'(\omega)$ değerinin azaldığı tespit edildi. Elektrik alan altındaki periyodik ters çevrim hızlı olmasından dolayı, dipollerin yöneliminin yavaşladığı ve akabinde ara yüzeyde biriken iyon (serbest yük) yoğunluğunun azaldığı belirlendi. Dolayısıyla uygulanan elektrik alan yönünde aşırı metal ve boya iyonu difüzyonunun

yok olduğu ve elektrot polarizasyonun etkinliğini kaybettiği tespit edildi (Ramesh vd., 2011; Rajendran vd., 2004; Liew vd., 2012). Başka bir ifade ile yüksek frekans bölgesinde uygulanan elektrik alanın periyodik ters çevriminin çok hızlı olması nedeniyle, yük taşıyıcıları alan yönünde kendilerini yönlendirmek için yeterli zaman bulamadığı belirlendi. Buna bağlı olarak alan yönünde aşırı iyon difüzyonunun oluşmadığı ve sonuçta $\varepsilon'(\omega)$ değerinin azaldığı tespit edildi (Adachi ve Urakawa, 2002; Xu vd., 2014). Yani yüksek frekans bölgesindeki düşük $\varepsilon'(\omega)$ değerinin alandaki salınımın çok hızlı olmasından ve sistemdeki yük taşıyıcılarının hareketliliğini yöneten zayıf geri yükleme kuvvetinden kaynaklandığı belirlendi. Bu bölgede dipollerin kendilerini alanın yönünde hizalayabilmeleri ve polarizasyona katkı sağlayabilmeleri mümkün olamadığı için $\varepsilon'(\omega)$ ' nün düşük değerler aldığı tespit edildi. Ek olarak, yüksek frekansta düşük $\varepsilon'(\omega)$ değerinin Kroop'un teorisi ve Maxwell-Wagner yaklaşımı ile açıklanabileceği sonucuna varıldı (Maji vd., 2015; Akhtar vd., 2018; Maji ve Choudhary, 2017).

Ag^{+1} , Co^{+2} , Cr^{+3} , Mn^{+2} , Ni^{+2} metal ve RB boya iyonları katkılı (50 mg/L) hidrojenlerin karmaşık dielektrik sabitin sanal kısmının ($\varepsilon''(\omega)$) frekansla değişimine ait deneysel sonuçlar Şekil 4.2' de gösterildi. Bu hidrojenlerin frekansa bağlı $\varepsilon''(\omega)$ değeri 100 Hz – 40 MHz aralığında incelendi. $\varepsilon''(\omega)$ değeri artan frekansla birlikte hemen hemen doğrusal olarak azalmaktadır. Genel olarak düşük frekans bölgesinde $\varepsilon''(\omega)$ daha yüksek, yüksek frekans bölgesinde ise daha düşük değerler aldığı görüldü. Düşük frekans bölgesinde Ag^{+1} metal ve RB boya iyonları katkılı hidrojenlerin birbiriyle, Co^{+2} ve Ni^{+2} metal iyonları katkılı hidrojenlerin birbiriyle, Cr^{+3} ve Mn^{+3} metal iyonları katkılı hidrojenlerin de birbiriyle $\varepsilon''(\omega)$ değerlerinin frekansa bağlı değişimi açısından benzer davranışta olduğu belirlendi.



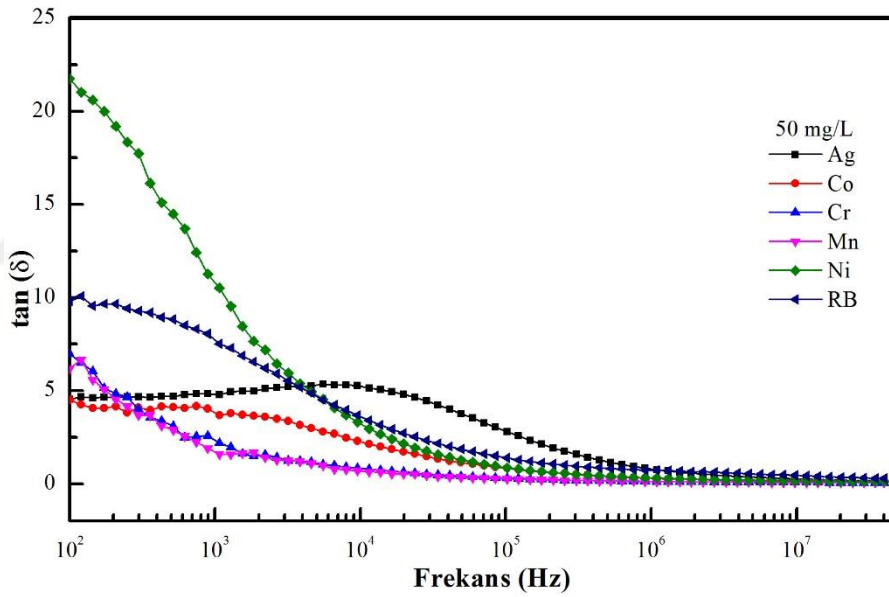
Şekil 4.2. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojenlerin karmaşık dielektrik sabitinin sanal kısmının frekansla değişimi

Bütün frekans değerlerinde RB boya iyonları katkılı hidrojenlerin $\varepsilon''(\omega)$ değerinin diğer metal iyonları katkılı hidrojenlere kıyasla daha büyük değer aldığı tespit edildi. Düşük ve yüksek frekans bölgesinde $\varepsilon''(\omega)$ ' nün en düşük değerleri Cr^{+3} ve Mn^{+2} iyon katkılı hidrojenlere aittir. Buna rağmen yüksek frekans bölgesinde bütün metal iyonu katkılı numunelerin $\varepsilon''(\omega)$ değerlerinin benzer davranışlar sergilediği belirlendi. Düşük frekans bölgesinde serbest yük taşıyıcılarının (metal ve boya iyonların) ara yüzeylerde ve elektrotlarda oluşturduğu polarizasyon nedeniyle metal ve boya iyonu katkılı numunelerin $\varepsilon''(\omega)$ değerlerinin yüksek olduğu tespit edildi (Dutta ve Biswas, 2002; Armstrong vd., 1974; Dyre, 1991). Yine bu bölgede numunelerin $\varepsilon''(\omega)$ değerlerinin yüksek olmasının dielektrik durulma sürecini engelleyen dc iletkenlik katkısından kaynaklandığı belirlendi. Ayrıca boya iyonlarının hidrojel kanallar arasındaki asimetrik atlayışlarının bölgede $\varepsilon''(\omega)$ değerlerinin yüksek olmasını sağlayan dipolar polarizasyona katkı sağladığı tespit edildi (Maji vd., 2015; Akhtar vd., 2018).

Yüksek frekans bölgesinde numunelerin üzerine uygulanan dış elektrik alanın periyodik ters çevriminin hızlı olmasına bağlı olarak oluşan yönelim ve ara yüzey polarizasyonun oluşumunun geciktiği belirlendi. Bu gecikmeye nedeniyle dielektrik durulmanın yaşandığı ve akabinde $\varepsilon''(\omega)$ değerinin giderek azaldığı tespit edildi. Ayrıca Kroop'un teorisi ve Maxwell-Wagner yaklaşımının $\varepsilon''(\omega)$ ' nün yüksek frekans bölgesinde düşük değerler almasında etkin rol oynadığı tespit edildi. Yani bölgede dielektrik durulmaya

bağlı olarak $\varepsilon''(\omega)$ ' nün değeri üzerine dipolar polarizasyon katkının giderek azaldığı belirlendi (Mahmoodi vd., 2012; Xu vd., 2014; Singh vd., 2017).

Şekil 4.3' de Ag^{+1} , Co^{+2} , Cr^{+3} , Mn^{+2} , Ni^{+2} metal ve RB boya iyonları katkılı (50 mg/L) hidrojjelerin tanjant faktörünün (Q-faktörünün) frekansla olan değişimi geniş bir frekans aralığında gösterildi. Genel olarak katkılı numunelerin tanjant faktörünün artan frekansla bir birlikte neredeyse üstel olarak azaldığı görüldü. Bu genel eğilimi Ag^{+} iyonu katkılı hidrojjelerin bozduğu tespit edildi. Genellikle tanjant faktörlerinin düşük frekans bölgesinde yüksek değerler aldığı, yüksek frekans bölgesinde ise bütün numunelerin frekanstan bağımsız davrandığı görüldü. Düşük frekans bölgesinde tanjant faktörünün en düşük değerlerinin Co^{+2} ve en yüksek değerlerinin Ni^{+2} metal iyonu katkılı hidrojjelere ait olduğu tespit edildi.



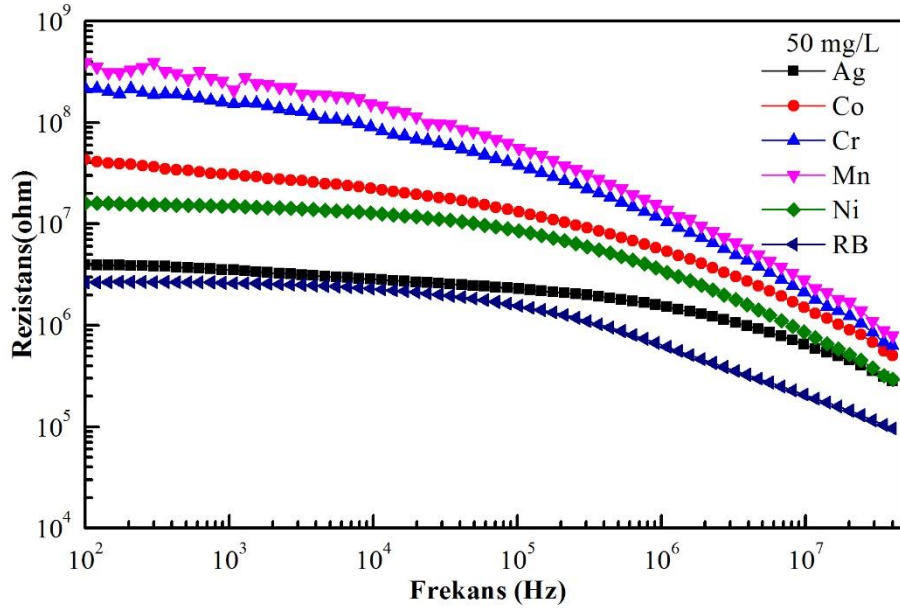
Şekil 4.3. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojjelerin tanjant faktörünün (Q-faktörünün) frekansla değişimi

Düşük frekans bölgesinde ara yüzey ve elektrotlarda oluşan polarizasyon nedeniyle numunelerin tanjant faktörü değerlerinin Ag^{+1} metal iyonu katkılı hidrojjeler hariç yüksek olduğu belirlendi (Dutta vd., 2007; Ram ve Chakrabarti, 2008; Ramesh vd., 2011; Rajendran vd., 2004; Liew vd., 2012). Ag^{+1} metal iyonu katkılı numunelerin tanjant faktörünün orta frekans bölgesinde, frekanstaki salınım bağımlılığına ve rotasyon hareketindeki moleküler titreşimine bağlı olarak bir pik değere sahip olduğu tespit edildi. Bu durum Ag^{+1} metal iyonu katkılı hidrojjelerin durulma zamanının, RB

boya ve diğ er metal iyonu katkı lı hidrojel lere kıyasla daha uzun olacağı na atfedildi. (Singh vd., 2001; Kar ve Choudhary, 2002).

Yüksek frekans bölgesinde dipol/yönelim polarizasyona bağı lı olarak tanjant faktörünün değ erinin giderek azaldığı belirlendi. Bu bölgede polarizasyona neden olan dipollerin uygulanan alan yönünde yeniden yönelme eğ iliminde olduğu göz lendi (Roy vd., 2013; Mansour, 2005; Heikes ve Johnston, 1957; Venkataraju vd., 2010). Bu yönelimin belli bir frekansta (10^6 Hz ve üzeri frekans) sınırlanmasıyla tanjant faktörünün değ erinin azaldığı ve daha sonra bir doygunluğa ulaştığı tespit edildi. Tanjant faktörünün doygunluğa ulaştığı frekansta, metal ve boya iyonu katkı lı hidrojellerin tamamının frekanstan bağı msız davrandığı ve sıfır değ erini aldığı görüldü. Azalan frekansla birlikte frekanstaki salınım bağı mlılığ ına ve rotasyon hareketindeki moleküler titreşimine bağı lı olarak sırasıyla Ag^{+1} , Co^{+2} , RB, Ni^{+2} , Mn^{+2} , Cr^{+3} , metal ve boya iyonları katkı lı hidrojellerin tepe yapma eğ ilimi göz lendi. Ayrıca bu bölgede boya iyonlarının uygulanan dış alan doğ rultusunda hizalanabilecek gerekli zamanı bulamadıkları için numunelerin tanjant faktörünün düşük değ erler aldığı tespit edildi. Yani bu bölgede dielektrik iletim mekanizmasını kontrol eden polarizasyon etkisinin oluş madığı belirlendi (Riaz vd., 2016; Singh vd., 2001; Kar ve Choudhary, 2002; Roy vd., 2013).

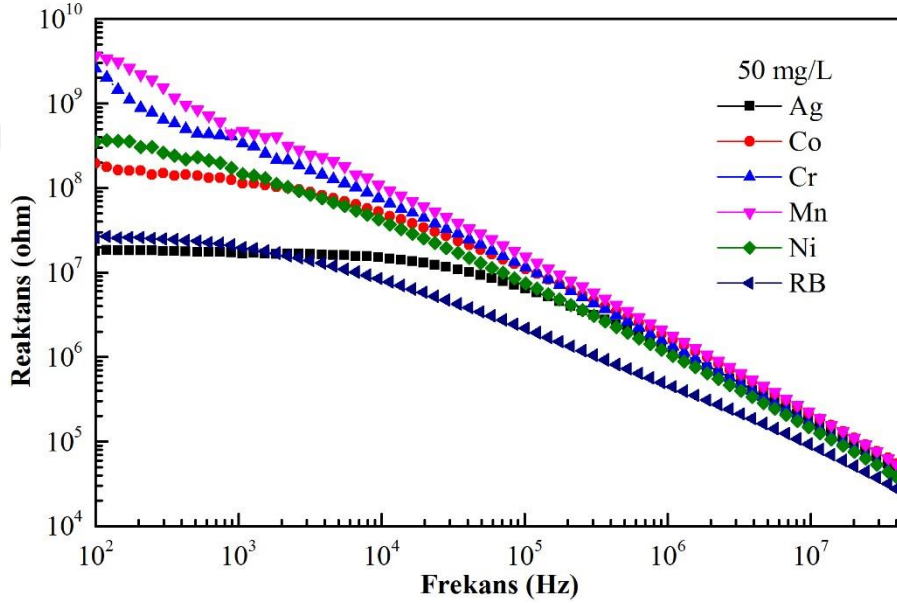
RB boya ve Ag^{+1} , Co^{+2} , Cr^{+3} , Mn^{+2} , Ni^{+2} metal iyonları katkı lı (50 mg/ml) hidrojellerin karmaş ık empedansın gerç ek kısmının (resistansın) frekansla değ iş imi Ş ekil 4.4' de verildi. Bu numunelerin rezistans değ erinin artan frekansla birlikte monotonik (monotonically) bir şekilde azaldığı görüldü. Bu azalış ın, yüksek frekans bölgesinde düşük frekans bölgesine nazarla daha keskin olduğu belirlendi. Düş ük frekans bölgesinde Ag^{+1} metal ve RB boya iyonları katkı lı hidrojellerin birbiriyle, Co^{+2} ve Ni^{+2} metal iyonları katkı lı hidrojellerin birbiriyle, Cr^{+3} ve Mn^{+2} metal iyonları katkı lı hidrojellerin de birbiriyle rezistans değ erlerinin benzer davranış ta olduğu belirlendi. Yüksek frekans bölgesinde ise katkı lı hidrojellerin rezistans değ erleri arasındaki farkın giderek azaldığı ve birbirlerine çok yakın değ erler aldığı tespit edildi.



Şekil 4.4. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojellerin karmaşık empedansının gerçek kısmının (rezistansının) frekansla değişimi

Düşük frekans bölgesinde karışık 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 kaybettiği ve dolayısıyla yüksek kapasitif olgunun kaybolduğu görüldü (Sengwa ve Sankhla 2007b; Padmasree vd., 2006; Saha vd., 2017; Pokhriyal ve Biswas, 2016; Cava vd., 1984; Rao vd., 2006). Gerek düşük frekans bölgesinde gerekse yüksek frekans bölgesinde RB boya iyonları katkılı hidrojelinde daha düşük rezistans değerleri alıyor olması, bu numunenin metal iyonları katkılı hidrojellere kıyasla daha iletken olmasına atfedildi. Ayrıca RB boya iyonlarının hidrojelinde oksijen gruplarıyla etkileşiminin metal iyonlarına kıyasla daha zayıf olduğu belirlendi. Bu zayıf etkileşimlerin boya iyonlarının hidrojel kanalları içinde homojen olarak dağılmasına ve kanallar boyunca boya iyonlarının göçünün (iyon difüzyonunun) rahatlıkla olmasına katkı sağladığı saptandı. Boya iyonlarının hidrojel kanalları içinde metal iyonlarına kıyasla daha rahat dağılım sağlayabilmesinden onların kanalları içindeki mobilitesinin yüksek olacağı ve dolayısıyla iyonik iletiminin diğerlerine kıyasla daha yüksek olacağı sonucuna varıldı (Wang ve Dong, 2007; Okutan vd., 2015; Pokhriyal ve Biswas, 2016).

Metal ve RB boya iyonları katkılı (50 mg/ml) hidrojelilerin, karmaşık empedansın sanal (X) kısmının frekansla olan değişimi geniş bir frekans aralığında Şekil 4.5’ de verildi. Düşük frekans bölgesinde Co^{+2} , Cr^{+3} , Mn^{+2} ve Ni^{+2} metal iyonları katkılı hidrojelilerin reaktans değerlerinin, artan frekansla birlikte hemen hemen doğrusal olarak azaldığı saptandı. Diğer taraftan RB boya ve Ag^{+1} metal iyonları katkılı hidrojelilerin 10^4 Hz frekansın altında neredeyse sabit değerler aldığı belirlendi. Bu sabit değerlerin nedeni, düşük frekans bölgesinde RB boya ve Ag^{+1} metal iyonları katkılı hidrojelileri etkileyen ara yüzey polarizasyon etkilerinden kaynaklandığı tespit edildi. Ag^{+} metal ve RB boya iyonları katkılı hidrojelilerin karmaşık empedansının gerçek kısmının frekansla değişimi birbirine çok benzerlik gösterirken, Co^{+2} ve Ni^{+2} , Cr^{+3} ve Mn^{+2} metal katkılı hidrojelilerin karmaşık empedansının sanal kısmının frekansla değişiminin de birbirleriyle uyumlu davranış sergilediği görüldü. Ayrıca 10^2 – 10^5 Hz frekans aralığındaki derişime bağlı dalgali davranışın, metal/boya iyonları ile hidrojelilerin bantları arasındaki etkileşimden kaynaklandığı saptandı.

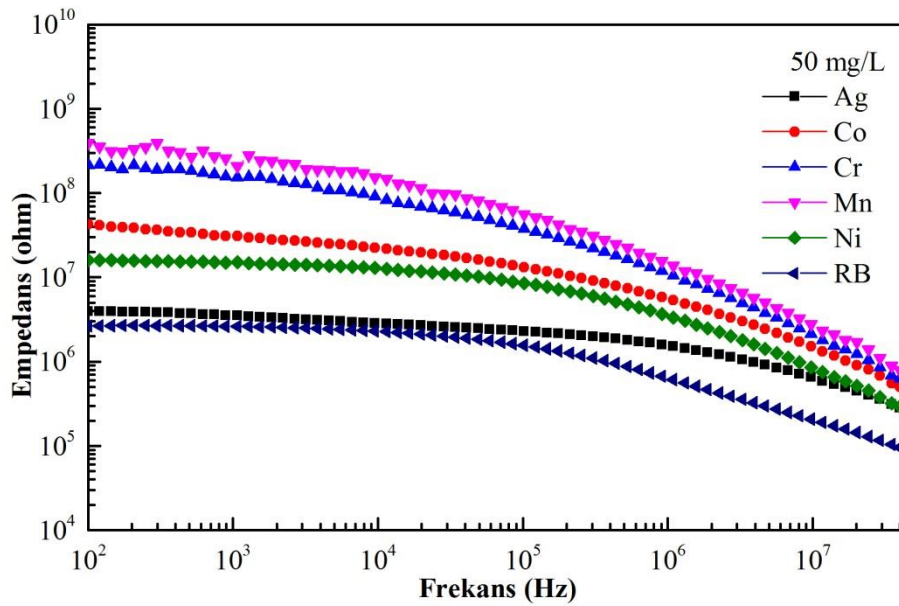


Şekil 4.5. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojelilerin karmaşık empedansın sanal kısmının frekansla değişimi

Düşük frekans bölgesinde ($<10^4$ Hz), Mn^{+2} metal iyonları katkılı hidrojelinin empedansının sanal kısmının en büyük değeri aldığı, buna karşın Ag^{+1} iyonları katkılı hidrojelinin en küçük değeri aldığı saptandı. Artan frekansla birlikte, katkılı hidrojelilerin reaktans değerleri arasındaki farkın giderek azaldığı ve 10^7 Hz frekans civarlarında birbirlerine çok yakın değerler aldığı bulundu. Yüksek frekans bölgesinde RB boya

iyonları katkılı hidrojelin metal iyonları katkılı hidrojellere göre daha düşük reaktans değeri alıyor olması, RB boya iyonları katkılı hidrojelin daha iletken olduğuna atfedildi. Düşük frekans bölgelerinde karışık empedansın sanal kısmının yüksek değerler almasının nedeninin elektrot ve ara yüzey kutuplanması olduğu tespit edildi. Yüksek frekans bölgelerinde ise elektrot kutuplanmanın ve ara yüzey etkilerin giderek etkinliğini kaybettiği katkılı hidrojellerin yeniden yönelim polarizasyonu etkisinde davranış sergilediği belirlendi (Wang ve Dong, 2007; Okutan vd., 2015; Saha vd., 2017; Pokhriyal ve Biswas, 2016; Cava vd., 1984; Rao vd., 2006).

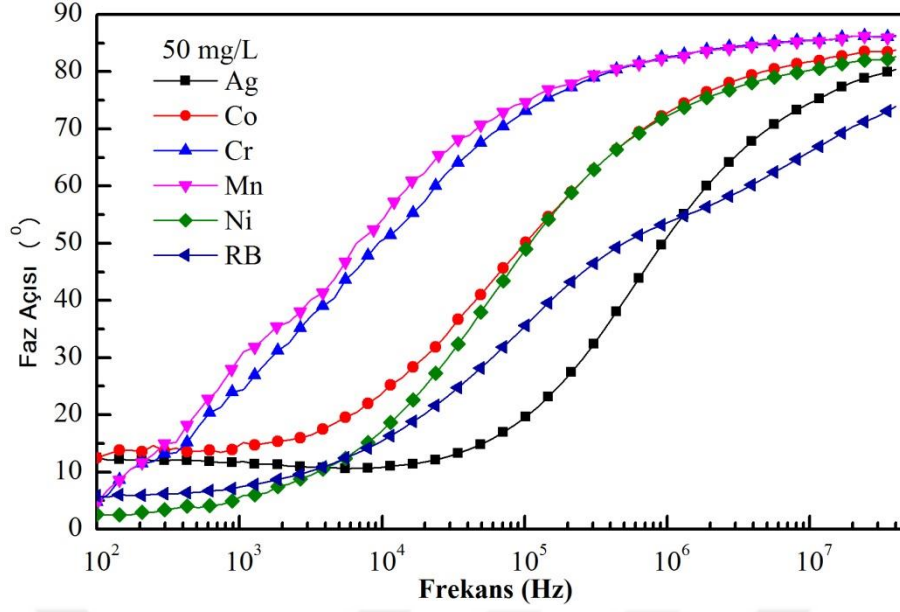
Şekil 4.6’ da RB boya ve Ag^{+1} , Co^{+2} , Cr^{+3} , Mn^{+2} , Ni^{+2} metal iyonları katkılı hidrojellerin empedansın frekansla değişimi geniş bir frekans aralığında gösterildi. Boya ve metal iyonları katkılı hidrojellerin empedansın frekansla değişiminin karmaşık empedansın gerçek kısmı olan rezistansın frekansla değişimine çok benzerlik gösterdiği saptandı. Boya ve metal iyonları katkılı hidrojellerin empedans değerinin artan frekansla birlikte monotonik olarak azaldığı tespit edildi. Rezistans değerlerinde olduğu gibi, RB ve Ag^{+1} , Co^{+2} ve Ni^{+2} , Cr^{+3} ve Mn^{+2} iyonları katkılı hidrojellerin karmaşık empedansının frekansla değişimlerinin de kendi aralarında birbirine çok benzerlik sergilediği gözlemlendi. Gerek düşük gerekse yüksek frekans bölgesinde RB boya iyonları katkılı hidrojelin, metal iyonları katkılı hidrojellere göre daha küçük empedans değerlerine sahip olduğu belirlendi.



Şekil 4.6. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojellerin empedansının frekansla değişimi

Yine hem düşük hem de yüksek frekans bölgesinde Mn^{+2} metal iyonu katkılı hidrojin empedansının en büyük değeri aldığı saptandı. Frekans değeri yükseldikçe, katkılı hidrojinlerin empedans değerleri arasındaki farkın giderek azaldığı ve bilhassa metal iyonları katkılı hidrojinlerin birbirlerine çok yakın davranış gösterdiği tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde karışık empedansın yüksek değerler almasının nedeni uygulanan dış elektrik alan etkisi altında kalan yüklerin kutuplanmasına yani elektrot polarizasyona ve ara yüzey polarizasyon etkilerine atfedildi (Cole ve Cole, 1941; Hornebecq vd., 2000; Bauerle, 1969; Pradhan vd., 2005). Yüksek frekans bölgesinde ise elektrot polarizasyonun etkisini giderek kaybettiği ve dolayısıyla empedans değerinin giderek azaldığı bulundu. Ayrıca yüksek frekans bölgesinde katkılı hidrojinlerin empedans değerlerinin daha çok yüzey etkenlerden etkilendiği saptandı. Diğer bir ifadeyle bu bölgede iletkenliği etkileyen yüzey öz direncinin azalacağına dolayısıyla iyonik iletkenliğin artacağına atfedildi (Rao vd., 2006; Kumar vd., 2008; Orazem vd., 1993; Agarwal vd., 1995; Barbero vd., 2005; Gabai vd., 2001; Freire vd., 2010; Huang vd., 2001; El-Gendy vd., 2012).

RB boya ve Ag^{+1} , Co^{+2} , Cr^{+3} , Mn^{+2} , Ni^{+2} metal iyonları katkılı hidrojinlerin, faz açısının frekansla değişimi Şekil 4.7' de sunuldu. Co^{+2} ve Ni^{+2} , Cr^{+3} ve Mn^{+2} iyonları katkılı hidrojinlerin faz açısının frekansla değişiminin birbirlerine çok benzediği görüldü. RB ve Ag^{+1} iyonları katkılı hidrojinlerin faz açısı ise frekans değeri arttıkça bir dalgalı davranış sergilediği saptandı. Düşük frekans bölgesinde en düşük faz açısı değeri Ni^{+2} metal iyonu katkılı hidrojele ait iken en yüksek faz açısı değeri Co^{+2} iyonu katkılı hidrojele ait olduğu belirlendi. Yüksek frekans bölgesinde ise en yüksek faz açısı değerinin Mn^{+2} ve Cr^{+3} metal iyonları katkılı hidrojinlere en düşük faz açısı değerinin ise RB boya iyonu katkılı hidrojele ait olduğu saptandı. Değişen frekansla birlikte faz açısının değişiklik göstermesi bu frekans aralıklarında farklı dielektrik mekanizmaların meydana gelmesinin bir sonucu olarak tespit edildi. Diğer taraftan 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans aralığındaki dalgalı tutumun, metal/boya iyonları ile hidrojinlerin bantları arasındaki etkileşimden kaynaklandığı belirlendi.

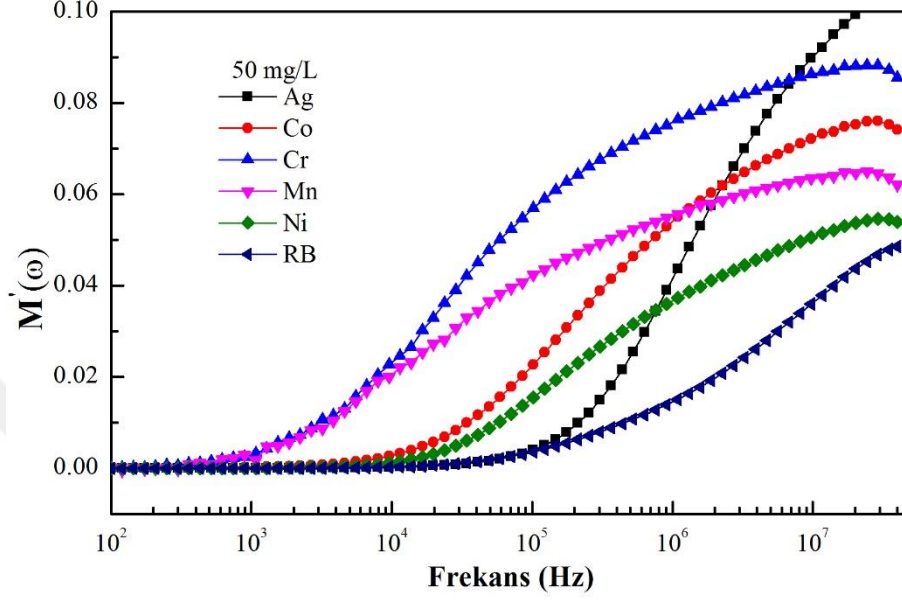


Şekil 4.7. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojellerin faz açısının frekansla değişimi

Düşük frekans bölgesinde katkılı hidrojellerin faz açısını etkileyen dielektrik mekanizma daha çok elektrot polarizasyon tarafından kontrol edilirken artan frekansla birlikte elektrot polarizasyonun yerini dielektrik durulma ve dipol polarizasyon mekanizmalarına bıraktığı saptandı. Ayrıca faz açısının frekansla sarmal değişiminin temel nedeninin viskoelastik karakteristik özellikten kaynaklandığı tespit edildi. Metal ve boya iyonları katkılı hidrojeller için faz açısının artan frekansla birlikte Maxwell sıvısındaki korelasyon etkilerinden, viskoelastik sistemdeki dielektrik durulma ve Brown dinamik davranışlarından etkilendiği belirlendi. Gerek metal gerekse boya iyonu katkılı hidrojeller için faz açısı değeri 40 MHz frekans da hemen hemen 90° civarında olduğu görüldü. Bu durumun Şekil 4.3' de verilen tanjant faktörü değeri ile uyumlu ($\delta = 90 - \varphi$) olduğu tespit edildi. Ayrıca numunelerin $\tan \delta$ değerlerinin birden büyük olmasından bu malzemelerin iletimlerinin hemen hemen Ohm yasasına uygun davrandığı sonucuna varıldı. RB boya iyonu katkılı hidrojinin yüksek frekans bölgesinde düşük faz açısına ve yüksek $\tan \delta$ değerine sahip olmasından metal iyonu katkılı hidrojellere kıyasla daha düşük yüzey direncine ve daha yüksek iyonik iletkenliğe sahip olacağı sonucuna varıldı (Yalçın, vd, 2013; Conde, vd., 2003; Chen, vd., 2007; Keller ve Licastao, 1959; Taylora vd., 2005).

Metal ve RB boya iyonları katkılı (50 mg/ml) hidrojellerin, karmaşık elektrik modülünün gerçek ($M'(\omega)$) kısmının frekansla değişimi geniş bir frekans aralığında

Şekil 4.8’ de gösterildi. $M'(\omega)$ değerinin artan frekansla birlikte astimtotik olarak arttığı tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde bütün katkılı hidrojenlerin $M'(\omega)$ değerinin sıfır değeri alma eğiliminde olduğu saptandı. Bu davranışın nedeninin bu bölgede katkılı hidrojenlerin $M'(\omega)$ değerleri üzerine elektrot polarizasyon etkisi olduğu sonucuna ulaşıldı.

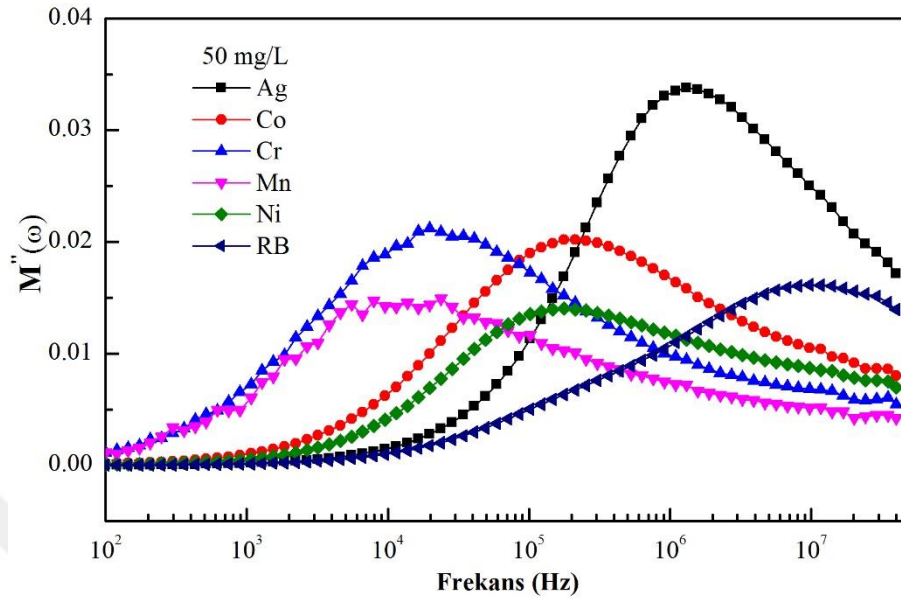


Şekil 4.8. Rodamin-B boyası ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojenlerin karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmının frekansla değişimi

Yüksek frekans bölgesinde ise $M'(\omega)$ ' nin en yüksek değerinin Ag^+ metal iyonu katkılı hidrojenle ve en düşük değerinin RB boyası iyonu katkılı hidrojenle ait olduğu tespit edildi. Elektrik modülünün gerçek kısmının artan frekansla birlikte artarak maksimum noktaya ulaştığı görüldü. Bu durumun nedeni ise düşük frekans bölgesinde katkılı hidrojenlerin dielektrik özelliklerini etkileyen elektrot polarizasyon etkisinin etkinliğini kaybetmesi ve dielektrik durulma sürecinin devreye girmesi olarak saptandı (Ramesh ve Arof, 2001; Dixon, 1990; Rouahi vd., 2013; Yu vd., 2000; Zhang vd., 2005; Smaoui vd., 2009; Bordi vd., 2007; Gogulamurali vd., 1992; Deraman vd., 2014).

Şekil 4.9’ da Ag^{+1} , Co^{+2} , Cr^{+3} , Mn^{+2} , Ni^{+2} metal ve RB boyası iyonları katkılı (50 mg/ml) hidrojenlerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının ($M''(\omega)$) geniş bir frekans aralığındaki değişimi verildi. Düşük frekans bölgesinde karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmında olduğu gibi bütün katkılı hidrojenlerin elektrik modülünün sanal kısmının da sıfır değeri aldığı tespit edildi. Bu durumun nedeni ise düşük frekans bölgesinde katkılı hidrojenlerin dielektrik özelliklerini belirleyen elektrot polarizasyon

olarak belirlendi. $M''(\omega)$ ' nin en yüksek değerinin Ag^{+1} metal iyonu katkılı hidrojele, en düşük değerinin ise Mn^{+2} metal iyonu katkılı hidrojele ait olduğu tespit edildi.



Şekil 4.9. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının frekansla değişimi

Cr^{+3} ve Mn^{+2} iyonları katkılı hidrojeller düşük frekans bölgesinde maksimum değerine ulaşırken Co^{+2} ve Ni^{+2} iyonları katkılı hidrojellerin orta frekans da Ag^{+1} ve RB boya iyonları katkılı hidrojellerin ise yüksek frekans bölgesinde maksimum değerine ulaştığı görüldü. $M''(\omega)$ ' nün frekansla birlikte artarak maksimum noktaya ulaşmasının nedeni elektrot polarizasyon etkisinin ortadan kalkması, dipol etkileşimlerin, dielektrik durulma sürecinin etkinleşmesinin ve Stokes-Einstein ilişkisinin (Stokes-Einstein relationship) bir sonucu olarak belirlendi. Ayrıca uygulanan dış elektrik alanın frekansı ile iyonları hareket ettiren frekansın eşit olduğu durumda $M''(\omega)$ değerinin maksimum noktaya ulaştığı tespit edildi. $M''(\omega)$ tepe değerine ulaştığında sistemin ara yüzey polarizasyon tarafından kontrol edildiği belirlendi. Bu bölgede boya ve metal iyonlarının mobilitesinin giderek arttığı tespit edildi (Ramesh ve Chai, 2007; Borsa vd., 1992; Boucher vd., 2006; Macedo vd., 1972; Ranjan vd., 2011; Kaiser, 2012; Zwanzig ve Bixon, 1970; Singh vd., 2017; Wang vd., 2017; Akhtar vd., 2018). Ayrıca Çizelge 4.1' de metal ve boya iyonları katkılanmış hidrojellerin elektrik modülünün maksimum tepe değerleri ve bu tepe değerlerine karşılık gelen kritik frekans değerleri verildi. RB boya katkılı hidrojelin $9,74 \times 10^6$ Hz ile numuneler arasında en yüksek kritik frekans değerine sahip olduğu tespit edildi. Buradan hareketle RB boya iyonu katkılı hidrojelin

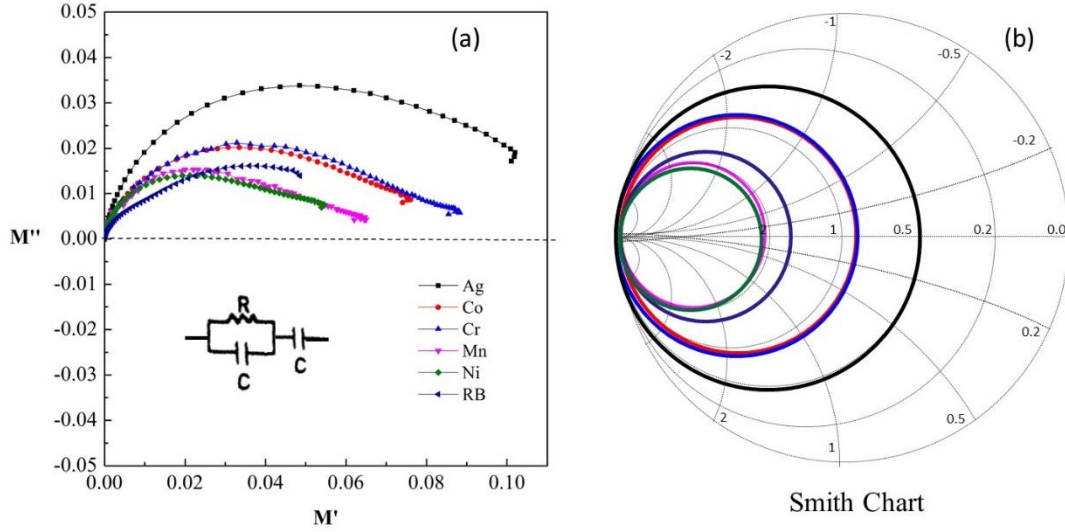
durulma frekansının diğer metal iyonu katkılı hidrojellere kıyasla daha yüksek olduğu sonucuna varıldı. Yani RB boya iyonu katkılı hidrojelin iletim mekanizmasının daha uzun süre bozulmadan korunabildiği belirlendi. Diğer taraftan Ag^{+1} metal iyonu katkılı hidrojelin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının pik değerinin en yüksek olduğu tespit edildi.

Çizelge 4.1. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün maksimum pik değerleri ve kritik frekans değerleri

Numune adı	Karmaşık elektrik modülün sanal kısmının pik değeri (ω)	Kritik frekans değeri (Hz)
RB	0,0160	$9,74 \times 10^6$
Ag	0,0337	$1,31 \times 10^6$
Co	0,0202	221650
Cr	0,0212	19781
Mn	0,0153	12184
Ni	0,0139	176370

Ag^{+1} , Co^{+2} , Cr^{+3} , Mn^{+2} , Ni^{+2} metal ve RB boya iyonları katkılı (50 mg/ml) hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün Cole–Cole düzlem çizgileri ve bunların Smith Chart diyagramı uygulamaları Şekil 4.10a ve Şekil 4.10b’ de sırasıyla verildi. $M''-M'$ düzlem çizgilerinin non-Debye durulma modeli ile uyumlu olduğu tespit edildi. Katkılı numunelerin Cole-Cole düzlem çizgilerinin oluşması bu malzemenin elektriksel kullanımı ile ilgili önemli ipuçları vermesi bakımından önemli bulundu. Eşdeğer bir elektrik devresine (RC) karşılık gelen Cole-Cole çizgilerinin teorik empedans devresini gösteren Smith Chart diyagramı ile uyumlu olduğu saptandı. Şekilde gösterilen RC devresi için farklı iyon katkılı numunelerin farklı direnç ve kapasitans değerleri aldığı belirlendi. RB boya iyonu katkılı hidrojelin oluşturduğu devrede direncin 5×10^6 Ohm, kapasitansın ise $8,8 \times 10^{-10}$ F değerini aldığı tespit edildi. Bu malzemeler içinde en düşük direnç değerine sahip devrenin bu RB boya iyonu katkılı hidrojelin oluşturduğu devre olduğu anlaşıldı. Ayrıca RB boya iyonunun hidrojellerle ara yüzey etkileşiminin zayıf olması nedeni ile bu malzemenin en yüksek iyonik iletkenliğe sahip olacağı öngörüldü. Diğer taraftan en yüksek direnç ve en düşük kapasitans değerine sahip devrenin Mn^{+2} metal iyonu katkılı hidrojele ait olduğu saptandı. Bu malzemenin oluşturduğu Cole-Cole

çizgilerine karşılık gelen RC devresi için direnç değeri $7,6 \times 10^8$ Ohm ve kapasitans değeri $6,1 \times 10^{-13}$ F olarak tespit edildi.

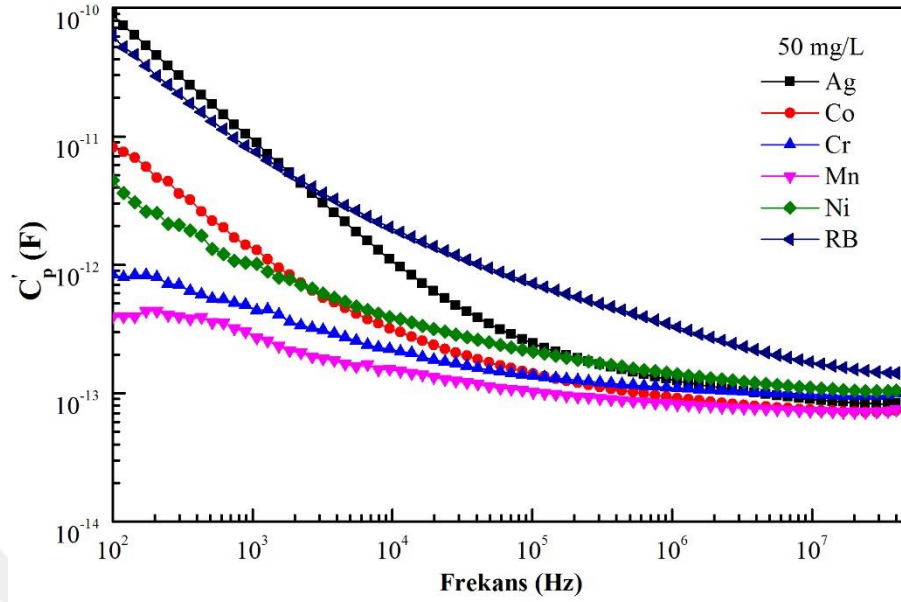


Şekil 4.10. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojellerin elektrik modülün Cole-Cole düzlem çizgileri (a) ve onların Smith Chart diyagramına uyarlanmış hali (b)

Sonuç olarak karmaşık elektrik modülünün düzlem çizgilerinin teorik uygulaması olan Smith Chart diyagramından elde edilen sonuçlardan metal ve boya iyonu katkılı hidrojellerin opto-elektronik teknolojisinde kullanılabileceği sonucuna varıldı. Ayrıca bu mazlemeler içinde en düşük direnç ve en yüksek kapasitif değerlerinden birine sahip olan RB katkılı hidrojelin elektronik uygulamalar açısından daha avantajlı bir malzeme olduğu belirlendi (Tsangaris vd., 1991; Cole ve Cole, 1941; Smith, 1939; Day vd., 1985; Baziard vd., 1988; Yuan, 2012; Tsangaris vd., 1998; Tomozawa vd., 1979; Caspers, 2012).

Şekil 4.11 Ag^{+1} , Co^{+2} , Cr^{+3} , Mn^{+2} , Ni^{+2} metal ve RB boya iyonları katkılı (50 mg/ml) hidrojellerin kapasitansının frekansla değişimini göstermektedir. Katkılanmış bütün numuneler için kapasitans değerlerinin artan frekansla birlikte üstel olarak azaldığı görüldü. Katkılı hidrojellerin kapasitans değerlerinin frekansla değişiminin dielektrik sabitin gerçek kısmının frekansla değişimine çok benzer davranışlar sergiledi tespit edildi. Ag^{+1} metal ve RB boya, Co^{+2} ve Ni^{+2} , Cr^{+3} ve Mn^{+2} iyonları katkılı hidrojellerin kapasitanslarının frekansla değişiminin kendi aralarında birbirleriyle uyumlu olduğu belirlendi. Ayrıca 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans aralığındaki derişime bağlı dalgalı davranış

metal/boya iyonları ile hidrojellerin bantları arasındaki etkileşimden meydana gelmiştir.

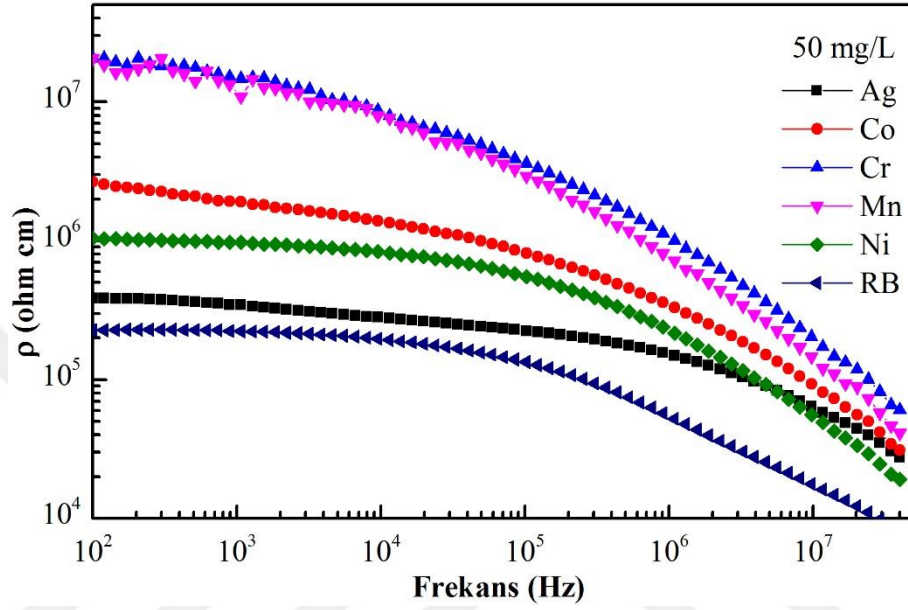


Şekil 4.11. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojellerin kapasitansının frekansla değişimi

Düşük frekans bölgesinde en yüksek kapasitans değerinin Ag^{+1} katkılı hidrojele, en düşük kapasitans değerinin de Mn^{+2} katkılı hidrojele ait olduğu saptandı. Bu durumun düşük frekans bölgesinde kapasitif etkiyi doğuran polarizasyon etkinin en yoğun Ag^{+1} katkılı hidrojelde en zayıf da Mn^{+2} katkılı hidrojelde oluşmasından kaynaklandığı tespit edildi. Yüksek frekans bölgesinde ise en yüksek kapasitans değerinin RB katkılı hidrojele, en düşük kapasitans değerinin de yine Mn^{+2} katkılı hidrojele ait olduğu gözlemlendi. Bu durumun nedeninin yüksek frekans bölgesinde oluşan ara yüzey polarizasyon etkinin en yoğun RB, en zayıf da Mn^{+2} katkılı hidrojel üzerinde yaşanmasından kaynaklandığı belirlendi. Bu frekans bölgesinde bütün numunelerin kapasitans değerlerinin birbirine yaklaştığı tespit edildi. Metal ve boya iyonları katkılı numunelerin kapasitans değerlerinin düşük frekans bölgesinde yüksek değerler almasının nedeninin elektrot polarizasyon mekanizması olduğu sonucuna varıldı. Artan frekansla birlikte bütün numunelerin kapasitans değerindeki azalışının nedeni ise dielektrik durulma mekanizması ve dipol etkileşimler olarak belirlendi (Arbizzani vd., 2001; Simon ve Gogotsi, 2010; Pieta vd., 2013; Walter, 1991; Castela vd., 2001).

Şekil 4.12' de RB boya ve Ag^{+1} , Co^{+2} , Cr^{+3} , Mn^{+2} , Ni^{+2} metal iyonları katkılı (50 mg/ml) hidrojellerin yüzey öz direncinin geniş bir frekans aralığında frekansla olan

değişimi gösterildi. Bu numunelerin yüzey özdirençlerinin artan frekansla birlikte önce üstel sonra da hemen hemen doğrusal olarak azaldığı görüldü. Düşük frekans bölgesinde en yüksek yüzey özdirençinin Mn^{+2} ve Cr^{+3} metal iyonları katkılı hidrojelere, en düşük yüzey özdirençinin de RB boya iyonu katkılı hidrojele ait olduğu tespit edildi. Yüksek frekans bölgesinde de bu durumun kendini koruduğu görüldü.

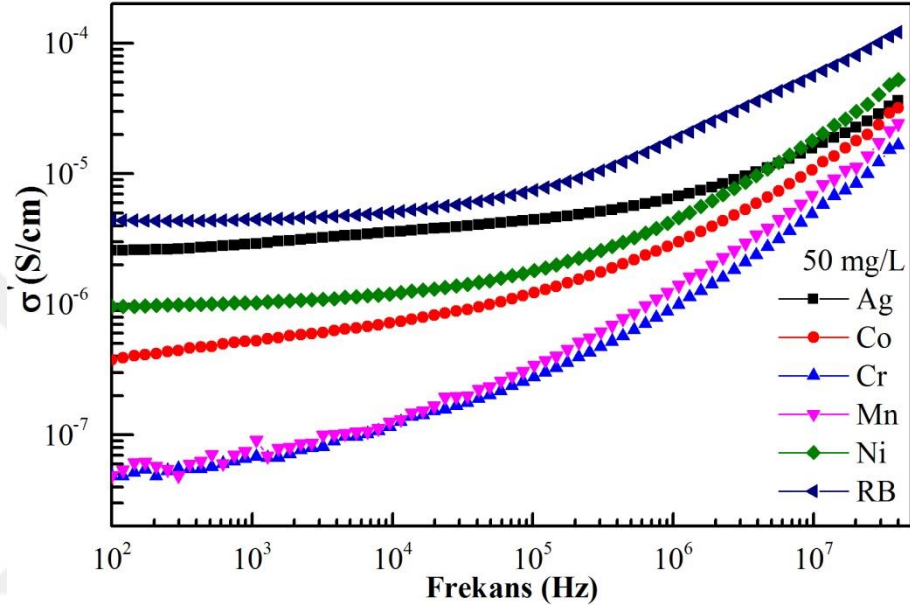


Şekil 4.12. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojellerin yüzey özdirençinin frekansla değişimi

Düşük frekans bölgesinde metal ve boya iyonları katkılı numunelerin yüzey özdirençinin, elektrot polarizasyon etkiden dolayı yüksek değerler aldığı tespit edildi. Yüksek frekans bölgesinde ise dielektrik durulma olgusundan dolayı bu değerlerin azaldığı saptandı. RB boya iyonu katkılı hidrojin yüzey iletkenliğinin daha yüksek olması nedeniyle gerek düşük gerekse yüksek frekans bölgesinde yüzey özdirençinin en düşük değer aldığı belirlendi. Diğer taraftan Mn^{+2} ve Cr^{+3} metal iyonları katkılı hidrojellerin yüzeydeki iyonik iletkenliğinin düşük olması nedeniyle yüzey özdirençlerinin tüm frekans aralığı boyunca en yüksek değerleri aldığı tespit edildi (Yalçın vd., 2013; Jones vd., 1997; Weiler ve Chaussidon, 1968; Souza Jr. vd., 2008; Webster, 2014; Lim vd., 2002).

RB boya ve metal iyonları katkılı hidrojellerin karmaşık iyonik iletkenliğinin gerçek ($\sigma'(\omega)$) kısmının frekansla olan değişimi 100 Hz–40 MHz frekans aralığında Şekil 4.13' de sunuldu. Bu hidrojellerin $\sigma'(\omega)$ değerlerinin artan frekansla birlikte üstel olarak attığı

tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde Ag^+ metal ve RB boya iyonları katkılı hidrojenlerin birbiriyle, Co^{+2} ve Ni^{+2} metal iyonları katkılı hidrojenlerin birbiriyle, Cr^{+3} ve Mn^{+2} metal iyonları katkılı hidrojenlerin de birbiriyle $\sigma'(\omega)$ değerleri açısından benzer davranış sergilediği belirlendi. Gerek düşük frekans bölgesinde gerekse yüksek frekans bölgesinde en yüksek $\sigma'(\omega)$ değerinin RB boya iyonu katkılı hidrojele, en düşük $\sigma'(\omega)$ değerlerinin ise Mn^{+2} ve Cr^{+3} katkılı hidrojenlere ait olduğu görüldü.

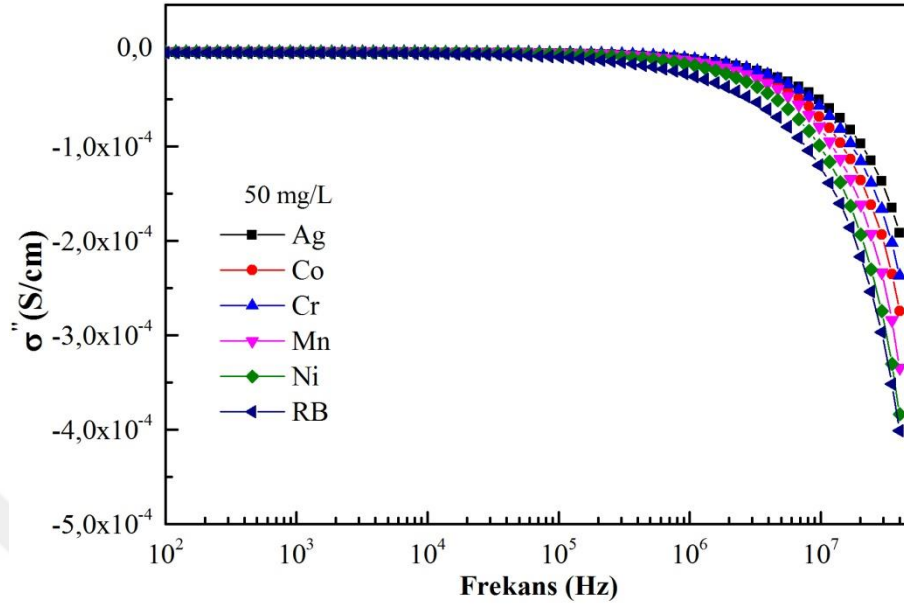


Şekil 4.13. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) yüklü hidrojenlerin karmaşık iyonik iletkenliğinin gerçek kısmının frekansla değişimi

Hidrojenlerin kanalları içinde ve elektrot ara yüzeylerde RB boya iyonlarının metal iyonlarına kıyasla daha büyük mobiliteye sahip olması nedeniyle bu numunelerin iyonik iletkenliğinin metal iyonları katkılı hidrojenlere kıyasla daha yüksek değerler aldığı tespit edildi. Başka bir deyişle, RB boya iyonlarının hidrojel kanalları içinde ve elektrot ara yüzeylerde çok daha rahat hareket edebildiği için iyonik iletkenliğinin yüksek olduğu saptandı (Sredić vd., 2008; Dispenza vd., 2006; Konsta vd., 1991; Jia vd., 2003; Wan vd., 1995; Kumar ve Sharma, 1998; Pissis ve Kyritsis, 1997; León vd., 2001; Kashyap vd., 2012; Farea vd., 2008).

Şekil 4.14' de RB boya ve Ag^{+1} , Co^{+2} , Cr^{+3} , Mn^{+2} , Ni^{+2} metal iyonları katkılı (50 mg/ml) hidrojenlerin karmaşık iyonik iletkenliğinin sanal kısmının ($\sigma''(\omega)$) frekansla değişimi verildi. Bütün katkılı hidrojenlerin $\sigma''(\omega)$ değerlerinin 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans

aralığında tamamen frekanstan bağımsız davrandığı ve sıfır değerinde olduğu belirlendi. Artan frekansla birlikte $\sigma''(\omega)$ değerlerinin monotonik olarak azaldığı görüldü.



Şekil 4.14. Rodamin-B boya ve metal iyonları (50 mg/L) katkılı hidrojellerin karmaşık iyonik iletkenliğinin sanal kısmının frekansla değişimi

Düşük frekans bölgesinde metal ve boya iyonları katkılı numunelerin $\sigma''(\omega)$ değerlerinin sıfıra gitme eğiliminin bu bölgede oluşan yüksek kapasitif etkiden kaynaklandığı belirlendi. Ayrıca bu bölgede serbest metal ve boya iyonlarının uygulanan alan yönünde polarize olmasında $\sigma''(\omega)$ ' nün sıfır değeri almasında büyük etkisi olduğu saptandı. Frekans değerinin 10^6 Hz üzerine çıktığı bölgelerde yaşanan dielektrik durulma nedeniyle tüm numunelerin $\sigma''(\omega)$ değerlerinin monotonik olarak azaldığı tespit edildi (Pissis vd., 1999; Konsta vd., 1991; Wan vd., 1995; Minami, 1985; Raghasudha vd., 2013; Ogihara vd., 2004).

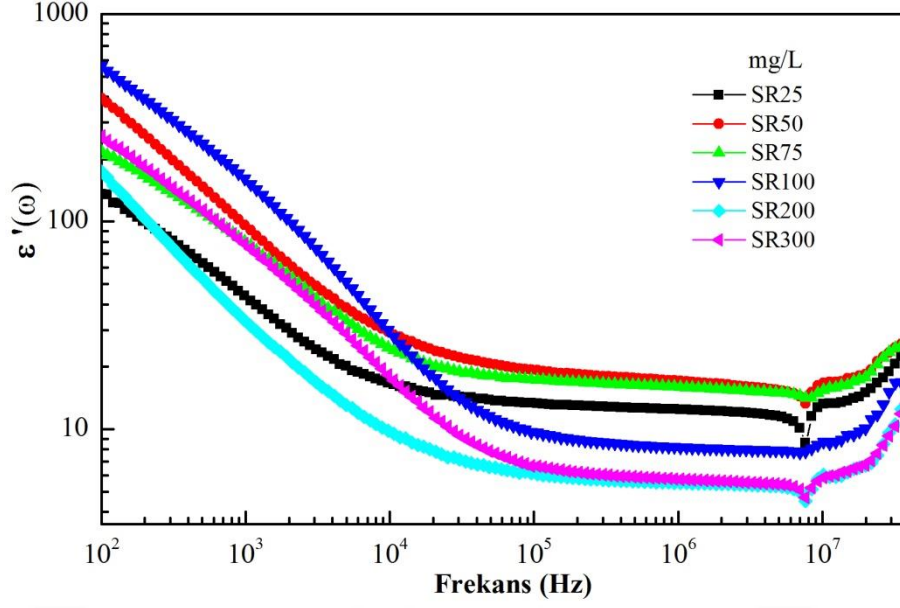
RB boya iyonu katkılı hidrojelinde gerek düşük gerekse yüksek frekans bölgesinde boya iyonu ile hidrojelinde oksijen grupları arasındaki etkileşimin zayıf olmasından dolayı $\varepsilon''(\omega)$ değerinin metal iyonu katkılı hidrojellere kıyasla daha yüksek olduğu tespit edildi. RB boya iyonunun hidrojel kanalları içinde daha homojen dağılması ve daha rahat hareket edebilmesinden dolayı RB katkılı hidrojelinde rezistans değerinin bütün frekans aralığında en düşük olduğu belirlendi. Ayrıca boya katkılı hidrojelinde en düşük rezistans değerine sahip olmasından dolayı bütün frekans aralığında en yüksek iyonik iletkenlik değerine sahip olduğu saptandı. Yine bu RB boya iyonu katkılı hidrojelinde yüksek

frekans bölgesinde en yüksek $\tan \delta$ ve en düşük faz açısı değerine sahip olmasından dolayı en düşük yüzey direncine ve en yüksek iyonik iletkenliğe sahip olacağı sonucuna varıldı.

4.4 Safranin Katkılı Hidrojellerin Empedans Spektroskopi Analizi

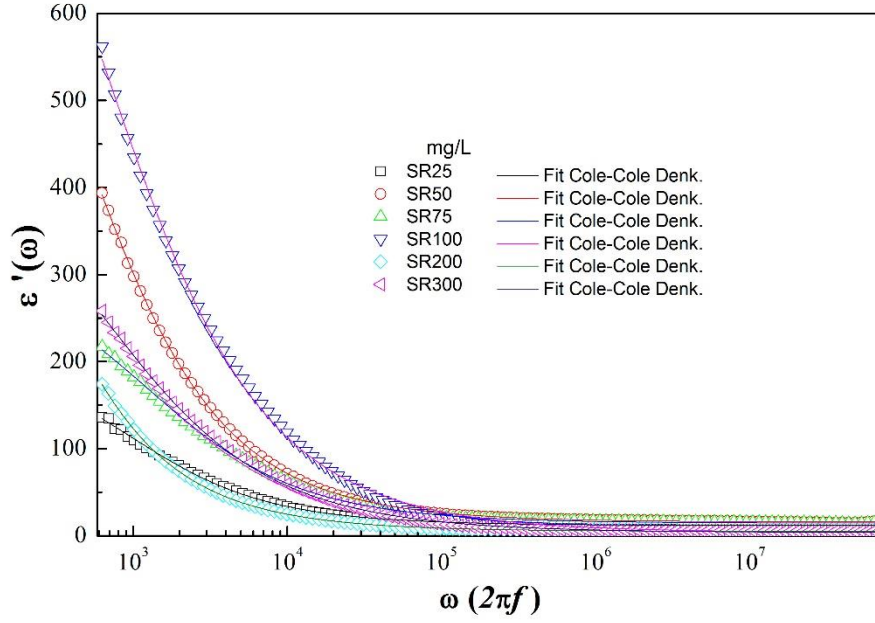
Farklı derişimlerde (25, 50, 75, 100, 200 ve 300 mg/L) safranin (SR) boya iyonları katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitin gerçek kısmı, dielektrik sabitin sanal kısmı, tanjant faktörü, dielektrik sabitin düzlem çizğileri, rezistansı, reaktansı, empedansı, faz açısı, karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmı, elektrik modülünün sanal kısmı, elektrik modülünün düzlem çizğileri, elektrik modülünün düzlem çizğilerinin Smith Chart uygulaması, kapasitansı, yüzey özdirenci, karmaşık iyonik iletkenliğinin gerçek kısmı, iyonik iletkenliğinin sanal kısmı ve logaritmik iyonik iletkenliğinin frekansla gelişimleri sırasıyla Şekil 4.15, Şekil 4.16, Şekil 4.17, Şekil 4.18, Şekil 4.19, 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 sunuldu. Farklı derişimdeki SR boya iyonu katkılı bu numunelerin frekansla gelişimine etki eden tüm dielektrik mekanizmaları düşük ve yüksek frekans bölgeleri başta olmak üzere önemli frekans değerlerinde ayrıntılı bir şekilde incelendi. Bu malzemelerin biyosensör uygulamalarının hangi koşullar altında olacağı saptandı.

Şekil 4.15a'da farklı derişimlerde safranin (SR) boya katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin gerçek kısmının ($\epsilon'(\omega)$) geniş bir frekans aralığındaki değişimine ait deneysel sonuçlar gösterildi. SR boya yüklü hidrojellerin $\epsilon'(\omega)$ değerinin artan frekansla birlikte hemen hemen doğrusal olarak bir azaldığı, 10^5 Hz– 10^7 Hz frekans aralığında ise frekanstan bağımsız olarak davrandığı tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde, en yüksek $\epsilon'(\omega)$ değerinin 100 mg/L katkılı hidrojele, en düşük $\epsilon'(\omega)$ değerinin ise 25 mg/L katkılı hidrojele ait olduğu belirlendi. Bu bölgede $\epsilon'(\omega)$ değerinin safranin boya iyonları ile hidrojellerin bantları arasında oluşan ara yüzey etkileşimlerden kaynaklanan dalgalı bir davranış (fluctuation behavior) sergiledikleri saptandı. Artan frekansla en düşük $\epsilon'(\omega)$ değerinin ise 200 mg/L katkılı hidrojele ait olduğu görüldü.



Şekil 4.15a. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin gerçek kısmının frekansla deęişimi

Düşük frekans bölgesinde SR boya iyonları katkılı hidrojellere bir dış elektrik alan uygulandığı zaman, serbest halde bulunan SR katyonlarının uygulanan elektrik alana bağlı olarak elektrot-elektrolit ara yüzeyinde bir elektrot polarizasyon oluşturduğu tespit edildi. Buradan hareketle, bu bölgede numunelerin yüksek $\epsilon'(\omega)$ değerlerinin elektrot polarizasyon etkiden kaynaklandığı sonucuna varıldı. Artan frekansla birlikte (10^5 Hz frekansa kadar) SR katkılı hidrojellerin $\epsilon'(\omega)$ değerin giderek azaldığı belirlendi. Bu azalışın boya iyonlarının hidrojel kanallar içindeki difüzyonunu düşüren hızlı periyodik ters çevrim etkisinden kaynaklandığı tespit edildi. Bu bölgede elektrik alanın periyodik ters çevriminin çok hızlı olmasının SR boya iyonlarının alan yönünde yönelim için gerekli zamanı bulamamasından dolasıyla numunelerin $\epsilon'(\omega)$ değerinin giderek azalmasına neden olduğu sonucuna varıldı. Yüksek frekans bölgesinde SR katkılı hidrojellerin $\epsilon'(\omega)$ değerin neredeyse frekanstan bağımsız davrandığı görüldü. Bu bölgede elektrot polarizasyon etkinin giderek kaybolduğu ve yerini $\epsilon'(\omega)$ ' nün düşük değerler almasını sağlayan dielektrik durulma mekanizmasına ve boya iyonlarının Brown hareketliliğine (Brownian motion) bıraktığı sonucuna varıldı. (Xu vd., 2014; Mahmoodi vd., 2012; Dutta ve Biswas, 2002; Mishra ve Rao, 1998; Armstrong vd., 1974; Dyre, 1991; Kumar vd., 2009; Venkateswarlu vd., 2000).



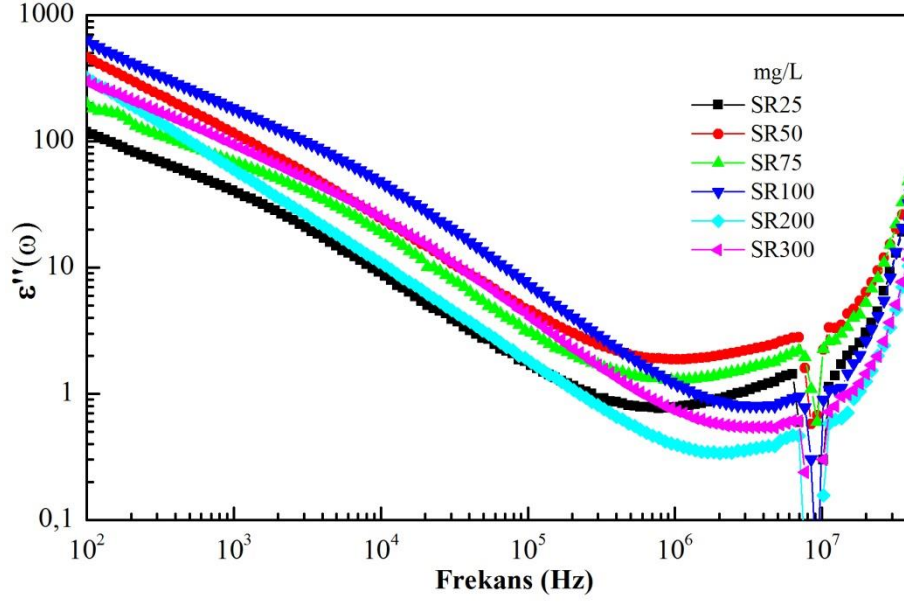
Şekil 4.15b. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojjelerin karmaşık dielektrik sabitinin gerçek kısmının açısai frekansla Cole-Cole denklemi ile fit edilen deęişimi

Safranin boya katkılı hidrojjelerin dielektrik sabitinin gerçek kısmının deęişimi Cole-Cole (2.18) denklemi ile fit edilerek uygunluęu arařtırıldı. Her bir safranin boya katkılı hidrojjelerin dielektrik parametreleri için Denklem 2.18'deki α ve τ deęerleri hesaplandı. Debye tipi davranıř sergileyip sergilemedięi ortaya kondu. Cole-Cole deęişimlerinin merkezi x-ekseni üzerinde olmayıp, eksen altına düřtüęü α soęurma katsayısının $0 < \alpha \leq 1$ arasında bir deęerde olmasından anlařılmaktadır. Reel dielektrik sabitinin açısai frekansa baęlı Cole-Cole Denklem (2.18)' den fit edilerek elde edilen α ve τ deęerleri Çizelge 4.2' de verildi. Soęurma katsayısı deęerlerinden yola çıkarak bütün safranin boya katkılı hidrojjelerin non-Debye modeline uyduęu tespit edildi. Burada 200 mg/L SR katkılı hidrojjelin en düşük soęurma katsayısına ($\alpha=0.28$) sahip olduęu ve dielektrik sabitinin gerçek kısmının geniş frekans aralıęında en düşük $\epsilon'(\omega)$ deęerleri sergiledięi belirlendi. Aynı zamanda durulma sabiti (τ) deęerinin de en yüksek olduęu numunenin 200 mg/L SR katkılı hidrojel olduęu tespit edildi.

Çizelge 4.2. Dielektrik parametrelerin (α ve τ) hesaplanması

Numune mg/L	α		τ		Adj. R ²
	Değer	Std Hata	Değer	Std Hata	Değer
SR25	0.30986	0.0051	0.00108	5.45033E-5	0.99919
SR50	0.31718	0.00213	0.00238	9.39773E-5	0.99984
SR75	0.34269	0.00564	7.99644E-4	4.10679E-5	0.99907
SR100	0.36343	0.00611	0.00161	1.44872E-4	0.99889
SR200	0.28512	8.17166E-4	0.00618	3.46144E-4	0.99993
SR300	0.38017	0.00491	0.00167	1.27884E-4	0.99931

Şekil 4.16' da farklı derişimlerde safranin (SR) boya katkıli hidrojjelerin karmaşık dielektrik sabitin sanal kısmının ($\epsilon''(\omega)$) frekansla deęişimine ait deneysel sonuçlar gösterildi. Bu numunelerin $\epsilon''(\omega)$ deęerinin artan frekansla birlikte (10^6 Hz frekansa kadar) hemen hemen doğrusal olarak azaldığı tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde en düşük $\epsilon''(\omega)$ deęerinin 25 mg/L katkıli hidrojele, en yüksek $\epsilon''(\omega)$ deęerinin ise 100 mg/L katkıli hidrojele ait olduğu saptandı. 10^5 Hz– 10^6 Hz frekans arası bölgede ise $\epsilon''(\omega)$ deęerinin safranin boya iyonları ile hidrojjelerin bantları arasında oluşan ara yüzey etkileşimlerden kaynaklanan dalgalı bir tutum sergiledikleri belirlendi. Bu bölgede en yüksek $\epsilon''(\omega)$ deęerinin 50 mg/L SR boya yüklü hidrojele, en düşük $\epsilon''(\omega)$ deęerinin ise 200 mg/L yüklü hidrojele ait olduğu tespit edildi.

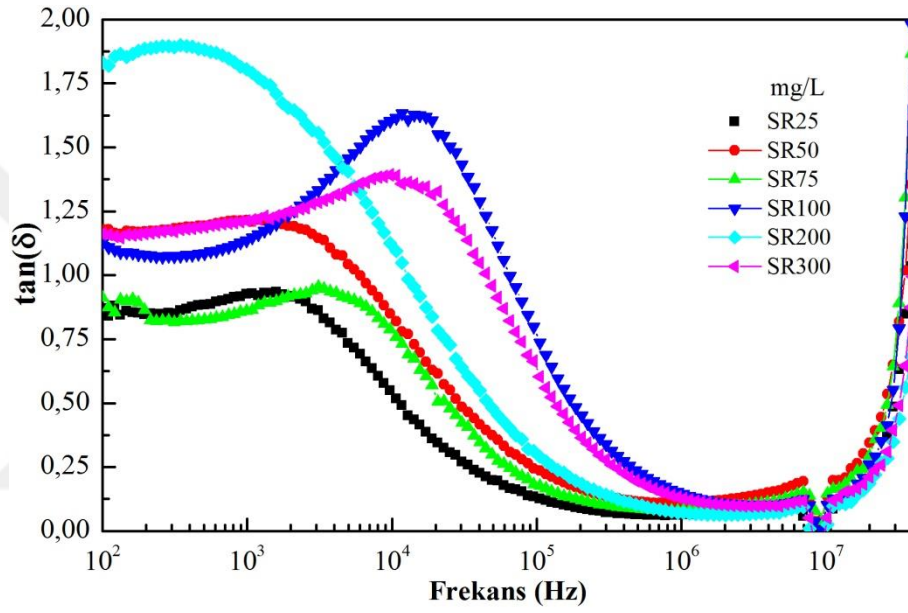


Şekil 4.16. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin sanal kısmının frekansla deęişimi

Düşük frekans bölgesinde numunelerin $\varepsilon''(\omega)$ deęerinin elektrot-elektrolit ara yüzünde biriken SR boya iyonlarının alan yönünde kutuplanmasıyla oluşan ara yüzey polarizasyon ve elektrot polarizasyon etkiler nedeniyle yüksek deęer aldığı tespit edildi. Artan frekansla birlikte dielektrik durulumaya baęlı olarak SR boya katkılı hidrojellerin $\varepsilon''(\omega)$ deęerlerinin de giderek azaldığı belirlendi. Daha yüksek frekans deęerlerinde (10^6 Hz ve üzeri) $\varepsilon''(\omega)$ deęerlerinin tüm numuneler için yeniden yükseliş geçtiği görüldü. Bu yeniden yükselişin nedeni ise yeniden yönelim polarizasyonu olarak tespit edildi. Başka bir deyişle düşük frekans bölgesinde katkılı numunelere uygulanan dış elektrik alan etkisiyle SR boya iyonlarının alan yönünde yönelime geçtiği ve buna baęlı olarak $\varepsilon''(\omega)$ ' nün yüksek deęerler aldığı saptandı. Frekans deęeri artıkça uygulanan alanın hızlı periyodik ters çevrimi nedeniyle SR boya iyonlarının alan yönünde yönelime fırsat bulamadığı dolayısıyla $\varepsilon''(\omega)$ deęerinin giderek azaldığı görüldü. Yüksek frekans bölgesinde ise SR boya iyonlarının yeniden alan yönünde yönelime geçtiği ve $\varepsilon''(\omega)$ ' nün yüksek deęerler almaya başladığı tespit edildi (Ramesh ve Arof, 2001; Rajendran vd., 2004; Liew vd., 2012; Kamath ve Devendrappa, 2015; Murthy vd., 1977; Scaife, 1989; Mitsumata vd., 1998; Kar ve Choudhary, 2002; Saha vd., 2017; Dereman vd., 2014; Sengwa ve Sankhla, 2007a).

Farklı derişimlerde safranin (SR) boya katkılı hidrojellerin tanjant faktörünün ($\tan \delta$) frekansla olan deęişimi geniş bir frekans aralığında Şekil 4.17'de verildi. Tanjant

faktörünün artan frekansla birlikte bu numunelerin tümünde benzer davranışlar sergilediği görüldü. 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında tüm numunelerin bu aralıktaki frekans salınım bağımlılığından dolayı $\tan \delta$ ' nün bir tepe değere sahip olduğu saptandı. Bu tepe değerinin katılanan derişim oranı 25 mg/L den 100 mg/L ye artırıldığında yüksek frekans bölgesine, daha yüksek derişimlerde ise Stokes-Einstein etkisiyle tekrar düşük frekans bölgesine doğru kaydığı görüldü. Ayrıca $\tan \delta$ ' nün en düşük ve en yüksek değerlerinin sırasıyla 25 ve 200 mg/L SR boya katkılı hidrojellere ait olduğu belirlendi.

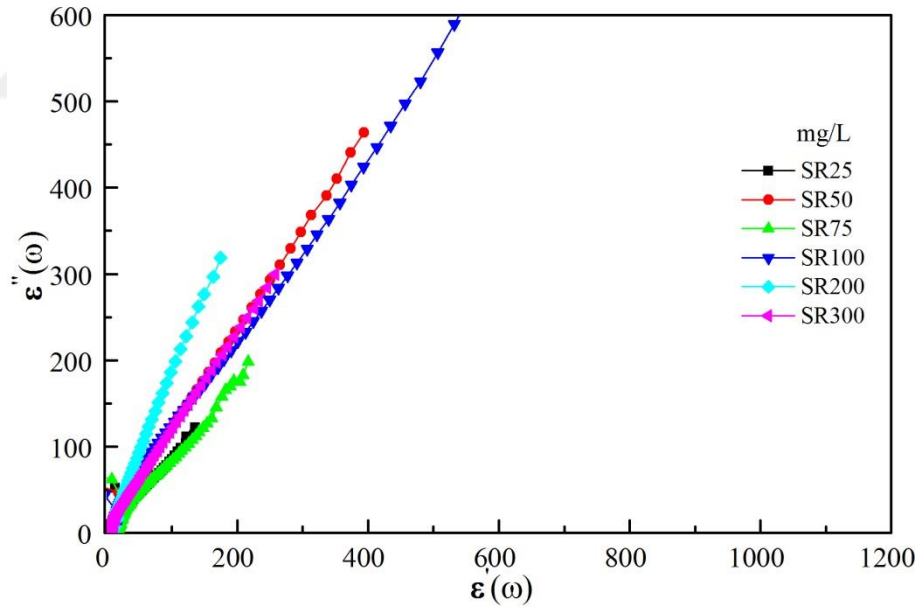


Şekil 4.17. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojellerin tanjant faktörünün frekansla değişimi

Farklı derişimlerde numunelerin tanjant faktörünün tepe genişliklerinin farklı olmasının rotasyon hareketindeki moleküler titreşiminin farklı olmasından kaynaklandığı tespit edildi. 200 mg/L SR boya katkılı hidrojelin rotasyon hareketindeki moleküler titreşimin diğerlerine kıyasla daha büyük olmasından dolayı en yüksek tepe genişliğine sahip olduğu sonucuna varıldı. Düşük frekans bölgesinde tüm numunelerin tanjant faktörünün elektrot polarizasyon etkiden dolayı yüksek değerler aldığı belirlendi. (Dutta vd., 2007; Ram ve Chakrabarti, 2008; Ramesh vd., 2011; Rajendran vd., 2004; Liew vd., 2012; Ram ve Chakrabarti, 2008; Singh vd., 2001; Kar ve Choudhary, 2002). Artan frekansla birlikte $\tan \delta$ değerinin dielektrik durulma mekanizmasından dolayı azalmaya başladığı tespit edildi. Daha yüksek frekans değerlerinde ise (10^7 Hz ve üzeri) SR boya yüklü hidrojellerin $\tan \delta$ değerinin yönelim polarizasyonu nedeniyle yeniden yükselişe geçtiği

saptandı. Katkı derişimine baęlı olarak $\tan \delta'$ nun pik deęerindeki deęişimin tamamen iletim mekanizması ile alakalı olduęu tespit edildi. Yani derişime baęlı olarak elde edilen $\tan \delta'$ nun pik deęerinden en düşük iyonik iletkenlięin 25 mg/L, en yüksek iyonik iletkenlięin ise 100 mg/L katkılı hidrojele ait olacaęı sonucuna varıldı. Dolayısıyla hidrojel kanallar içindeki en düşük ve en yüksek mobilitenin sırasıyla 25 mg/L ve 100 mg/L katkılı hidrojele ait olduęu belirlendi (Roy vd., 2013; Mansour, 2005; Heikes ve Johnston, 1957; Venkataraju vd., 2010; Dutta ve Biswas, 2002; Lidorenko vd., 1980; Zwanzig ve Bixon, 1970; Ansari vd., 2012).

Şekil 4.18'de farklı derişimlerde safranin (SR) boya katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin düzlem çizgilerinin (Cole–Cole çizgilerinin) 100 Hz–40 MHz frekans aralıęındaki deęişimine ait deneysel sonuçlar gösterildi. Düşük frekans bölgesinde dielektrik sabitinin düzlem çizgilerinin oluşmasını saęlayan elektrot polarizasyonun elektrot yüzeyler ve SR boya katkılı hidrojeller arasındaki ara yüzeyde oluşan çift katmanlı kapasitans etkiden kaynaklandıęı tespit edildi.

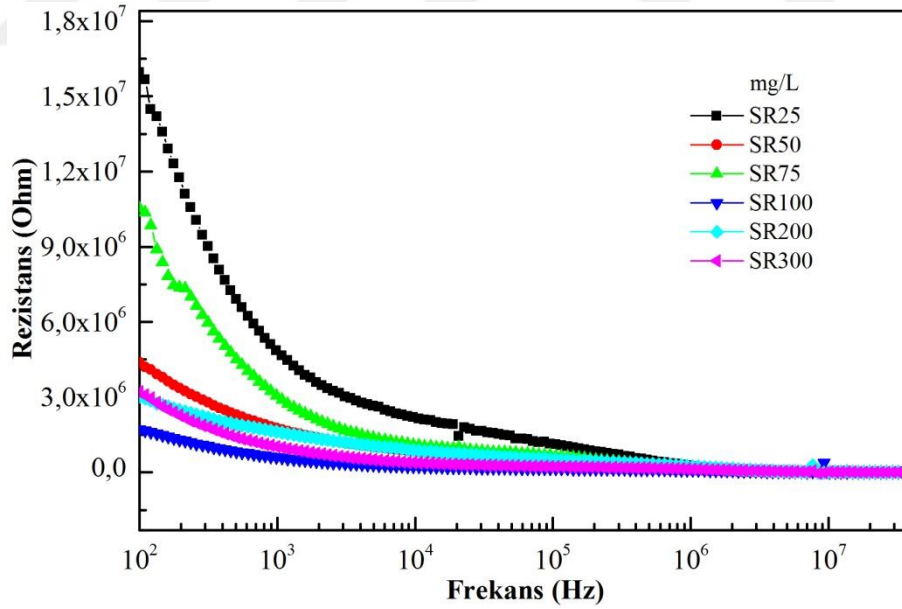


Şekil 4.18. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin düzlem çizgileri

Yüksek frekans bölgesinde dielektrik sabitinin düzlem çizgilerinin iyonik iletkenlięi sınırlayan bir direnç etkisinden kaynaklanmasına raęmen bu bölgede katkılı numuneler üzerinde böyle bir direnç etkisinin oluşmadıęı görüldü. Dolayısıyla SR boya katkılı hidrojellerin bir elektrik devresini karşılayan Cole–Cole düzlem çizgilerinin oluşmadıęı

belirlendi. Diğer taraftan bir öngörü olarak bu numunelerde çapraz bağ yoğunluğunun daha fazla veya katkılanan SR derişiminin daha yüksek olması durumunda eşdeğer RC devresine karşılık gelebilecek Cole–Cole düzlem çizgilerinin oluşabileceği sonucuna varıldı (Sengwa ve Choudhary, 2010; Cole ve Cole, 1941; Sengwa vd., 2000; Afzal vd., 2010; Küçükçelebi vd., 2012; Shinyashiki ve Yagihara,1999).

Farklı derişimlerde safranin (SR) boya katkıli hidrojellerin karmaşık empedansının gerçek kısmının (rezistansın) frekansla deęişimi Şekil 4.19’ da verildi. Bu malzemelerin rezistans deęerinin artan frekansla birlikte üstel olarak azaldığı görüldü. Bu azalışın düşük frekans bölgesinde yüksek frekans bölgesine kıyasla daha keskin olduğu tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde boya katkıli hidrojellerin rezistansının en yüksek deęerinin 25 mg/L katkıli hidrojele, en düşük deęerinin ise 100 mg/L katkıli hidrojele ait olduğu saptandı. Artan frekansla birlikte numunelerin rezistans deęerleri arasındaki farkın giderek azaldığı ve birbirlerine çok yakın deęerler aldığı tespit edildi. Yüksek frekans bölgesinde tüm numunelerin rezistans deęerinin frekanstan bağımsız davrandığı ve hemen hemen sıfır deęerine gittiği belirlendi.

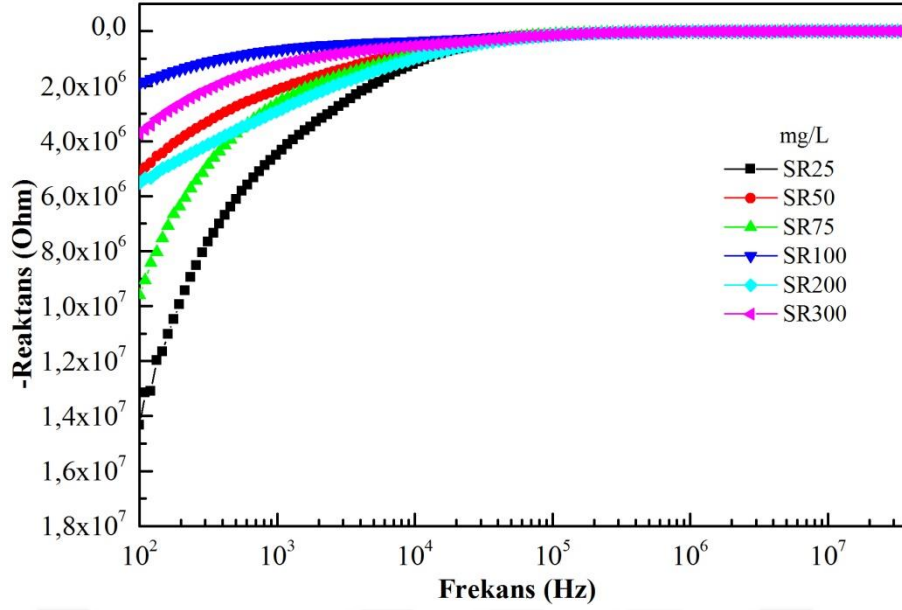


Şekil 4.19. Farklı derişimlerde safranin boya katkıli hidrojellerin karmaşık empedansının gerçek kısmının (rezistansın) frekansla deęişimi

Düşük frekans bölgesinde SR boya katkıli hidrojellerin rezistansının yüksek deęerler almasının uygulanan dış elektrik alan etkisi altında kalan SR boya iyonlarının alan yönünde polarize olmasından elektrot polarizasyon kaynaklandığı tespit edildi.

Yükselen frekansla birlikte numunelerin rezistansının yüksek değerler almasını sağlayan elektrot polarizasyonun etkisini giderek kaybettiği ve dolayısıyla yüksek kapasitif olgunun kaybolduğu tespit edildi. Yüksek frekans bölgesinde dielektrik durulma etkisinden dolayı numunelerin rezistans değerinin azaldığı belirlendi. Bu bölgede boya iyonları uygulanan dış alan yönünde polarize olacak kadar zaman bulamadıkları için dielektrik durulmanın yaşandığı yani boya iyonlarının serbest hareket edebildiği ve dolayısıyla tüm numunelerin rezistans değerinin azaldığı tespit edildi. Ayrıca bu bölgede katkı derişimine bağı olarak hidrojel ara yüzeyde oluşan tane sınırlarının (grain boundaries) rezistans üzerine etkisinin tamamen ortadan kalktığı ve rezistansın derişim oranından bağımsız davrandığı belirlendi (Ansari vd., 2012; Wang ve Dong, 2007; Okutan vd., 2015; Sengwa ve Sankhla, 2007a; Padmasree vd., 2006; Saha vd., 2017; Pokhriyal ve Biswas, 2016; Cava vd., 1984; Rao vd., 2006; Sengwa ve Sankhla, 2007b; Hornebecq vd., 2000; Bauerle, 1969; Kumar vd., 2008; Ozamen vd., 1993; Agarwal vd., 1995).

Şekil 4.20' de farklı derişimlerde safranin (SR) boya katkılı hidrojellerin karmaşık empedansının sanal kısmının frekansla olan değışimine ait deneysel sonuçlar gösterildi. Bu malzemelerin reaktans değerinin artan frekansla birlikte üstel olarak azaldığı tespit edildi. Bu azalışın yüksek düşük frekans bölgesinde daha belirgin olduğu görüldü. Yüksek frekans bölgesinde SR boya katkılı hidrojellerin reaktans değerinin frekanstan bağımsız davrandığı ve sıfır değerine gittiği saptandı. Düşük frekans bölgesinde ($< 10^4$ Hz) SR boya katkılı hidrojellerin en düşük reaktans değerinin 100 mg/L yüklü hidrojele en yüksek değer ise 25 mg/L katkılı hidrojele ait olduğu saptandı. Frekans değeri 10^4 Hz civarlarına yaklaştığında ise farklı derişimlerdeki SR boya katkılı hidrojellerin reaktans değerleri arasındaki farkın ortadan kalktığı ve hemen hemen birbirine eşit değerler aldığı belirlendi.

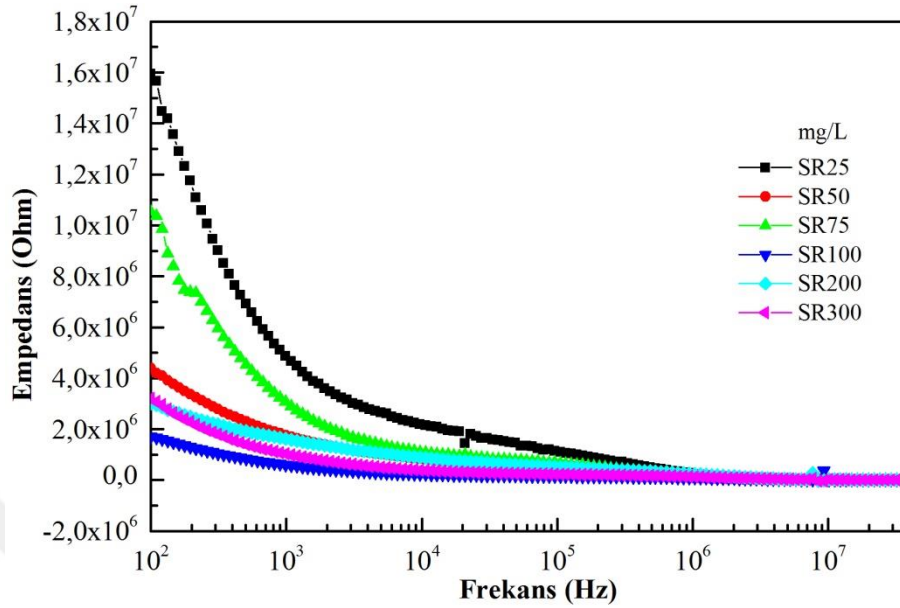


Şekil 4.20. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojelilerin karmaşık empedansının sanal kısmının frekansla deęişimi

Düşük frekans bölgesinde numunelerin reaktans deęerinin elektrot/elektrolit ara yüzeylerde oluşan ara yüzey polarizasyon etkilerden dolayı yüksek deęerler aldığı görüldü. Artan frekansla birlikte bu numuneleri etkileyen ara yüzey polarizasyon etkisinin giderek kaybolduęu yerini dielektrik durulmaya bıraktığı tespit edildi. Bu dielektrik durulmaya baęlı olarak yüksek frekans bölgesinde SR boya katkılı hidrojelilerin reaktans deęerlerinin düşük deęerler aldığı belirlendi. Bu bölgede hidrojelilerin ara yüzey sınırlarındaki kapasitif etkilerini azalmasından dolayı tüm numunelerin reaktans deęerlerinin azaldığı saptandı. Buradan hareketle boya iyonları katkılı hidrojelilerin derişime baęlı reaktans deęerlerinin bu numunelerin kapasitans deęerleri ile ters orantılı olduęu sonucuna varıldı (Sengwa ve Sankhla, 2007b; Padmasree vd., 2006; Saha vd., 2017; Pokhriyal ve Biswas, 2016; Cava vd., 1984; Rao vd., 2006; Ansari vd., 2012).

Farklı derişimlerde safranin (SR) boya yüklü hidrojelilerin empedansının frekansla deęişimi geniş bir frekans aralığında Şekil 4.21' de gösterildi. Bu numunelerin empedansının frekansla olan deęişiminin rezistansın frekansla deęişimine çok benzer olduęu belirlendi. Boya katkılı hidrojelilerin empedansının artan frekansla birlikte üstel olarak azaldığı görüldü. Düşük frekans bölgesinde boya katkılı hidrojelilerin empedansının en yüksek deęerinin 25 mg/L yüklü hidrojele, en düşük deęerinin ise 100 mg/L yüklü hidrojele ait olduęu saptandı. Artan frekansla birlikte numunelerin empedans deęerlerinin giderek birbirlerine yakın deęerler aldığı görüldü. Yüksek

frekans bölgesinde tün numunelerin empedans değerlerinin frekanstan bağımsız davrandığı ve sıfır değerine gittiği belirlendi.

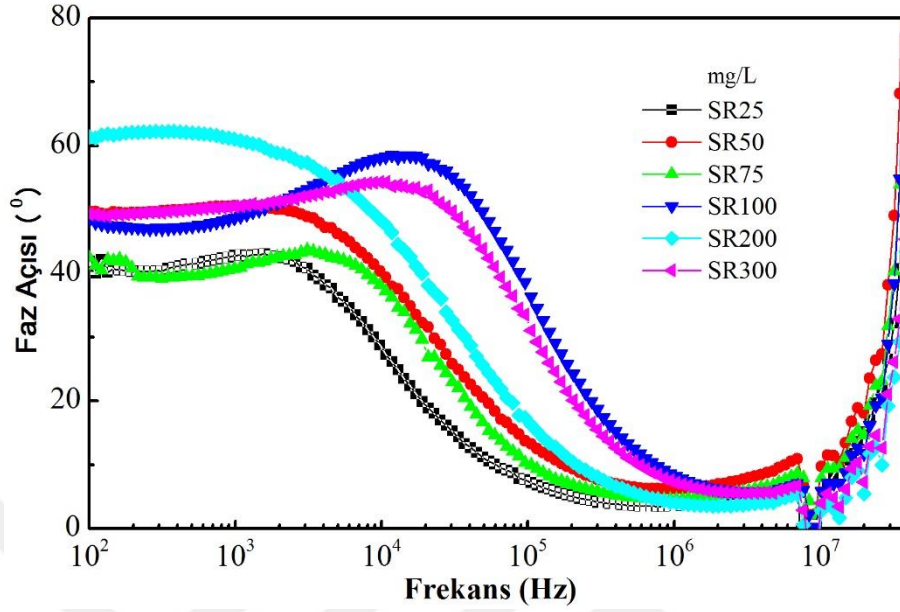


Şekil 4.21. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojelilerin empedansının frekansla deęişimi

Düşük frekans bölgesinde elektrot ve ara yüzey polarizasyon mekanizmalardan dolayı SR boya katkılı hidrojelilerin yüksek empedans değerlerine sahip olduğu saptandı. Bu bölgede oluşan elektrot polarizasyon etkinin yüksek kapasitif olgununda kaynağı olduğu belirlendi. Yüksek frekans bölgesinde dielektrik durulma ve yüzey etkilerden dolayı katkılı numunelerin düşük empedans değerleri aldığı tespit edildi. Dolısıyla bu bölgede yüksek kapasitif olgunun kaybolduğu saptandı (Wang ve Dong, 2007; Okutan vd., 2015; Sengwa ve Sankhla, 2007a; Padmasree vd., 2006; Saha vd., 2017; Pokhriyal ve Biswas, 2016; Cava vd., 1984; Rao vd., 2006; Sengwa ve Sankhla, 2007b; Hornebecq vd., 2000; Bauerle, 1969; Kumar vd., 2008; Ozamen vd., 1993; Agarwal vd., 1995).

Şekil 4.22' de farklı derişimlerde safranin (SR) boya katkılı hidrojelilerin faz açısının frekansla deęişimine ait deneysel sonuçlar verildi. Bu malzemelerin derişim oranına bakılmaksızın hemen hemen hepsinin faz açısının frekansla deęişiminin birbirine benzer davranışlar sergilediği belirlendi. SR boya katkılı hidrojelilerin faz açısının 10^2 Hz– 10^6 Hz frekans aralığında bir pik tepe değere sahip olduğu görüldü. Genelde faz açısının pik değerinin artan derişimle birlikte yüksek frekans bölgesine doğru kaydığı; lakin bu duruma 75 ve 200 mg/L SR boya yüklü hidrojelilerin uymadığı gözlemlendi. SR boya

katkılı hidrojelilerin faz açısının en düşük değerinin 25 mg/L, en yüksek değerinin ise 200 mg/L katkıli hidrojele ait olduğu tespit edildi.

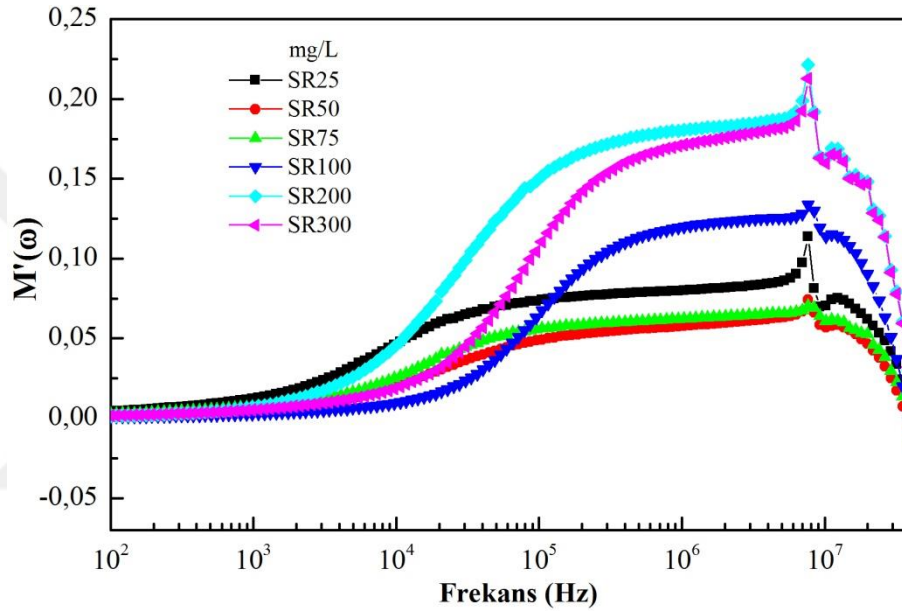


Şekil 4.22. Farklı derişimlerde safranin boya katkıli hidrojelilerin faz açısının frekansla deęişimi

SR boya katkıli hidrojelilerin faz açısının pik deęerlerinin doğrusal viskoelastik bölgedeki frekans salınım bağımlılıęından kaynaklandığı belirlendi. Boya katkıli hidrojelilerin faz açısı deęerlerinin 10^2 Hz– 10^6 Hz frekans aralıęında elektrot polarizasyondan, 10^6 Hz– 10^7 Hz frekans aralıęında ise dielektrik durulma mekanizmasından etkilendięi tespit edildi. Yüksek frekans bölgesinde dielektrik durulmadan dolayı SR boya katkıli hidrojelilerin faz açısının hemen hemen sıfır deęerine gittięi belirlendi. Frekans daha yüksek deęerlere ulaştığında dielektrik durulma mekanizmasının yerini yeniden yönelim polarizasyonunun aldığı görüldü. Ayrıca faz açısının tanjant faktörü ($\delta = 90^\circ - \varphi$) ifadesiyle uyumlu davranış sergiledięi saptandı. Tanjant faktörü deęerlerinin 50, 100, 200 ve 300 mg/L derişimde SR boya katkıli hidrojeliler için 1'den büyük ($\tan(\delta) > 1$) olduęu tespit edildi. SR katkıli hidrojelilerin $\tan \delta$ deęerlerinin birden büyük olmasından bu malzemelerin iletimlerinin hemen hemen Ohm yasasına uygun davrandığı sonucuna varıldı. Buradan hareketle 10^2 Hz– 10^6 Hz frekans aralıęında 50, 100, 200 ve 300 mg/L derişimde boya katkıli hidrojelilerin iletkenlięinin neredeyse tamamen ohmik davranış (Ohm Kanunu) sergiledięi belirlendi. Boya iyonları katkıli hidrojeliler için faz açısının artan frekansla birlikte viskoelastik sistemdeki dielektrik durulma, Brown hareketlilięinden ve Maxwell sıvısındaki

korelasyon etkilerinden kaynaklandığı tespit edildi (Keller ve Licastao, 1959; Taylora vd., 2005; Conde, vd., 2003; Chen, vd., 2007).

Şekil 4.23’ de farklı derişimlerde safranin (SR) boya katkıli hidrojjelerin karmaşık elektrik modülünün gerçek ($M'(\omega)$) kısmının frekansla deęişimi geniş bir frekans aralığında sunuldu. Bu hidrojjelerin $M'(\omega)$ deęerlerinin artan frekansla birlikte asimptotik olarak arttığı tespit edildi. Frekans deęeri 10^7 Hz üzerine çıktığında ise $M'(\omega)$ deęerlerinin artan frekansla birlikte asimptotik olarak azaldığı saptandı. Düşük frekans bölgesinde tüm numunelerin $M'(\omega)$ deęerlerinin sıfıra gittiği belirlendi.



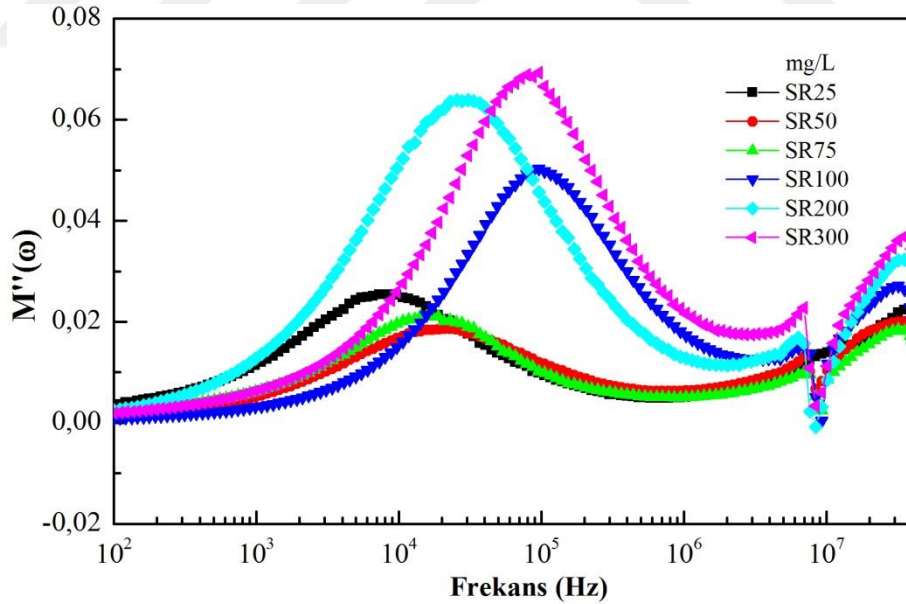
Şekil 4.23. Farklı derişimlerde safranin boya katkıli hidrojjelerin karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmının frekansla deęişimi

Bu bölgede katkıli numunelerin $M'(\omega)$ ' nün sıfır deęeri almasının elektrot polarizasyon etkiden kaynaklandığı belirlendi. Dięer bir ifadeyle bu bölgede yaşanan yüksek kapasitif etkiden dolayı numunelerin $M'(\omega)$ deęerlerinin sıfıra gittiği tespit edildi. Yüksek frekans bölgesinde katkıli hidrojjelerin en düşük $M'(\omega)$ deęerinin 50 mg/L, en yüksek deęerinin ise 200 mg/L SR katkıli hidrojele ait olduğu görüldü. Bu bölgede elektrot polarizasyon mekanizmasının etkinliğini tamamen kaybettiği, yerini iyonik iletkenliğe bıraktığı belirlendi. Dolasıyla bu bölgedeki $M'(\omega)$ deęerinin ani artışının iyonik iletkenlikten kaynaklandığı saptandı.

Yüksek frekans bölgesinde $M'(\omega)$ deęerinin artan frekansla birlikte artarak maksimum noktaya ulaşır sonra tekrar azalmasının nedeninin bu bölgede yaşanan dielektrik durulma mekanizmasının bir sonucu olduğu tespit edildi. Dielektrik durulmadan sonra

SR boya katkıli hidrojelilerin $M'(\omega)$ deęerlerinin yeniden ynelim polarizasyonunun etkisiyle yeniden azalmaya bařladığı tespit edildi. Bu blgede boya iyonlarının uygulanan dıř alan ynnde yeniden hizalanabilecek kadar zaman bulamadıkları iin $M'(\omega)$ deęerlerinin azaldığı saptandı. Yani yksek frekans blgesinde meydana gelen boya iyonlarının rastgele hareketinin numunelerin $M'(\omega)$ deęerlerini nce arttığı daha sonra ise yeniden ynelim polarizasyona baęlı olarak yeniden azalışın yařandığı sonucuna varıldı (Dixon, 1990; Smaoui vd., 2009; Deraman vd., 2014; Ramesh ve Arof, 2001; Liew vd., 2012; Ram ve Chakrabarti, 2008; Padmasree vd., 2006; Gogulamurali vd., 1992; Ramesh ve Chai, 2007).

Farklı deriřimlerde safranin (SR) boya katkıli hidrojelilerin karmařık elektrik modlnn sanal kısmının ($M''(\omega)$) frekansla deęiřimine ait deneysel veriler Őekil 4.24' de gsterildi. Dřk frekans blgesinde bu numunelerin $M''(\omega)$ deęerlerinin elektrot polarizasyon mekanizmasından dolayı sıfır deęeri almaya meyilli olduęu belirlendi. Katkıli numunelerin en dřk $M''(\omega)$ deęerinin 50 mg/L, en yksek deęerinin ise 300 mg/L SR katkıli hidrojele ait olduęu grld.



Őekil 4.24. Farklı deriřimlerde safranin boya katkıli hidrojelilerin karmařık elektrik modlnn sanal kısmının frekansla deęiřimi

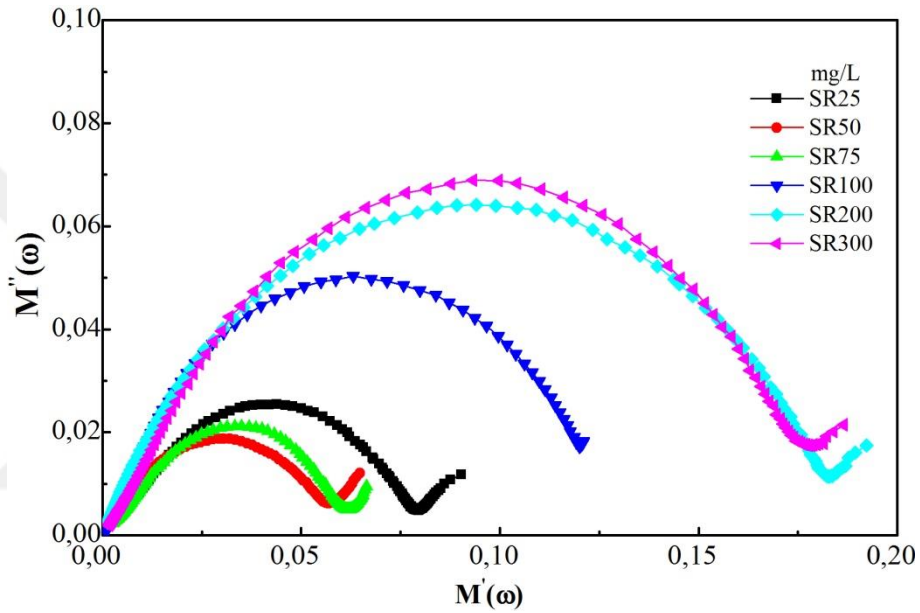
Farklı deriřimlerde SR boya katkıli hidrojelilerin $M''(\omega)$ deęerinin 10^3 Hz– 10^6 Hz frekans aralıęındaki dielektrik durulma etkisinden dolayı bir tepe deęere sahip olduęu tespit edildi. $M''(\omega)$ ' nn tepe deęerlerinin artan deriřimle birlikte genellikle yksek

frekans bölgesine doğru kaydığı, 75 ve 200 mg/L SR boya katkıli hidrojenlerin bu davranışa uymadığı tespit edildi. Bu durumun numunelerin tepe değerinin yüksek frekans bölgesine kaymasını sağlayan ara yüzey polarizasyon etkinin 75 ve 200 mg/L SR katkıli hidrojenler üzerine etkisinin diğer derişim oranlarına göre zayıf olmasından kaynaklandığı sonucuna varıldı. Yani bu iki derişim değerinin SR katkıli hidrojenler için kiritik derişim değeri olduğu tespit edildi. Boya katkıli hidrojenlerin $M''(\omega)$ değerinin bir tepe değerine ulaşp yeniden yönelim polarizasyonunun ve Stokes-Einstein etkisiyle tekrar azaldığı belirlendi Farklı derişimlerde SR boya iyonu yüklenmiş hidrojenlerin elektrik modülünün sanal kısmının tepe değerleri ve bu tepe değerlerine karşılık gelen kiritik frekans değerleri Çizelge 4.3' de gösterildi. 100 mg/L SR boya yüklenmiş hidrojenin 98112,22 Hz ile numuneler arasında en yüksek kiritik frekans değerine sahip olduğu saptandı. Bu numunenin durulma frekansının diğer derişimlerde SR boya yüklenmiş hidrojenlere kıyasla daha yüksek olduğu sonucuna varıldı. Başka bir deyişle 100 mg/L SR boya yüklenmiş hidrojenin iletim mekanizmasının diğerlerine kıyasla daha uzun süre bozulmadan korunabildiği tespit edildi. Ayrıca iletim mekanizmasında en erken bozulmanın 7522,25 Hz kiritik frekans değerine sahip olan 25 mg/L SR boya yüklenmiş hidrojenelde oluştuğu belirlendi. Diğer taraftan 50 mg/L SR boya derişiminden sonra artan derişimle birlikte karmaşık elektrik modülün sanak kısmının pik değerinde arttığı tespit edildi. Bu durumun artan derişimle birlikte hidrojen kanal içindeki iyon difüzyonunun artmasından kaynaklandığı belirlendi (Karmakar ve Ghost, 2012; Tsangaris vd., 1998; Boucher vd., 2006; Kaiser, 2012; Macedo vd., 1972; Ranjan vd., 2011; Borsa vd., 1992; Provenzano vd., 1972; Jain ve Hsieh, 1994; Karmakar ve Ghost, 2010; Zwanzig ve Bixon, 1970).

Çizelge 4.3. Farklı derişimlerde safranin boya yüklü hidrojenlerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının pik değerleri ve kiritik frekans değerleri

Numune adı	Karmaşık elektrik modülün sanal kısmının pik değeri (ω)	Kiritik frekans değeri (Hz)
SR25	0,025	7522,25
SR50	0,018	18789,94
SR75	0,020	16663,05
SR100	0,049	98112,22
SR200	0,063	25530,00
SR300	0,068	80755,20

Farklı derişimlerde safranin (SR) boya katkıli hidrojelilerin karmaşık elektrik modülünün düzlem çizgileri (Cole-Cole çizgileri) non-Debye durulma modeliyle Şekil 4.25’ de gösterildi. SR boya katkıli hidrojelilerin karmaşık elektrik modülünün düzlem çizgilerinin Cole–Cole çizgileri oluşturduğu belirlendi. Bu numunelerin en küçük Cole–Cole çizgilerinin 50 mg/L, en büyük Cole–Cole çizgilerinin ise 300 mg/L SR boya katkıli hidrojele ait olduğu tespit edildi. Bu durumun Şekil 4.24’ de verilen farklı derişimlerdeki SR boya katkıli hidrojelilerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının tepe değerleri ile uyumlu olduğu tespit edildi.

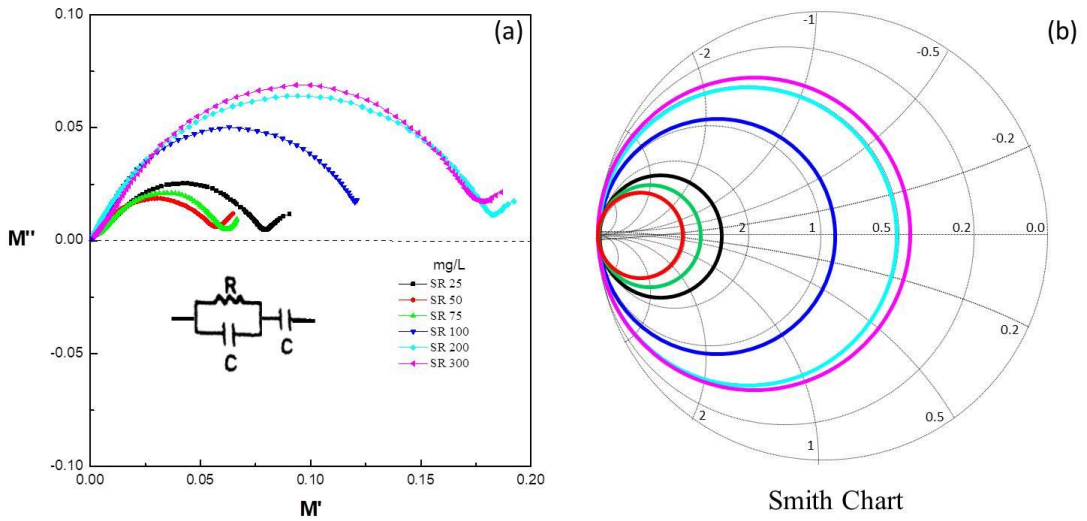


Şekil 4.25. Farklı derişimlerde safranin boya katkıli hidrojelilerin elektrik modülünün Cole–Cole düzlem çizgileri

SR boya katkıli hidrojelilerin Cole–Cole düzlem çizgilerinin oluşmasından bu numunelerin bir eşdeğer elektriksel devreye karşılık geldiği sonucuna varıldı. Numunelerin Cole–Cole düzlem çizgilerinin düşük frekans bölgesinde elektrot polarizasyon mekanizmasından, yüksek frekans bölgesinde ise dielektrik durulma ve yeniden yönelim polarizasyonundan etkilendiği tespit edildi (Cole ve Cole, 1941; Tsangaris vd., 1998; Richert ve Wagner, 1995; Tsangaris vd., 1991; Boyd, 1980; Böettcher ve Bordewijk, 1978; León vd., 1997; Wagner ve Richert, 1997; Yuan, 2012; Tomozawa vd., 1979; Richert ve Wagner, 1998).

Farklı derişimlerde safranin (SR) boya yüklü hidrojelilerin karmaşık elektrik modülünün Cole–Cole düzlem çizgileri ve bu sonuçların Smith Chart diyagramına uyarlanmış hali

sırasıyla Şekil 4.26a ve Şekil 4.26b' de verildi. Karmaşık elektrik modülünün düzlem çizgilerinin non-Debye modeli ile açıklanabileceği daha önce verilen Şekil 4.25' de gösterildi. Katkılı numunelerin Cole–Cole düzlem çizgilerinin oluşması bu malzemenin elektriksel kullanımı ile ilgili önemli ipuçları vermesi bakımından önemli bulundu. Eşdeğer bir elektrik devresine (RC) karşılık gelen Cole–Cole düzlem çizgilerinin teorik empedans devresini gösteren Smith Chart diyagramı ile uyumlu olduğu belirlendi. Şekilde gösterilen RC devresi için farklı derişimlerde SR katkılı hidrojellerin farklı direnç ve kapasitans değerleri aldığı belirlendi. Farklı derişimlerde boya katkılı numuneler içinde en yüksek direnç ve en düşük kapasitans değerine sahip RC devresinin 25 mg/L katkılı hidrojele ait olduğu anlaşıldı.

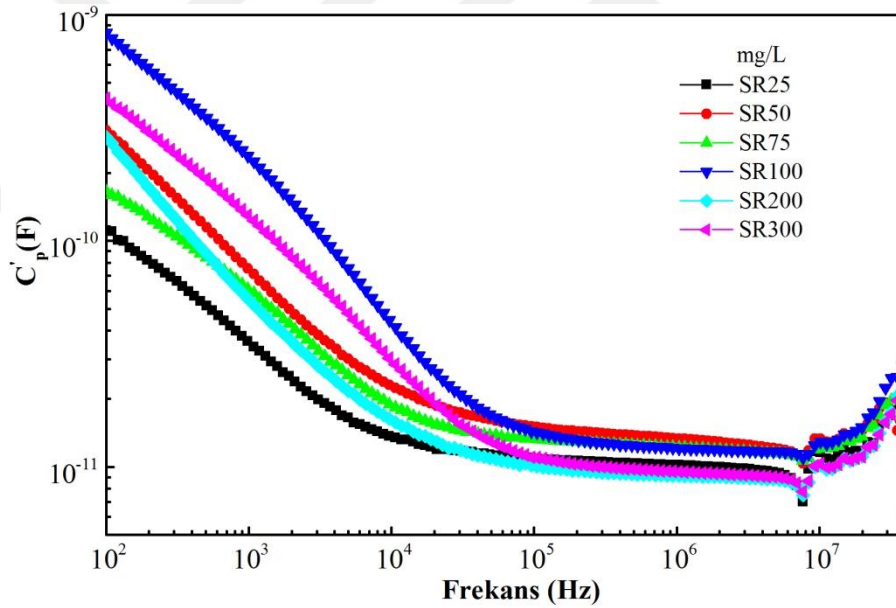


Şekil 4.26. Farklı derişimlerde safranin boya yüklü hidrojellerin elektrik modülünün Cole-Cole düzlem çizgileri (a) ve onların Smith Chart diyagramına uyarlanmış hali (b)

Bu numunenin oluşturduğu devrede direncin $1,6 \times 10^7$ Ohm, kapasitansın ise $9,8 \times 10^{-9}$ F değerini aldığı tespit edildi. Diğer taraftan en düşük direnç ve en yüksek kapasitans değerine sahip devrenin 100 mg/L SR iyonu katkılı hidrojele ait olduğu belirlendi. Bu malzemenin oluşturduğu Cole-Cole çizgilerine karşılık gelen RC devresi için direnç değeri $9,8 \times 10^5$ Ohm ve kapasitans değeri $1,7 \times 10^{-9}$ F olarak hesaplandı. Buradan hareketle elektronik uygulamalar için en uygun RC devrenin 100 mg/L SR katkılı hidrojel olduğu sonucuna varıldı. Yani SR boya katkılı hidrojellerin elektronik uygulamaları için 100 mg/L derişimin kritik derişim olduğu belirlendi. Bunun üzerindeki derişimlerin elektronik uygulamalar açısından avantaj değil dezavantaj

oluşturduğu anlaşıldı (Boyd, 1980; Böettcher ve Bordewijk, 1978; Cole ve Cole, 1941; Smith, 1939; Tsangaris vd., 1998; Richert ve Wagner, 1995; León vd., 1997; Tomozawa vd., 1979; Malisuwan ve Sivaraks, 2013; Townsend, 1995; Tiwari, 2011).

Şekil 4.27’ de farklı derişimlerde safranin (SR) boya katkıli hidrojjelerin kapasitansının frekansla deęişimine ait deneysel sonuçlar gösterildi. Düşük frekans bölgesinde bu numunelerin kapasitans deęerlerinin artan frekansla (10^5 Hz– 10^7 Hz frekans aralığında) birlikte hemen hemen doğrusal olarak azaldığı, yüksek frekans bölgesinde ise neredeyse frekanstan bağımsız davrandığı belirlendi. Düşük frekans bölgesinde en yüksek kapasitans deęeri 100 mg/L katkıli hidrojele, en düşük kapasitans deęerinin ise 25 mg/L SR katkıli hidrojele ait olduğu saptandı. Bu durumun düşük frekans bölgesindeki karmaşık dielektrik sabitin frekansla deęişimiyle uyumlu olduğu ve karmaşık empedansın frekansla deęişimiyle de ters çalıştığı belirlendi.

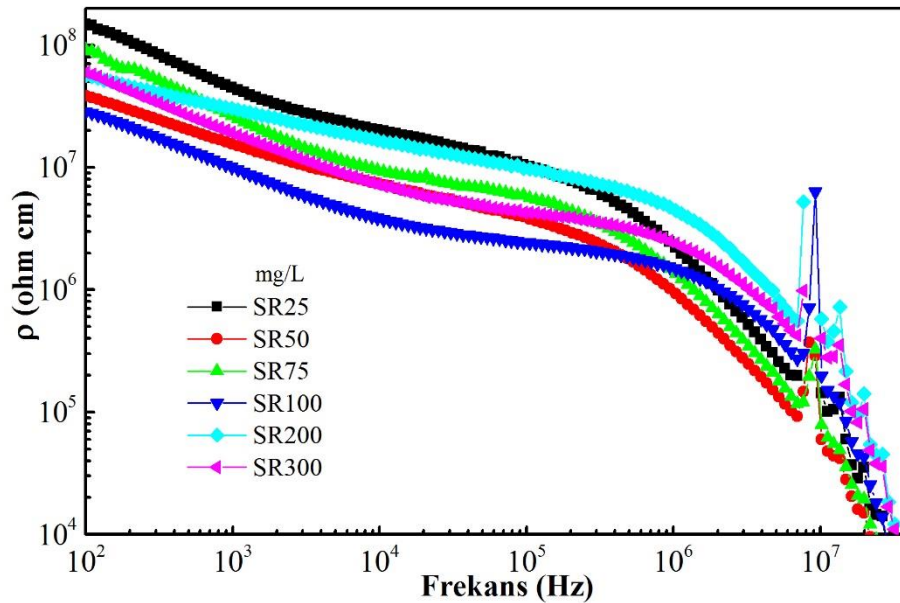


Şekil 4.27. Farklı derişimlerde safranin boya katkıli hidrojjelerin kapasitansının frekansla deęişimi

10^7 Hz üzerindeki frekans deęerlerinde SR boya katkıli numunelerin kapasitans deęerlerinin artan frekansla birlikte yeniden artışa geçtiği saptandı. Ayrıca katkıli hidrojjelerin kapasitans deęerinin hidrojjelerin bantları ile safranin boya iyonlarının arasında oluşan ara yüzey etkileşimlerden kaynaklanan derişime baęlı dalgalı bir davranış sergiledikleri tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde numunelerin kapasitansının hidrojjelerin iç yüzey alanında fazla boya iyonu birikmesinden dolayı

yüksek değerler aldığı belirlendi. Dolayısıyla kapasitansın yüksek değerlerinin SR boya iyonu katkılı hidrojeller ile elektrot ara yüzeyler arasındaki sınır katmanlarında biriken yük depolanmasıyla da ilişkili olduğu tespit edildi. Yüksek frekans bölgesinde tüm numunelerin kapasitans değerlerinin dielektrik durulma mekanizmasından dolayı azaldığı belirlendi. Ayrıca daha yüksek frekanslarda kapasitans değerlerinin yeniden yönelim polarizasyonunun etkisinde kaldığı saptandı (Simon ve Gogotsi, 2010; Pieta vd., 2013; Arbizzani vd., 2001; Pröbstle vd., 2002; Park ve Choi, 2010; Aureli ve Porfiri, 2012; Taberna vd., 2003; Conway vd., 1997; Pech vd., 2010).

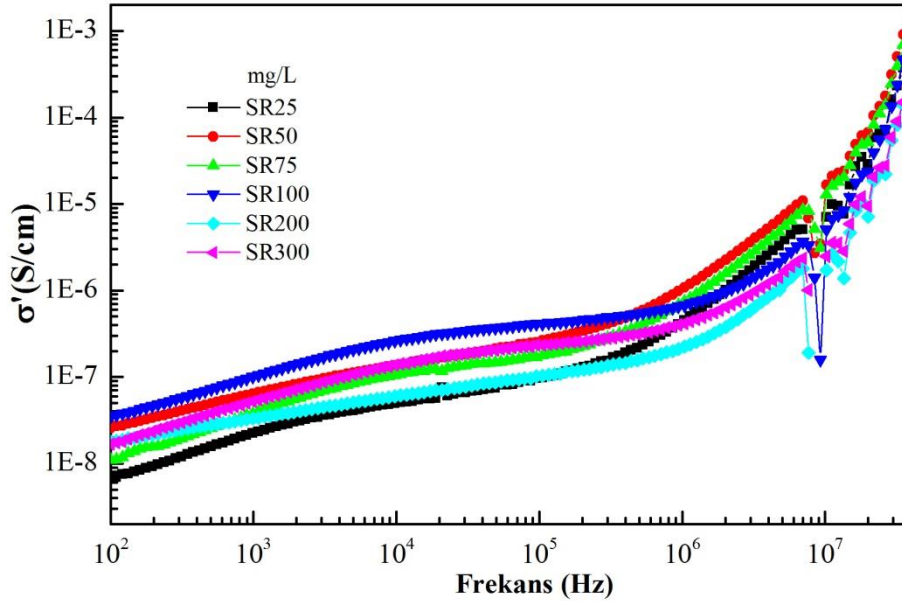
Şekil 4.28’ de farklı derişimlerde safranin (SR) boya katkılı hidrojellerin yüzey özdirencinin frekansla olan değişimine ait deneysel veriler sunuldu. Bu hidrojellerin yüzey özdirençlerinin artan frekansla birlikte (100 Hz–1 MHz frekans aralığında) önce yavaş yavaş azaldığı daha sonra da (1 MHz üzeri frekansta) hemen hemen doğrusal olarak azaldığı görüldü. Düşük frekans bölgesinde en yüksek yüzey özdirencin 25 mg/L boya katkılı hidrojele, en düşük yüzey özdirencin ise 100 mg/L boya yüklü hidrojele ait olduğu tespit edildi. Bu durumun SR boya katkılı hidrojellerin karmaşık empedansının ve kapasitansının frekansla olan değişimleriyle uyumlu olduğu saptandı. Diğer taraftan yüksek frekans bölgesinde en yüksek yüzey özdirencinin 200 mg/L boya katkılı hidrojele, en düşük yüzey özdirencinin ise 50 mg/L boya katkılı hidrojele ait olduğu görüldü.



Şekil 4.28. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojellerin yüzey özdirencinin frekansla değişimi

Buradan hareketle boya katkılı hidrojellerin yüzey özdirencinin frekansla gelişiminin kapasitansının frekansla olan gelişimiyle ters sonuçlar verdiği saptandı. Bu iki durum beraber değerlendirildiğinde düşük frekans bölgesinde 100 mg/L boya katkılı hidrojelin, yüksek frekans bölgesinde ise 50 mg/L boya yüklü hidrojelin en yüksek iyonik iletkenliğe sahip olması gerektiği sonucuna varıldı. Ayrıca düşük frekans bölgesinde elektrot polarizasyon etkiden dolayı SR boya katkılı hidrojellerin yüzey özdirençlerinin yüksek değerler aldığı saptandı. Yüksek frekans bölgesinde ise dielektrik durulma olgusundan ötürü boya katkılı hidrojellerin yüzey özdirençlerinin düşük değerler aldığı belirlendi (Weiler ve Chaussidon, 1968; Souza Jr. vd., 2008; Lim vd., 2002; Okutan vd., 2015; Yalçın vd., 2013; Jones vd., 1997; Webster, 2014; Wu vd., 2005; Németh vd., 2003).

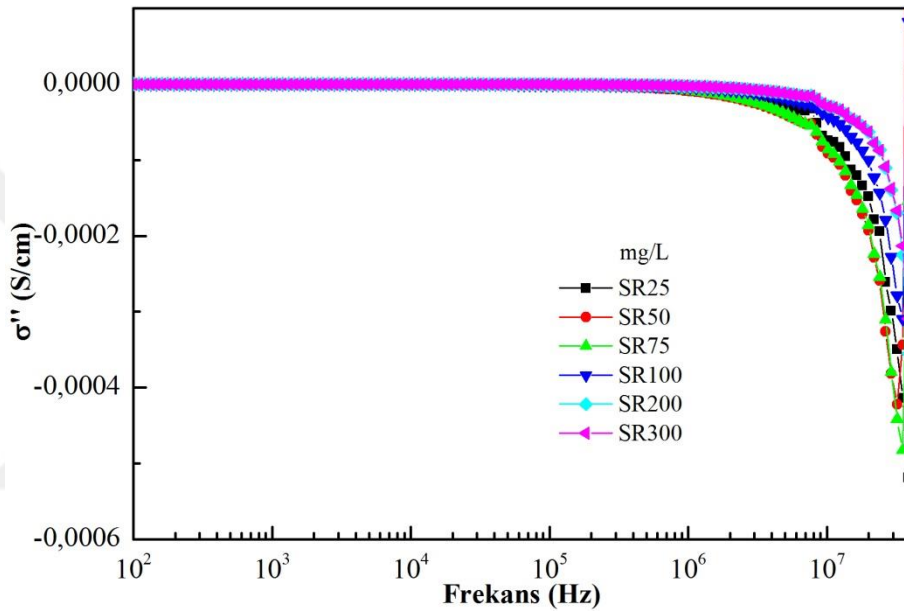
Şekil 4.29' da farklı derişimlerde safranin (SR) boya katkılı hidrojellerin karmaşık iyonik iletkenliğinin gerçek ($\sigma'(\omega)$) kısmının frekansla deęişiminin deneysel sonuçları geniş bir frekans aralığında verildi. Bu hidrojellerin $\sigma'(\omega)$ deęerlerinin artan frekansla birlikte üstel olarak arttığı belirlendi. Bu artışın 10^2 Hz– 10^6 Hz frekans aralığında yavaş, 10^6 Hz üzeri frekanslarda ise hızlı olduğu tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde $\sigma'(\omega)$ ' nün en yüksek deęerinin 100 mg/L katkılı hidrojele, en düşük deęerinin ise 25 mg/L boya katkılı hidrojele ait olduğu saptandı. Yüksek frekans bölgesinde ise ara yüzey etkileşimlerden kaynaklanan derişime baęlı dalgalanmalardan dolayı $\sigma'(\omega)$ ' nün en yüksek deęerinin 50 mg/L katkılı hidrojele, en düşük deęerinin ise 200 mg/L boya katkılı hidrojele ait olduğu belirlendi.



Şekil 4.29. Farklı derişimlerde safranin boya katkıli hidrojelilerin karmaşık iyonik iletkenliğinin gerçek kısmının frekansla deęişimi

Düşük ve yüksek frekans bölgesinde numunelerin en düşük ve en yüksek $\sigma'(\omega)$ değerlerinin daha önce Şekil 4.28' de verilen yüzey özdirenci ile ters çalıştığı tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde farklı derişimlerde SR boya katkıli hidrojelilerin $\sigma'(\omega)$ değerinin SR boya iyonlarının oluşturduğu serbest yük polarizasyonu ve ara yüzeylerde oluşan empedans etkiden dolayı düşük değerler aldığı belirlendi. Artan frekansla birlikte serbest yük polarizasyon ve ara yüzey empedans etkisinin giderek azaldığı, SR boya iyonlarının hareket edebilme kabiliyetinin arttığı saptandı. Dolayısıyla bu bölgede $\sigma'(\omega)$ değerlerinin artan frekansla arttığı tespit edildi. Genellikle düşük frekans bölgesinde artan boya iyonu derişimi ile $\sigma'(\omega)$ değerinin arttığı görüldü. Bu genel davranışa 75 ve 200 mg/L katkıli numunelerin uymadığı tespit edildi. Ayrıca farklı derişimlerde SR boya katkıli hidrojelilerin $\sigma'(\omega)$ değerlerinin boya iyonu derişimi bir maksimum seviyeye ulaştıktan sonra tekrar azaldığı görüldü. Bu azalışın, boya iyonları ile elektrotlar arasındaki derişime bağlı etkileşimlerin farklı oluşundan kaynaklandığı tespit edildi. Başka bir deyişle belli bir boya derişimine ulaştıktan sonraki iyonik iletkenliğin SR boya iyonlarının sayısına göre değil, iyon iletim yolunun engelsiz oluşuna göre değerler aldığı saptandı (Gogulamurali vd., 1992; Bordi vd., 2007; Capaccioli vd., 1998; Sredić vd., 2008; Venkateswarlu ve Satyanarayana, 1998; Nam vd., 2004; Chen vd., 2000; Ogihara vd., 2004; Raghasudha vd., 2013; Minami, 1985; Baskaran vd., 2006; Liew vd., 2012; MacCallum ve Vincent, 1988).

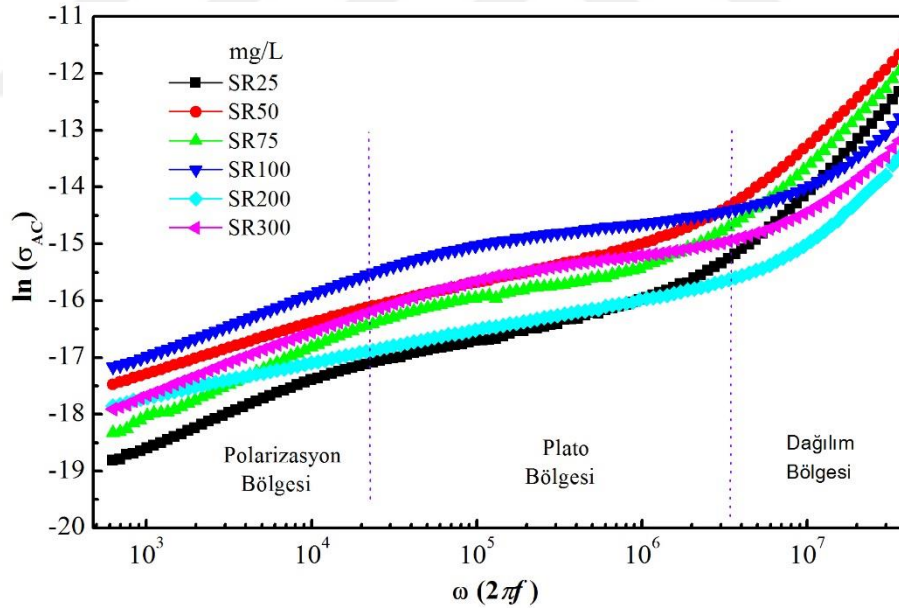
Farklı derişimlerde safranin (SR) boya katkıli hidrojjelerin karmaşık iyonik iletkenliğinin sanal kısmının ($\sigma''(\omega)$) frekansla deęişimine ait deneysel veriler Şekil 4.30' da gösterildi. Bu numunelerin $\sigma''(\omega)$ deęerlerinin 10^2 Hz– 10^6 Hz frekans aralığında frekanstan tamamen bağımsız davrandığı ve sıfır deęerinde olduğu tespit edildi. Bu bölgede $\sigma''(\omega)$ deęerlerinin sıfır deęerinde olmasının en önemli nedeninin bu bölgede SR boya iyonlarının oluşturduğu yüksek kapasitif etki olduğu belirlendi. Frekans deęerinin 10^6 Hz üzerine çıktığı bölgelerde ise tüm numunelerin $\sigma''(\omega)$ deęerlerinin monotonik olarak azaldığı belirlendi.



Şekil 4.30. Farklı derişimlerde safranin boya katkıli hidrojjelerin karmaşık iyonik iletkenliğinin sanal kısmının frekansla deęişimi

SR boya katkıli hidrojjelerin artan frekansla birlikte dielektrik durulma yaşamaları bu azalışın en temel nedeni olarak saptandı. Bu bölgede $\sigma''(\omega)$ ' nün en düşük deęerinin 50 mg/L katkıli hidrojele, en yüksek deęerinin ise 200 mg/L katkıli hidrojele ait olduğu tespit edildi. Bu durumun aynı bölge için SR boya katkıli hidrojjelerin faz açısının derişime baęlı deęişimiyle uyumlu olduğu saptandı. Diğer taraftan bu bölgede $\sigma''(\omega)$ deęerinin frekansla deęişiminin, faz açısının frekansla olan deęişimiyle ters çalıştığı ve artan frekansla azaldığı tespit edildi (Venkateswarlu vd., 2000; Kar ve Choudhary, 2002; Kashyap vd., 2012; Farea vd., 2008; León vd.,2001; Ratner ve Shriver, 1988; Harris, 1983).

Farklı derişimlerde safranin (SR) boya yüklü hidrojenlerin logaritmik iyonik iletkenliğinin ($\ln(\sigma_{AC})$) geniş bir frekans aralığındaki deęişimine ait deneysel sonuçlar Şekil 4.31’ de verildi. Bu numunelerin $\ln(\sigma_{AC})$ ’ nin 10^3 Hz–40 MHz aralığındaki frekansla olan deęişimi düşük frekans bölgesinde polarizasyon, orta frekans bölgesinde plato ve yüksek frekans bölgesinde dağılım bölgesi olmak üzere üç ayrı kısma ayrılarak verildi. Uygulanan dış elektrik alan yönünde SR boya iyonlarının polarize olması ile oluşan elektrot polarizasyon etkinin yaşandığı polarizasyon bölgesinde en yüksek logaritmik iyonik iletkenliğin 100 mg/L, en düşük logaritmik iyonik iletkenliğin ise 25 mg/L SR boya katkılı hidrojele ait olduğu görüldü. Bu bölgede elektrot ve elektrot ara yüzeyde SR boya iyonlarının daha fazla birikmesinden dolayı iyonik iletkenliğin giderek azaldığı belirlendi. Yani bu polarizasyon bölgesinde SR boya iyonları uygulanan dış elektrik alanın etkisinde kalarak elektrot ve elektrot ara yüzeyde polarize olduğu ve serbest olarak hareket edemediği tespit edildi. Orta frekans plato bölgesinde tüm numunelerin $\ln(\sigma_{AC})$ deęerlerinin hemen hemen frekanstan bağımsız davranma eğiliminde olduğu ve DC iletkenliğe (σ_{DC}) eşit iletkenlik gösterdiği tespit edildi.



Şekil 4.31. Farklı derişimlerde safranin boya katkılı hidrojenlerin logaritmik iyonik iletkenliğinin ($\ln\sigma_{ac}(\omega)$) frekansla deęişimi

İyonik iletkenliğin artan frekansla arttığı dağılım bölgesinde ise, SR boya katkılı hidrojenlerin tüm derişimleri için $\ln(\sigma_{AC})$ deęerinin artan frekansla birlikte arttığı saptandı. SR boya iyonlarının elektrot ve elektrot ara yüzeyde mobilitesinin yüksek olması bu bölgedeki $\ln(\sigma_{AC})$ deęerlerinin artmasının temel nedeni olarak belirlendi

(Jonscher, 1977; Ingram, 1989; Hench ve West, 1990; Jonscher, 1980). Her bir SR derişimi için iletim mekanizması hakkında bilgi veren frekans üs (s) değerleri, Denklem (2.30) ile verilen, $\ln(\sigma_{ac}) - \ln(\omega)$ eğrilerinin eğimi ile polarizasyon, plato ve dağılım bölgelerinde ayrı ayrı hesaplandı. Hesaplanan s parametreleri Çizelge 4.4' de verilmektedir. 25 mg/L SR katkılı hidrojel için polarizasyon, plato ve dağılım bölgelerindeki s değerleri sırasıyla 1,17, 0,72 ve 3,04 olarak bulundu. Buradan hareketle 25 mg/L SR katkılı hidrojin polarizasyon bölgesinde iletim mekanizmasının süper doğrusal güç kanunu (Super Linear Power Law/SLPL) ilişkili olduğu tespit edildi. Aynı numunenin plato bölgesindeki iletim mekanizmasının kuantum mekanik tünel (Quantum Mechanical Tunneling/QMT) mekanizmasıyla ilişkili olduğu belirlendi. 25 mg/L SR katkılı hidrojin dağılım bölgesindeki iletim mekanizmasının ise yine süper doğrusal güç kanunu (Super Linear Power Law/SLPL) ilişkili olduğu saptandı. 200 mg/L SR katkılı hidrojel için polarizasyon, plato ve dağılım bölgelerindeki s değerleri sırasıyla 0,61, 0,53 ve 2,41 olarak hesaplandı. Bu numune için polarizasyon ve plato bölgelerindeki iletim mekanizmasının ilişkili bariyer atlamalı (Correlated Barrier Hopping/CBH) mekanizmasıyla ilişkili olduğu tespit edildi. Aynı numune için dağılım bölgesindeki iletim mekanizmasının ise süper doğrusal güç kanunu (Super Linear Power Law/SLPL) ilişkili olduğu saptandı. Bunlara ilave olarak sadece 100 mg/L SR katkılı hidrojin polarizasyon bölgesindeki iletim mekanizmasının neredeyse sürekli kayıp (Nearly Constant Loss/NCL) mekanizmasıyla bağlantılı olduğu belirlendi (Tiwari vd., 2013; Elliot, 1994; Ke vd., 2010; Cramer and Buscher, 1998; Tiwari ve Shahi, 2005; Canli vd, 2017; Kılıç vd., 2018).

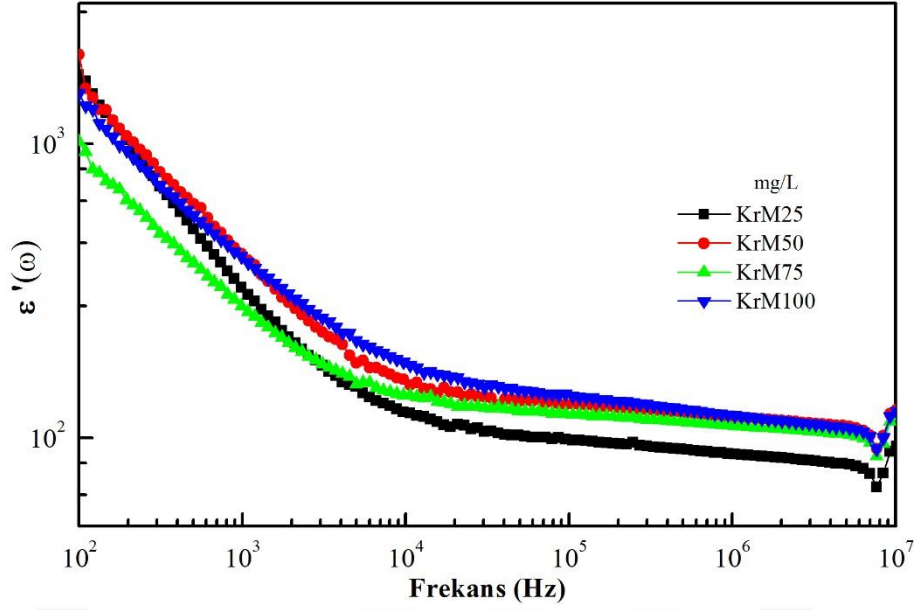
Çizelge 4.4. SR boya katkılı hidrojinlerin hesaplanan s - parametre değerleri

Numune mg/L	Polarizasyon Bölgesi		Plato Bölgesi		Dağılım Bölgesi	
	s	Model	s	Model	s	Model
SR25	1,17	SLPL	0,72	QMT	3,04	SLPL
SR50	0,89	QMT	0,68	CBH	2,76	SLPL
SR75	1,26	SLPL	0,56	CBH	2,85	SLPL
SR100	1,08	NCL	0,42	CBH	1,82	SLPL
SR200	0,61	CBH	0,53	CBH	2,41	SLPL
SR300	1,11	SLPL	0,48	CBH	1,94	SLPL

4.5 Kristal Mor Boya Katkılı Hidrojellerin Empedans Spektroskopisi Analizi

Farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) kristal-mor boya iyonları katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitin gerçek kısmı, dielektrik sabitin sanal kısmı, tanjant faktörü, dielektrik sabitin düzlem çizğileri, rezistans, reaktans, empedans, faz açısı, karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmı, elektrik modülünün sanal kısmı, elektrik modülünün düzlem çizğilerinin Smith Chart uygulaması, kapasitans, yüzey özdirenci, karmaşık iyonik iletkenliğinin gerçek kısmı ve iyonik iletkenliğinin sanal kısmının frekansla gelişimleri 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 4.42, Şekil 4.43, Şekil 4.44, Şekil 4.45 ve Şekil 4.46' da verildi. Farklı derişimdeki kristal-mor boya iyonu katkılı bu numunelerin frekansla gelişimine etki eden tüm dielektrik mekanizmaları düşük ve yüksek frekans bölgeleri başta olmak üzere önemli frekans değerlerinde ayrıntılı bir şekilde incelendi. Bu malzemelerin mikro-biyal yakıt hücre ve organik elektronik devre uygulamalarının hangi koşullar altında olacağı tespit edildi.

Şekil 4.32' de farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) kristal-mor boya katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitin gerçek kısmının ($\epsilon'(\omega)$) frekansla değişimine ait deneysel sonuçlar gösterildi. Bu numunelerin $\epsilon'(\omega)$ değerinin 10^2 Hz– 10^4 Hz frekans aralığında artan frekansla birlikte neredeyse doğrusal olarak azaldığı, daha yüksek frekanslarda ise yavaşça azaldığı hatta frekanstan bağımsız davranma eğiliminde olduğu belirlendi. Katkılı hidrojellerin derişime bağlı $\epsilon'(\omega)$ değerinin kristal-mor boya katyonları ile hidrojellerin bantları arasında oluşan ara yüzey etkileşimlerden kaynaklanan dalgalı bir davranış sergilediği saptandı. Frekansın düşük olduğu bölgede $\epsilon'(\omega)$ ' nün en yüksek değerinin 25 mg/L, en düşük değerinin ise 75 mg/L kristal-mor boya katkılı hidrojele ait olduğu tespit edildi. Artan frekansla birlikte $\epsilon'(\omega)$ ' nün en yüksek değerinin 100 mg/L, en düşük değerinin ise 25 mg/L kristal-mor boya katkılı hidrojele ait olduğu belirlendi. Yüksek frekans bölgesinde ise $\epsilon'(\omega)$ ' nün en düşük değerinin yine 25 mg/L, en yüksek değerinin ise bu kez 50 mg/L katkılı hidrojele ait olduğu saptandı.

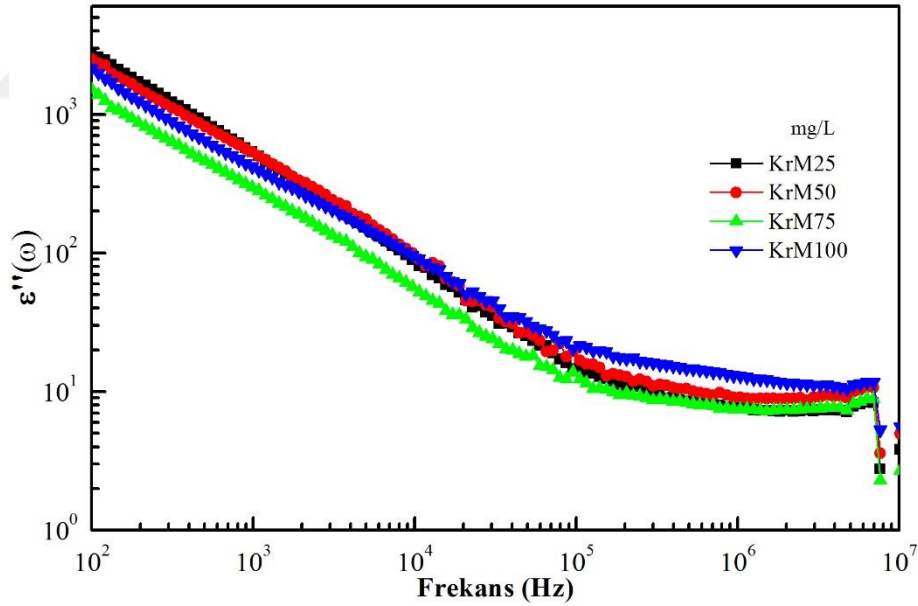


Şekil 4.32. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojelilerin karmaşık dielektrik sabitinin gerçek kısmının frekansla deęişimi

Düşük frekans bölgesinde katkılı hidrojellerin $\epsilon'(\omega)$ deęerinin boya iyonlarının elektrot-elektrolit ara yüzeyde uygulanan dış elektrik alan yönünde polarize olmaları ile oluşan elektrot polarizasyon etkiden dolayı yüksek olduęu belirlendi. Bu bölgede hidrojel kanallar içinde güçlü boya iyonu daęılımına baęlı olarak yoğun elektrot polarizasyon olduęu ve $\epsilon'(\omega)$ ' nün yüksek deęerler aldıęı saptandı. Yüksek frekans bölgesinde uygulanan alanın hızlı periyodik ters çevrimi nedeniyle tüm numunelerin yüksek $\epsilon'(\omega)$ deęeri almasını saęlayan elektrot polarizasyon etkisinin ortadan kalktıęı ve boya iyonlarının hidrojel kanalları içindeki difüzyonunun (ion migration) arttıęı tespit edildi. Başka bir ifadeyle yüksek frekans bölgesinde uygulanan alanın periyodik ters çevriminin çok hızlı olması sebebiyle boya iyonlarının dış alan yönünde yönelim için gerekli zamanı bulamadıkları ve buna baęlı olarak $\epsilon'(\omega)$ deęerlerinin giderek azaldıęı saptandı. Yüksek frekans bölgesinde Maxwell (Maxwellian) sistemi içindeki iyonik iletkenlięin ve viskoelastik dinamiklięin artmasıyla boya katkılı hidrojellerin $\epsilon'(\omega)$ deęerinin azaldıęı belirlendi. Bu bölgedeki düşük $\epsilon'(\omega)$ deęerinin alandaki salınımın çok hızlı olmasından ve hidrojel kanallar içindeki boya iyonu hareketlilięini yöneten zayıf geri yükleme kuvvetinden kaynaklandıęı tespit edildi. Ayrıca yine bu bölgede dipollerin kendilerini alanın yönünde hizalayabilmelerinin mümkün olamadıęı için $\epsilon'(\omega)$ ' nün düşük deęerler aldıęı saptandı. Bu sonuçlardan hareketle yüksek frekansta düşük $\epsilon'(\omega)$ deęerinin Kroop'un teorisi ve Maxwell-Wagner yaklařımı ile açıklanabileceęi sonucuna varıldı. Buna ilaveten yine bu bölgede yařanan dielektrik durulma nedeniyle tüm

malzemelerin $\varepsilon''(\omega)$ değerinin giderek azaldığı görüldü. (Brohede vd., 2005; Zanten ve Rufener, 2000; Grimm vd., 2011; Rodríguez ve Salinas-Rodríguez, 1988; Zwanzig ve Bixon, 1970; Masci ve Cametti, 2009; Scaife, 1989; Manohar vd., 2011; Dixon, 1990; Ferry, 1948; Gemant, 1935; Tsangaris vd., 1991; Adachi ve Urakawa, 2002; Roy v., 2013; Singh vd., 2017; Maji vd., 2015; Akhtar vd., 2018; Maji ve Choudhary, 2017).

Farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) kristal-mor boya katkıli hidrojjelerin karmaşık dielektrik sabitin sanal kısmının ($\varepsilon''(\omega)$) frekansla deęişimine ait deneysel sonuçlar Şekil 4.33' de verildi. Artan frekansla birlikte bu hidrojjelerin $\varepsilon''(\omega)$ deęerinin 10^4 Hz frekans deęerine kadar doğrusal daha yüksek frekans deęerlerinde ise neredeyse frekanstan bağımsız olarak davranış sergilediđi belirlendi. Kristal-mor boya katkıli hidrojjelerin derişime bađlı $\varepsilon''(\omega)$ deęerinin hidrojjelerin bantları ile kristal-mor boya iyonları arasında oluşan ara yüzey etkileşimlerden kaynaklanan dalgali bir tutum sergilediđi tespit edildi. Bu dalgali tutumun, genelde 10^3 Hz– 10^6 Hz frekans aralıđında yaşandıđı görüldü.

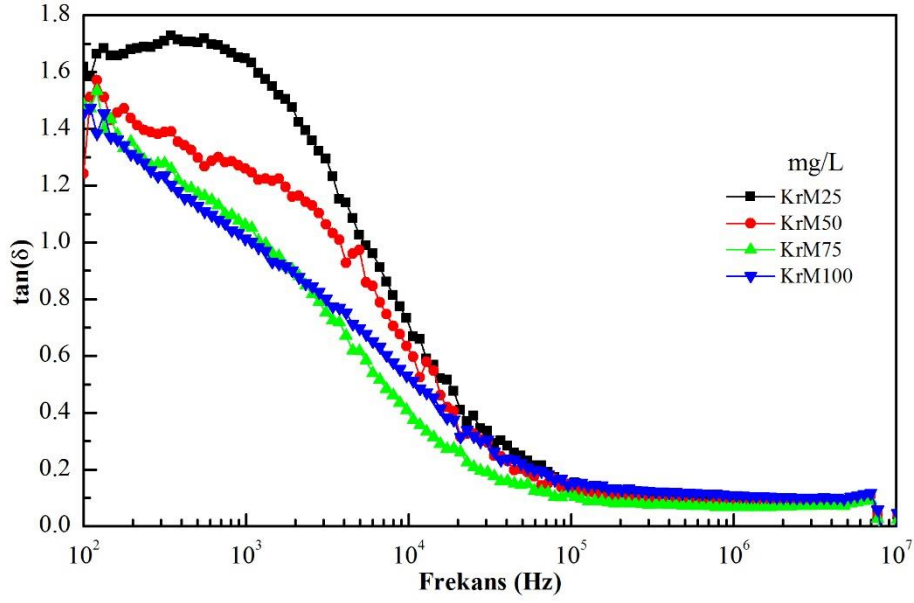


Şekil 4.33. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkıli hidrojjelerin karmaşık dielektrik sabitin sanal kısmının frekansla deęişimi

Düşük frekans bölgesinde derişime bađlı olarak yaşanan dalgalanmadan dolayı $\varepsilon''(\omega)$ ' nün en düşük deęerinin 75 mg/L, en yüksek deęerinin ise 25 mg/L kristal-mor boya katkıli hidrojele ait olduđu belirlendi. 75 mg/L katkıli hidrojelde boya iyonu ile hidrojjelin arasında yaşanan ara yüzey etkileşimlerin en az olmasından dolayı $\varepsilon''(\omega)$ ' nün

en düşük değeri aldığı tespit edildi. Bu bölgede dielektrik durulma sürecini engelleyen dc iletkenlik etkisinden dolayı numunelerin $\varepsilon''(\omega)$ değerlerinin yüksek olduğu belirlendi. Ayrıca yine bu bölgede boya iyonlarının hidrojel kanallar arasındaki asimetrik atlayışlarının bölgede $\varepsilon''(\omega)$ değerlerinin yüksek olmasını sağlayan dipolar polarizasyona katkı sağladığı belirlendi. Yüksek frekans bölgesinde ise derişime bağı dalgalanmanın neticesinde $\varepsilon''(\omega)$ ' nün en yüksek değerinin 100 mg/L katkılı hidrojele, en düşük değerinin ise 25 mg/L katkılı hidrojele ait olduğu tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde bu malzemelerin $\varepsilon''(\omega)$ değerinin boya iyonu katkılı hidrojellerin elektrotlarında oluşan elektrot polarizasyonunun etki nedeniyle yüksek değer aldığı belirlendi. Artan frekansla birlikte periyodik ters çevrimin çok hızlı olmasına bağı olarak boya iyonlarının alan yönündeki yöneliminin yavaşladığı ve akabinde elektrot-elektrolit ara yüzeyinde biriken boya iyonlarının yoğunluğunun azaldığı belirlendi. Dolayısıyla yüksek frekans bölgesinde uygulanan alanın periyodik ters çevriminin çok hızlı olması nedeniyle kristal-mor boya iyonlarının uygulanan dış elektrik alan yönünde yönelim fırsatı bulamadığı ve katkılı hidrojellerin $\varepsilon''(\omega)$ değerlerinin giderek azaldığı tespit edildi. Ayrıca bu bölgede tüm numunelerin $\varepsilon''(\omega)$ değerinin dielektrik durulmanın, boya iyonlarının mobilitesinin ve vizko-elastik dinamiklerinin ortaklaşa katkılarından dolayı düşük değerler aldığı tespit edildi. Ayrıca Kroop'un teorisi ve Maxwell-Wagner yaklaşımının $\varepsilon''(\omega)$ ' nün yüksek frekans bölgesinde düşük değerler almasında etkin rol oynadığı belirlendi. Yani bölgede dielektrik durulmaya bağı olarak $\varepsilon''(\omega)$ ' nün değeri üzerine dipolar polarizasyon katkının giderek azaldığı tespit edildi (Mahmoodi vd., 2012; Xu vd., 2014; Singh vd., 2017; Xu vd., 2014; Mahmoodi vd., 2012; Dutta ve Biswas, 2002; Mishra ve Rao, 1998; Armstrong vd., 1974; Dyre, 1991; Kumar vd., 2009; Venkateswarlu vd., 2000; Mansour, 2005; Maji vd., 2015; Akhtar vd., 2018).

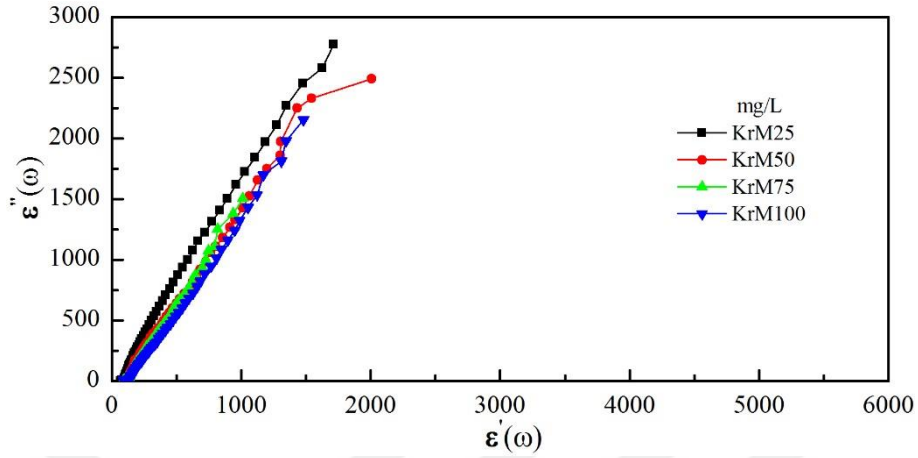
Şekil 4.34' de farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) kristal-mor boya katkılı hidrojellerin tanjant faktörünün ($\tan(\delta)$) geniş bir frekans aralığındaki değışimine ait deneysel sonuçlar verildi. Bu numunelerin $\tan(\delta)$ değerinin 10^2 Hz– 10^4 Hz frekans aralığında anormal bir davranış sergilediğı, bu bölgede genellikle artan frekansla hemen hemen doğrusal olarak azaldığı lakin 10^5 Hz üzeri frekanslarda neredeyse frekanstan bağımsız davrandığı belirlendi. Düşük frekans bölgesinde alternatif bir davranış olarak 25 mg/L boya katkılı hidrojelin $\tan(\delta)$ değerinin, diğder derişimlerdeki katkılı hidrojellere göre farklı davrandığı ve bir tepe değerine sahip olduğu tespit edildi.



Şekil 4.34. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkıli hidrojjelerin tanjant faktörünün frekansla deęişimi

Ayrıca bu bölgede boya katkıli hidrojjelerin $\tan(\delta)$ deęerinin genellikle artan boya derişimi ile giderek azaldığı saptandı. Bu derişime baęlı azalışa 75 mg/L boya katkıli hidrojjelin aykırı davrandığı belirlendi. Orta frekans bölgesinde 75 ile 100 mg/L boya katkıli hidrojjelerin $\tan(\delta)$ deęerinin kendi aralarında bir dalgalı davranış sergiledikleri saptandı. Düşük frekans bölgesinde $\tan(\delta)$ ' nun en düşük ve en yüksek deęerlerinin sırasıyla 100 ve 25 mg/L kristal-mor boya katkıli hidrojjelere ait olduğu belirlendi. Yüksek frekans bölgesine gelindiğinde ise farklı derişimlerde tüm numunelerin $\tan(\delta)$ deęerinin sıfıra gitmeye meyilli olduğu görüldü. Bu bölgede $\tan(\delta)$ ' nun en düşük ve en yüksek deęerlerinin sırasıyla 75 ve 100 mg/L kristal-mor boya katkıli hidrojjelere ait olduğu tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde görülen ara yüzey ve elektrot polarizasyon etki nedeniyle tüm numunelerin $\tan(\delta)$ deęerinin yüksek olduğu belirlendi. Yüksek frekans bölgesinde kristal-mor boya katkıli hidrojjelerin $\tan(\delta)$ deęerinin dielektrik durulma mekanizmasının, dipollerin durulmasının, boya iyonlarının mobilitesinin, rotasyon hareketindeki moleküler titreşiminin, artan iyonik iletimin ve Brown hareketinin ortaklaşa etkilerinden ötürü azaldığı saptandı. Yine bu bölgede boya iyonlarının uygulanan dış alan doğrultusunda hizalanabilecek gerekli zamanı bulamadıkları için numunelerin tanjant faktörünün düşük deęerler aldığı tespit edildi. Yani bu bölgede dielektrik iletim mekanizmasını kontrol eden polarizasyon etkisinin oluşmadığı belirlendi (Ram vd., 2008; Ramesh vd., 2011; Singh vd., 2001; Kar ve

Choudhary, 2002; Roy vd., 2013; Mansour, 2005; Heikes ve Johnston, 1957; Venkataraju vd., 2010).

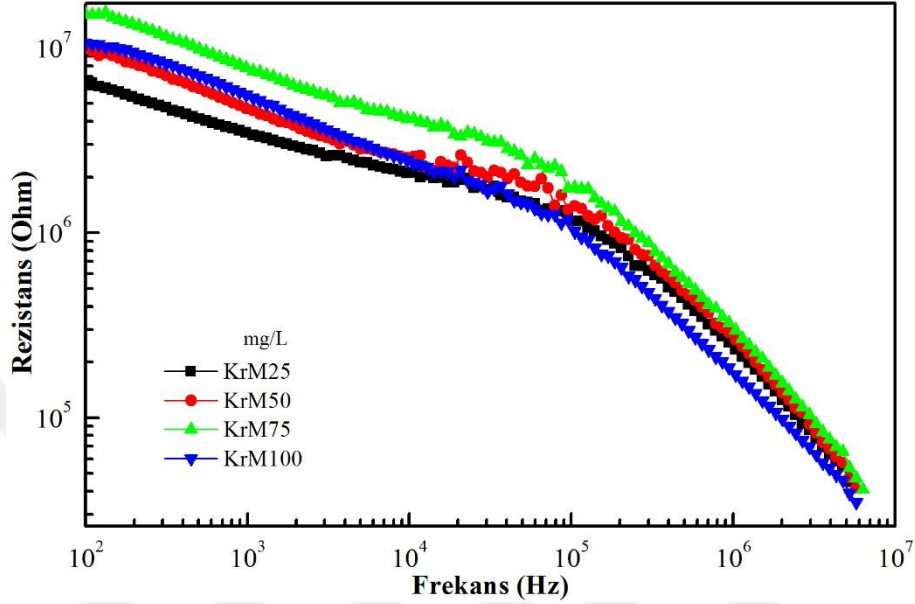


Şekil 4.35. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojelilerin karmaşık dielektrik sabitinin Cole–Cole düzlem çizgileri

Şekil 4.35’ de farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) kristal-mor boya katkılı hidrojelilerin karmaşık dielektrik sabitinin Cole–Cole çizgilerinin frekansla deęişimine ait deneysel sonuçlar gösterildi. Frekansın düşük olduęu bölgelerde bu hidrojelilerin düzlem çizgilerinin ($\epsilon''(\omega)-\epsilon'(\omega)$) elektrot ve boya katkılı hidrojel arasındaki ara yüzeyde oluşan kapasitif etkiden kaynaklandıęı belirlendi. Yüksek frekans bölgesinde malzemelerin Cole–Cole çizgilerinin oluşmasını sağlayan tane sınırlarından kaynaklanan direnç etkisinin oluşmadıęı görüldü. Bu bölgede hidrojelilerin çapraz baę yoğunluğunun ve kristal-mor boya iyon derişiminin Cole–Cole çizgilerinin oluşmasını sağlayacak düzeyde olmamasından dolayı direnç etkisinin görülmedięi belirlendi. Dięer bir ifadeyle yüksek frekans bölgesinde numuneler üzerinde direnç etkisinin oluşmamasından dolayı eşdeęer bir elektrik devresine (RC) karşılık gelen düzlem çizgilerinin oluşmadıęı tespit edildi (Cole ve Cole, 1941; Sengwa vd., 2000; Afzal vd., 2010; Küçükçelebi vd., 2012; Shinyashiki ve Yagihara,1999).

Farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) kristal-mor boya katkılı hidrojelilerin karmaşık empedansın gerçek kısmının (rezistansın) frekansla olan deęişimine ait deneysel sonuçlar Şekil 4.36’ da verildi. Bu katkılı hidrojelilerin rezistans deęerlerinin 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans aralıęında yavaşça ve daha yüksek frekanslarda ise neredeyse doęrusal olarak azaldıęı tespit edildi. 10^4 Hz– 10^5 Hz frekans aralıęında numunelerin rezistans deęerlerinin bulk yapıdan ziyade yüzey yapının baskın olduęu bir geçiş

bölgesinden etkilendiği görüldü. Ayrıca bu geçiş bölgesinde numunelerin derişime bağı rezistans deęerinin hidrojenlerin bantları ile kristal-mor boya iyonları arasında oluřan ara yüzey etkileřimlerden kaynaklanan dalgalı bir davranıř (fluctuation behavior) sergilediđi tespit saptandı.

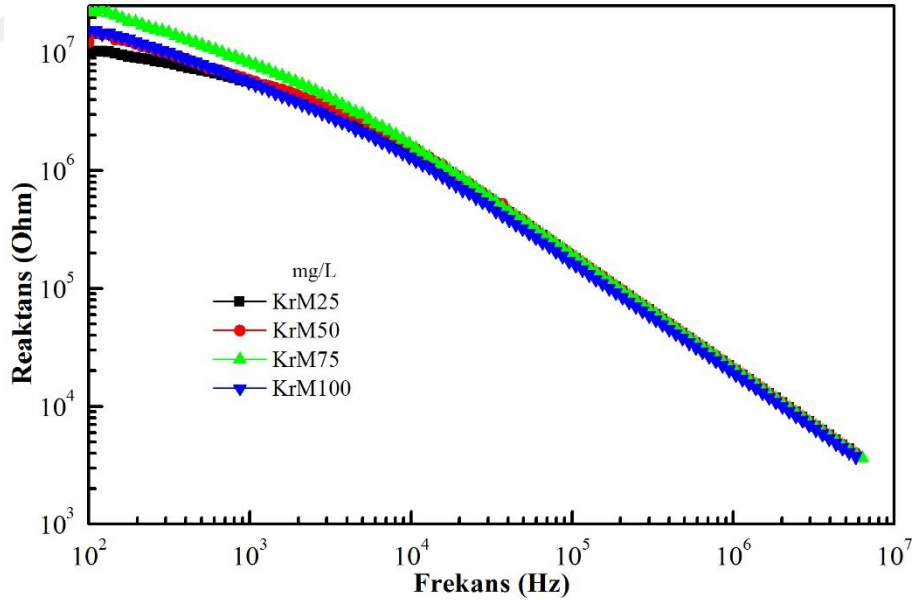


Şekil 4.36. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkıli hidrojenlerin empedansının gercek kısmının frekansla deęiřimi

Düşük frekans bölgesinde kristal-mor boya katkıli hidrojenlerin rezistansının en yüksek deęerinin 75 mg/L, en düşük deęerinin ise 25 mg/L katkıli hidrojenle ait olduđu belirlendi. Yüksek frekans bölgesinde ise numunelerin rezistans deęerleri arasındaki farkın giderek azaldığı ve birbirlerine çok yakın deęerler aldıđı saptandı. Bu bölgede numunelerin rezistansının en yüksek deęerinin yine 75 mg/L katkıli hidrojenle, en düşük deęerinin ise bu kez 100 mg/L katkıli hidrojenle ait olduđu tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde, elektrot polarizasyon etkisinden dolayı tüm numunelerin rezistans deęerlerinin yüksek olduđu saptandı. Ayrıca bu elektrot polarizasyon etki nedeniyle düşük frekans bölgesinde boya katkıli hidrojenlerinin yüksek kapasitif etkiye sahip olacađı sonucuna varıldı. 10^4 Hz– 10^5 Hz frekans aralıđında tüm numunelerinin rezistans deęerinin dielektrik durulma mekanizmasından etkilendiđi saptandı. Frekansın yüksek deęerler aldıđı bölgede malzemelerin rezistansının yüksek deęerler almasını sađlayan elektrot polarizasyonun etkisini giderek kaybettiđi dolayısıyla yüksek kapasitif olgunun bu bölgede azaldığı tespit edildi. Bu bölgede azalan kapasitif olgu nedeniyle kristal-mor boya katkıli hidrojenlerinin rezistansının düşük deęerler aldıđı

görüldü. Diğer taraftan 10^5 Hz üzeri frekans bölgesinde numunelerin rezistans değerinin doğrusal olarak azalmasının nedeni bu bölgede iyonik iletkenliğinin artması olarak belirlendi (Wang ve Dong, 2007; Okutan vd., 2015; Sengwa ve Sankhla, 2007b; Padmasree vd., 2006; Saha vd., 2017; Pokhriyal ve Biswas, 2016; Cava vd., 1984; Rao vd., 2006).

Şekil 4.37’ de farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) kristal-mor boya katkılı hidrojenlerin karmaşık empedansın sanal kısmının (reaktans) frekansla olan değişimine ait deneysel sonuçlar gösterildi. Bu hidrojenlerin reaktansının 10^4 Hz frekans üzeri frekanslarda hemen hemen doğrusal olarak azaldığı saptandı. Frekansın düşük değerler aldığı bölgede katkılı hidrojenlerin reaktansının birbirlerine çok yakın değerler aldığı, bununla birlikte aralarında küçük fark olduğu tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde numunelerin reaktansının en düşük değerinin 25 mg/L, en yüksek değerinin ise 75 mg/L katkılı hidrojenle ait olduğu belirlendi. Frekans 10^4 Hz değerine ulaştığında farklı derişimlerde boya katkılı hidrojenlerin reaktans değerleri arasındaki farkın ortadan kalktığı ve hemen hemen birbirine eşit değerler aldığı tespit edildi.

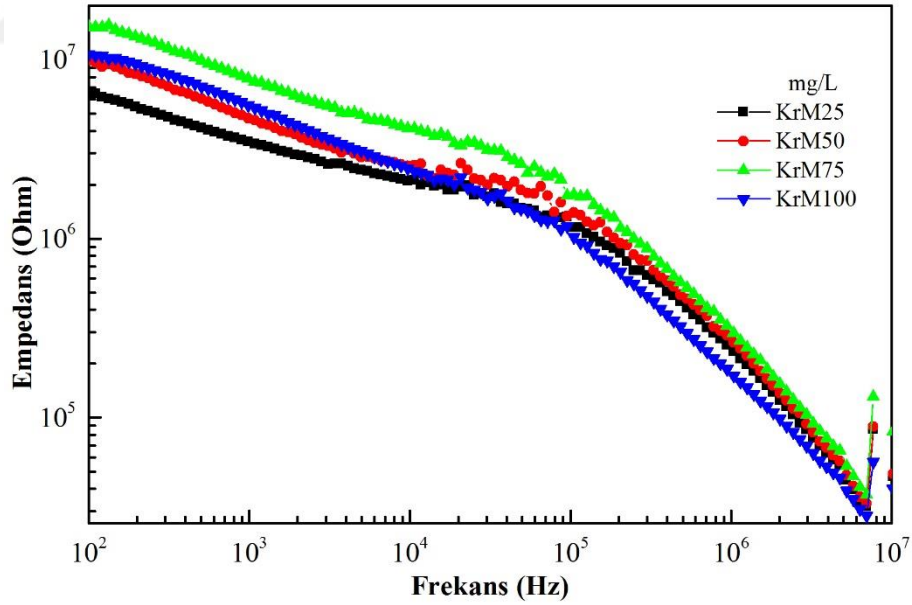


Şekil 4.37. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojenlerin empedansının sanal kısmının frekansla değişimi

Kristal-mor boya katkılı hidrojenlerin reaktansının azalan frekansla birlikte yüksek değerleri almasının nedeninin elektrot/elektrolit ara yüzeyde oluşan ara yüzey polarizasyon olduğu belirlendi. Yüksek frekans bölgesinde oluşan dielektrik durulma

sayesinde alana bağılı olarak polarize olan kristal-mor boya iyonlarının artık serbest hareket edebilir duruma geldiği bu nedenle de numunelerin reaktansının düşük değerler aldığı saptandı (Sengwa ve Sankhla, 2007a; Padmasree vd., 2006; Saha vd., 2017; Pokhriyal ve Biswas, 2016; Cava vd., 1984; Rao vd., 2006).

Farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) kristal-mor boya katkılı hidrojellerin empedansının frekansla gelişimine ait deneysel sonuçlar Şekil 4.38' de sunuldu. Kristal-mor boya katkılı hidrojellerin empedansın frekansa bağılı olan deęişiminin rezistansın frekansla olan deęişimine çok benzer davranışlar sergilediği tespit edildi. Bu numunelerin rezistans deęerinin 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında yavaşça, 10^5 Hz üzeri frekanslarda ise doğrusal olarak azaldığı belirlendi. Bu hidrojellerin empedans deęerinin 10^4 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında derişime bağılı bir dalgalanma davranışın sergilediği saptandı. Bu dalgalı davranışın kristal-mor boya iyonları ile hidrojellerin bantları arasında yaşanan ara yüzey etkileşimlerden kaynaklandığı belirlendi. Ayrıca bu bölgenin bir geçiş bölgesi olduğu tüm numunelerin empedans deęerinin bulk yapıdan deęil yüzey yapıdan etkilendiği tespit edildi.

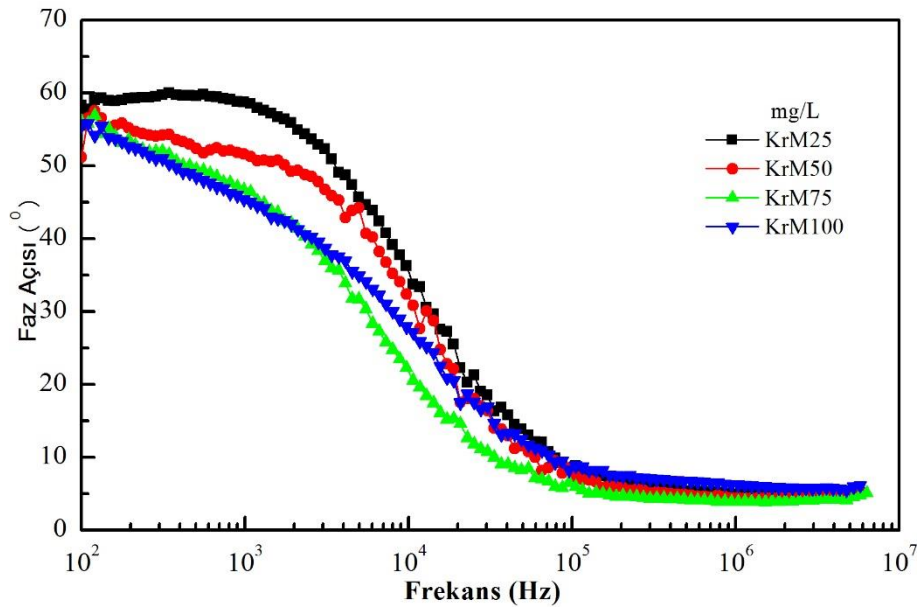


Şekil 4.38. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojellerin empedansının frekansla deęişimi

Düşük frekans bölgesinde numunelerin empedansının en yüksek deęerinin 75 mg/L, en düşük deęerinin ise 25 mg/L katkılı hidrojele ait olduğu görüldü. Artan frekans deęerleri ile birlikte boya katkılı hidrojellerin empedans deęerleri arasındaki farkın

giderek azaldığı ve birbirlerine çok yakın değerler aldığı belirlendi. Yüksek frekans bölgesinde numunelerin empedansının en yüksek değerinin 75 mg/L, en düşük değerinin ise 100 mg/L katkılı hidrojele ait olduğu tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde yaşanan elektrot polarizasyondan dolayı boya katkılı hidrojellerin empedansının yüksek değerler aldığı görüldü. Ayrıca bu bölgede oluşan elektrot polarizasyon etkiden dolayı tüm numunelerin yüksek kapasitif olguya sahip olacağı sonucuna varıldı. Yüksek frekans bölgesinde, yüksek kapasitif olgunun azalmasından dolayı numunelerin empedans değerlerinin azaldığı tespit edildi Wang ve Dong, 2007; Okutan vd., 2015; Sengwa ve Sankhla, 2007b; Padmasree vd., 2006; Saha vd., 2017; Pokhriyal ve Biswas, 2016; Cava vd., 1984; Rao vd., 2006).

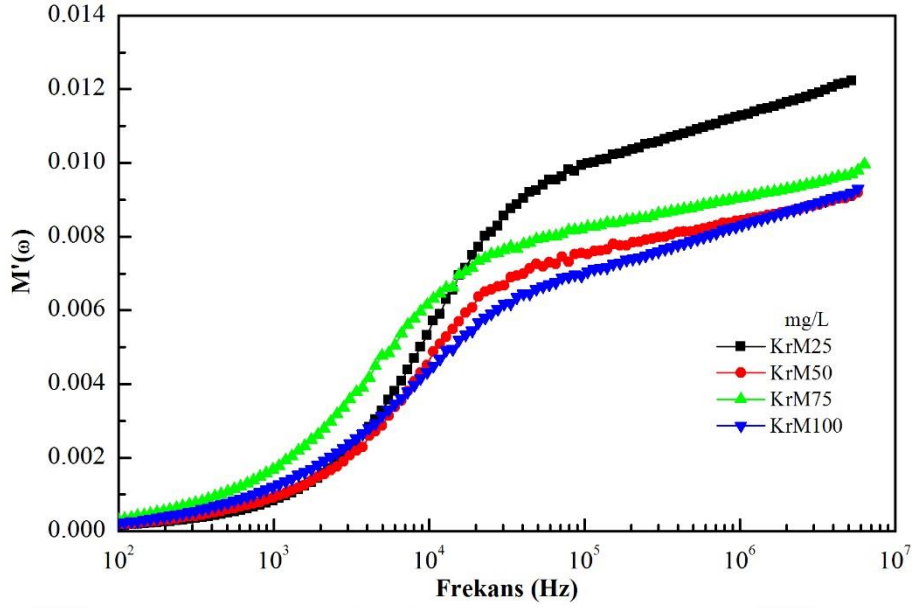
Şekil 4.39' da farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) kristal-mor boya katkılı hidrojellerin faz açısının frekansla değişimine ait deneysel sonuçlar gösterildi. Bu hidrojellerin faz açısı değerinin artan frekansla birlikte hemen hemen sigmoid olarak azaldığı görüldü. Ayrıca yüksek frekans bölgesinde numunelerin faz açısı değerinin frekanstan bağımsız davrandığı ve sifıra gitme eğiliminde olduğu tespit edildi. Katkılı hidrojellerin faz açısı değerinin 10^3 Hz– 10^5 Hz frekans aralığındaki anormal davranışının malzemenin viskoelastik karakteristiğinden kaynaklandığı saptandı. Ayrıca bu bölgede boya derişimine bağılı olarak viskoelastik dinamiklerin farklı olmasından dolayı numunelerin faz açısı değerinde bir dalgalı davranış belirlendi.



Şekil 4.39. Farklı derişimlerde kristal-mor boya yüklü hidrojellerin faz açısının frekansla değişimi

Düşük frekans bölgesinde bu hidrojelilerin faz açısının en düşük değerinin 100 mg/L, en yüksek değerinin ise 25 mg/L katkıli hidrojele ait olduğu saptandı. Yine bu bölgede 25 mg/L katkıli hidrojinin sahip olduğu viskoelastik etkileşimlerin (viscoelastic dynamic) farklı olmasından dolayı diğer numunelerden farklı davranış sergilediği tespit edildi. Boya katkıli hidrojelilerin faz açısının frekansla olan değişiminin daha önce Şekil 4.34' de verilen tanjant faktörünün frekansla olan değişimiyle uyumlu olduğu saptandı. Düşük frekans bölgesinde numunelerin faz açısı ile tanjant faktörünün frekansla değişimi birlikte incelendiğinde bu numunelerin tanjant faktörü değerlerinin birden büyük olduğu ($\tan\delta > 1$) tespit edildi. Bu bölgede numunelerin tanjant faktörünün birden büyük değerler almasının düşük iyonik iletkenlikten kaynaklanacağı sonucuna varıldı. Boya katkıli hidrojelilerin faz açısı değerinin 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında elektrot polarizasyon ve bu frekansın üzerindeki bölgelerde ise dielektrik durulma mekanizmadan etkilendiği belirlendi (Keller ve Licastao, 1959; Taylora vd., 2005).

Farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) kristal-mor boya katkıli hidrojelilerin karmaşık elektrik modülünün gerçek ($M'(\omega)$) kısmının frekansla değişimine ait deneysel sonuçlar geniş bir frekans aralığında Şekil 4.40' da verildi. Bu numunelerin $M'(\omega)$ değerlerinin artan frekansla birlikte asimptotik olarak arttığı saptandı. Düşük frekans bölgesinde numunelerin tamamının $M'(\omega)$ değerinin sıfır değerine gitme eğiliminde olduğu belirlendi. Katkıli numunelerin $M'(\omega)$ değerinin 10^3 Hz– 10^7 Hz frekans aralığında derişime bağlı bir dalgalı tutum (fluctuation behavior) sergilediği görüldü. Bu dalgalı tutumun boya iyonları ile hidrojelilerin bantları arasında meydana gelen ara yüzey etkileşimlerden kaynaklandığı tespit edildi.

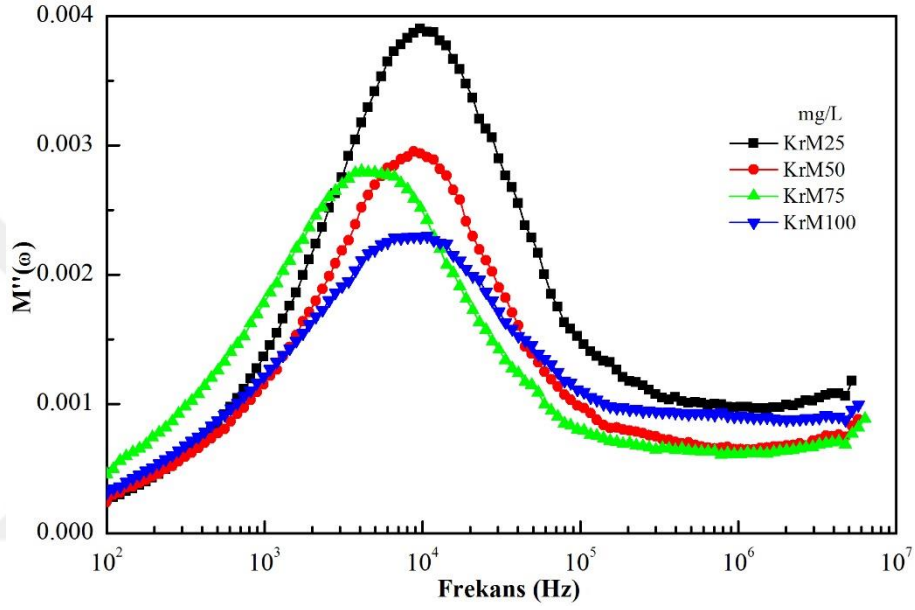


Şekil 4.40. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkıli hidrojjelerin karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmının frekansla deęiřimi

Düşük frekans bölgesinde boya katkıli hidrojjelerin $M'(\omega)$ deęerinin sıfıra gitmeye meyilli olmasının elektrot polarizasyon mekanizmasından ve elektrotlarda oluşan yüksek kapasitif olgudan kaynaklandıęı tespit edildi. Yüksek frekans bölgesinde dielektrik durulmaya baęlı olarak boya iyonlarının yüksek hareketlilięinden (ion migration) dolayı numunelerin $M'(\omega)$ ' nün yüksek deęerler aldıęı belirlendi. Bu bölgede boya katkıli hidrojjelerin $M'(\omega)$ ' nün en düşük deęerinin 100 mg/L, en yüksek deęerinin ise 25 mg/L katkıli hidrojele ait olduęu tespit edildi. Ayrıca kristal-mor boya katyonlarının hidrojjelin kanalları içinde artan hareketlilięinden dolayı bu bölgede numunelerin iyonik iletimin artacaęı sonucuna varıldı (Dixon, 1990; Smaoui vd., 2009; Deraman vd., 2014; Ramesh ve Arof, 2001; Liew vd., 2012; Ram ve Chakrabarti, 2008; Padmasree vd., 2006; Gogulamurali vd., 1992; Ramesh ve Chai, 2007).

Şekil 4.41' de farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) kristal-mor boya katkıli hidrojjelerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının ($M''(\omega)$) frekansla deęişimine ait deneysel veriler sunuldu. Katkıli hidrojjelerin $M''(\omega)$ deęerinin artan frekansla birlikte sinüzoidal bir davranış sergiledięi görüldü. Tüm örneklerin $M''(\omega)$ deęerinin 10^3 Hz– 10^5 Hz frekans aralıęında bir tepe deęere sahip olduęu tespit edildi. Katkıli hidrojjelerin $M''(\omega)$ tepe deęerlerinin artan derişimle birlikte azaldıęı görüldü. Boya katkıli hidrojjelerin $M''(\omega)$ ' nün en yüksek ve en düşük tepe deęerlerinin, sırasıyla 25 mg/L ve 100 mg/L boya katkıli hidrojjelere ait olduęu saptandı. Dięer taraftan boya

katkılı hidrojenlerin $M''(\omega)$ tepe değerinin artan derişimle birlikte genellikle düşük frekans bölgesine doğru kaydığı, lakin 100 mg/L katkılı hidrojenlerin bu genel davranışa uymadığı tespit edildi. Ayrıca uygulanan dış elektrik alanın frekansı ile iyonları hareket ettiren frekansın eşit olduğu durumda $M''(\omega)$ değerinin maksimum noktaya ulaştığı tespit edildi. $M''(\omega)$ tepe değerine ulaştığında sistemin ara yüzey polarizasyon tarafından kontrol edildiği belirlendi. Bu bölgede boya iyonlarının mobilitesinin giderek arttığı tespit edildi.



Şekil 4.41. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojenlerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının frekansla değişimi

Düşük frekanslarda tüm numunelerin $M''(\omega)$ ' nün düşük değerler almasının elektrot polarizasyon kaynaklandığı belirlendi. Katkılı hidrojenlerin 10^3 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında dielektrik durulmaya ve Stokes-Einstein ilişkisine bağlı olarak bir kritik frekans değerine sahip olduğu görüldü. Bu kritik frekansın altındaki bölgede boya katyonlarının komşu bölgeye sıçrayabildikleri, kritik frekansın üstündeki bölgede ise boya iyonlarının bir potansiyel kuyuda (potential well) sınırlandırılmış gibi davrandıkları belirlendi. Ayrıca bu bölgede boya yüklü hidrojenlerin maksimum $M''(\omega)$ değerinin boya iyonlarının hidrojel kanallar içinde uzun menzilli hareketten kısa menzilli harekete geçmesinden kaynaklandığı belirlendi. Yüksek frekanslarda bir tepe noktaya ulaşan $M''(\omega)$ değerlerinin yönelim polarizasyonunun etkisiyle yeniden azalışa geçtiği tespit edildi. Çizelge 4.5' de farklı derişimlerde KrM yüklenmiş hidrojenlerin elektrik modülünün sanal kısmının tepe değerleri ve bu tepe değerlerine ait kritik

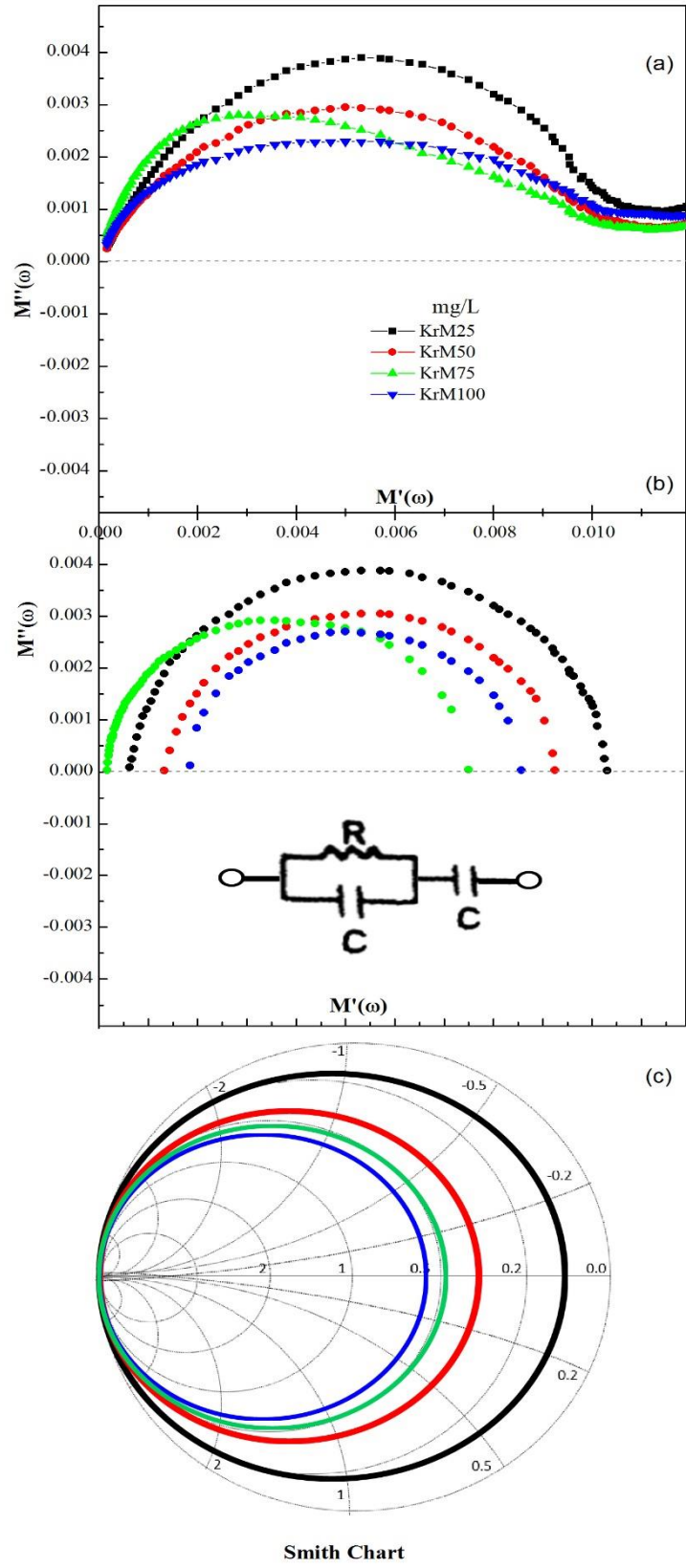
frekans deęerleri gsterildi. 25 mg/L KrM boya yklenmiř hidrojelinde 10000 Hz ile tm numuneler arasında en yksek kritik frekans deęerine sahip olduęu tespit edildi. Bu durumun 25 mg/L KrM yklenmiř hidrojelinde durulma frekansının daha yksek olmasından kaynaklandığı belirlendi. Bu numunenin daha yksek frekanslarda durulmasından iletim mekanizmasının daha iyi olacaęı sonucuna varıldı. Yani 25 mg/L KrM boya yklenmiř hidrojelinde iletim mekanizmasının dięerlerine kıyasla daha uzun sre bozulmadan korunabildięi belirlendi. Ayrıca artan KrM boya deřiřimi ile birlikte karmařık elektrik modlnn sanal kısmının pik deęerinin azaldığı tespit edildi. Bu durumun artan deřiřimle birlikte boya iyonları ile hidrojel kanalları arasındaki ara yzey etkileřimlerden kaynaklandığı belirlendi (Karmakar ve Ghost, 2012; Tsangaris vd., 1998; Boucher vd., 2006; Kaiser, 2012; Macedo vd., 1972; Ranjan vd., 2011; Borsa vd., 1992; Provenzano vd., 1972; Jain ve Hsieh, 1994; Karmakar ve Ghost, 2010; Zwanzig ve Bixon, 1970; Singh vd., 2017; Wang vd., 2017; Akhtar vd., 2018).

izelge 4.5. Farklı deřiřimlerde kristal mor boya ykl hidrojellerin karmařık elektrik modlnn sanal kısmının pik deęerleri ve kritik frekans deęerleri

Numune adı	Karmařık elektrik modlnn sanal kısmının pik deęeri (ω) x 10 ⁻³	Kritik frekans deęeri (Hz)
KrM 25	3,8894	10000
KrM 50	2,9437	8872,62
KrM 75	2,7987	4280,49
KrM 100	2,2949	8773,68

Farklı deřiřimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) kristal mor boya ykl hidrojellerin karmařık elektrik modlnn dzlem izgelerinin deneysel sonuları, Maxwell elementli (Maxwell element) elektrik modlnn Cole–Cole diyagramı ve onların Smith Chart diyagramı ile uyumluluęu sırasıyla Őekil 4.42a, Őekil 4.42b ve Őekil 4.42c’de gsterildi. Elektrot polarizasyon, Brown hareketi (Brownian motion) ve yeniden ynelim polarizasyonunun sırasıyla dřk, orta ve yksek frekans blgelerinde $M''-M'$ dzlem izgelerinin oluřumu zerinde etkili olduęu tespit edildi. Bu numunelerin en kkk ve byk Cole–Cole izgelerinin sırasıyla, 100 ve 25 mg/L boya ykl hidrojele ait olduęu tespit edildi. Ayrıca boya katkılı hidrojellerin elektrik modlnn en byk ve kkk yarım dairelerinin karmařık elektrik modlnn sanal kısmının maksimum ve

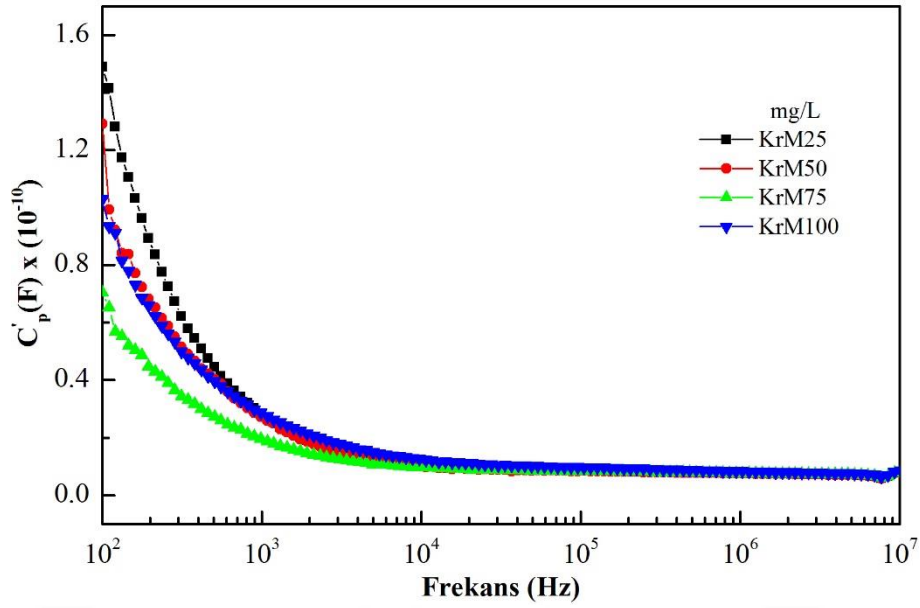
minimum deęerleri ile uyumlu olduęu grld. Katkılı numunelerin Cole–Cole dzlem izgilerinin oluřmasından bu malzemenin elektronik uygulamalar aısından uygun olduęu tespit edildi. Eřdeęer bir elektrik devresine (RC) karřılık gelen Cole–Cole dzlem izgilerinin teorik empedans devresini gsteren Smith Chart diyagramı ile uyumlu olduęu belirlendi. Őekilde gsterilen RC devresi iin farklı deriřimlerde KrM katkılı hidrojellerin farklı diren ve kapasitans deęerleri aldıęı belirlendi. Farklı deriřimlerde KrM boya katkılı numuneler iinde en dřk diren ve en yksek kapasitans deęerine sahip RC devresinin 25 mg/L katkılı hidrojele ait olduęu hesaplandı. Bu numunenin oluřturduęu devrede direncin $7,9 \times 10^6$ Ohm, kapasitansın ise $9,8 \times 10^{-10}$ F deęerini aldıęı saptandı. En byk yarım daireye oluřturan 25 mg/L KrM katkılı hidrojelin en dřk diren deęerine sahip olması nedeniyle dřk frekans blgesinde en yksek iyonik iletkenlik sergiledięi saptandı. Buna ilave olarak en yksek diren ve en dřk kapasitans deęerine sahip devrenin 75 mg/L KrM boya iyonu katkılı hidrojele ait olduęu tespit edildi. Bu malzemenin oluřturduęu Cole-Cole izgilerine karřılık gelen RC devresi iin diren deęeri $4,1 \times 10^7$ Ohm ve kapasitans deęeri $8,1 \times 10^{-11}$ F olarak hesaplandı. 75 mg/L KrM katkılı hidrojelin en yksek diren deęerinin, bu deriřimde KrM boya iyonları ile hidrojel arayzeyler arasındaki etkileřimlerin daha gl olmasından kaynaklandıęı tespit edildi. Buradan hareketle hidrodinamik etkileřimlere sahip olan boya ykl hidrojellerin sentetik elektronik bir devrede kullanılabileceęi sonucuna ulařıldı. Ayrıca sentetik elektronik devre de kullanılacak KrM katkılı hidrojeller iin en uygun deriřiminde 25 mg/L KrM olduęu belirlendi (Cole ve Cole, 1941; Tsangaris vd., 1998; Richert ve Wagner, 1995; Tsangaris vd., 1991; Boyd, 1980; Bettcher ve Bordewijk, 1978; Len vd., 1997; Wagner ve Richert, 1997; Yuan, 2012; Tomozawa vd., 1979; Richert ve Wagner, 1998; Smith, 1939).



Şekil 4.42. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkılı hidrojellerin elektrik modülün düzlem çizgileri (a), Maxwell elementli elektrik modülünün Cole-Cole diyagramı (b) ve onların Smith Chart diyagramına uyarlanmış hali (c)

100 mg/L KrM katkılı hidrojelin en yüksek direnç değerine sahip olmasına rağmen en düşük iyonik iletkenliğe sahip olamamasının 100 mg/L KrM boya ile hidrojel arayüzey etkileşimlerinden kaynaklandığı tespit edildi. Ayrıca en büyük yarım daireye oluşturan 25 mg/L KrM katkılı hidrojelin en düşük direnç değerine sahip olduğu ve düşük frekans bölgesinde en yüksek iyonik iletkenlik sergilediği saptandı. Buradan hareketle hidrodinamik etkileşimlere sahip boya yüklü hidrojellerin sentetik elektronik bir devrede kullanılabileceği sonucuna ulaşıldı. (Cole ve Cole, 1941; Tsangaris vd., 1998; Richert ve Wagner, 1995; Tsangaris vd., 1991; Boyd, 1980; Böettcher ve Bordewijk, 1978; León vd., 1997; Wagner ve Richert, 1997; Yuan, 2012; Tomozawa vd., 1979; Richert ve Wagner, 1998; Smith, 1939).

Farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) kristal-mor boya katkılı hidrojellerin kapasitansının frekansla deęişimine ait deneysel veriler Şekil 4.43' de sunuldu. Bu malzemelerin kapasitans deęerinin 100 Hz–40 MHz frekans aralığında artan frekansla birlikte üstel olarak azaldığı tespit edildi. Düşük frekanslarda kapasitansın en yüksek deęerinin 25 mg/L en düşük deęerinin ise 75 mg/L boya yüklü hidrojele ait olduğu görüldü. Ayrıca yine bu bölgede en düşük ve en düşük kapasitans deęerine sahip olan numunelerin Şekil 4.32' de verilen karmaşık dielektrik sabitin gerçek kısmıyla orantılı ($\epsilon' = Cd/\epsilon_0A$) ve Şekil 4.38' de sunulan empedans deęerleriyle de ters orantılı olduğu ($C = 1/(\omega Z)$) saptandı. Katkılı hidrojellerin kapasitans deęerinin 10^2 Hz– 10^4 Hz frekans aralığında derişime baęlı olarak dalgalı bir davranış (fluctuation behavior) sergilediği görüldü. Yüksek frekanslarda tüm numunelerin kapasitans deęerlerinin birbirine çok yakın deęerler aldığı hemen hemen frekanstan baęımsız davrandığı tespit edildi.

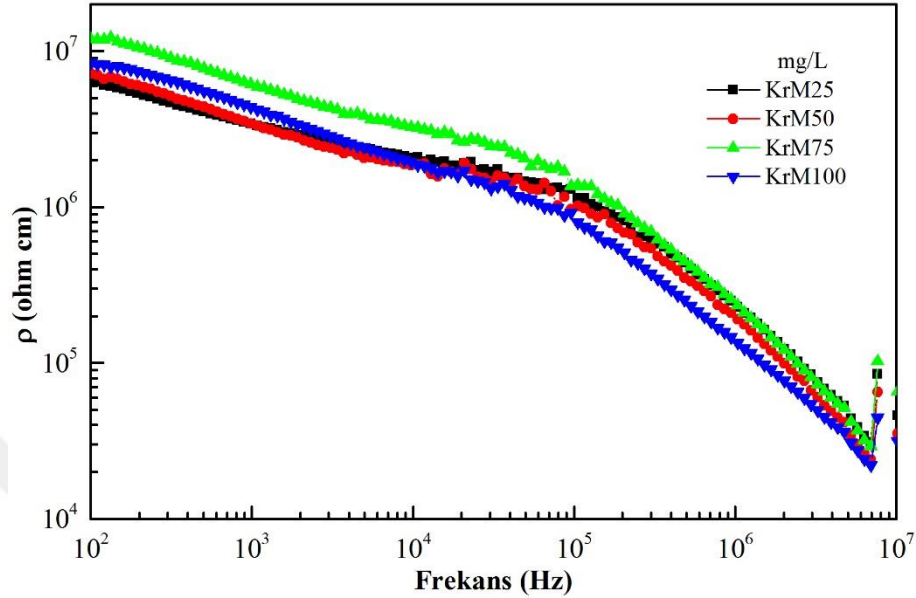


Şekil 4.43. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katlı hidrojelilerin kapasitansının frekansla deęiřimi

Düşük frekanslarda elektrot/elektrolit ara yüzeyinde oluşan polarizasyon etkisinden dolayı örneklerin tamamının kapasitansının yüksek değerler aldığı belirlendi. Başka bir deyişle, elektrotların iç yüzey alanlarında fazla boya iyonu birikmesinden dolayı boya yüklü numunelerin derişime baęlı kalmaksızın hepsinin kapasitansının yüksek değerler aldığı tespit edildi. Yüksek frekans bölgesinde ise dielektrik durulma sonucunda oluşan boya iyonlarının artan hareketlilięi nedeniyle tüm örneklerin kapasitansının düşük değerler aldığı saptandı. Ayrıca bu bölgede boya katyonlarının mobilitesinin artması ile hidrojel kanallar içinde iyonik iletiminde artacaęı sonucuna varıldı. Bu sonuçtan hareketle kristal-mor boya katlı hidrojelilerin mikrobiyal yakıt hücrelerinde kullanılabilceęi sonucuna varıldı (Simon ve Gogotsi, 2010; Pieta vd., 2013; Arbizzani vd., 2001; Pröbstle vd., 2002; Park ve Choi, 2010; Aureli ve Porfiri, 2012; Taberna vd., 2003; Conway vd., 1997; Pech vd., 2010).

Şekil 4.44' de farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) kristal-mor boya yüklü hidrojelilerin yüzey özdirencinin frekansla olan gelişimine ait deneysel sonuçlar verildi. Bu numunelerin yüzey özdirenç değerlerinin 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında yavaşça, 10^5 Hz frekansın üzerindeki bölgelerde ise doğrusal olarak azaldığı görüldü. Frekansın düşük olduęu bölgede numunelerin özdirençlerinin en düşük ve en yüksek değerlerinin sırasıyla, 25 ve 75 mg/L boya yüklü hidrojele ait olduęu tespit edildi. Yine bu bölgede yüzey özdirencinin en yüksek ve en düşük değerlerine sahip olan örneklerin karmaşık

empedansının en yüksek ve en düşük değerlerini taşıyan örneklerle uyumlu olduğu görüldü. Frekansın yüksek olduğu bölgede ise yüzey özdirencinin en yüksek değerinin 25 mg/L, en düşük değerinin ise 100 mg/L boya katkıli hidrojele ait olduğu saptandı.

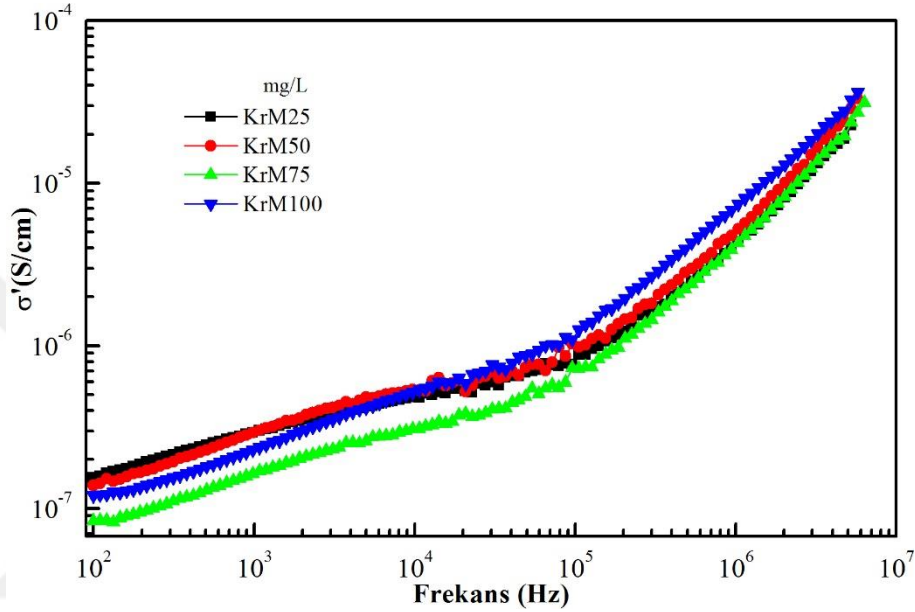


Şekil 4.44. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkıli hidrojellerin yüzey özdirencinin frekansla deęiřimi

Katyonik boya yüklenmiş hidrojellerin yüzey özdirencinin artan boya derişimiyle arttığı, derişim oranı 100 mg/L' ye ulaşınca yüzey özdirencinin aniden azaldığı görüldü. Bu azalışın 100 mg/L katkıli örneğin hidrojel yüzeyinden daha küçük boyutta sınırlama etkisi görmesinden kaynaklandığı tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde tüm örneklerin yüzey özdirencinin elektrot polarizasyon etkiden dolayı yüksek değerler aldığı belirlendi. Yüksek frekanslarda ise numunelerin yüzey özdirencinin düşük değerler almasını dielektrik durulma mekanizmasının sağladığı tespit edildi (Weiler ve Chaussidon, 1968; Souza Jr. vd., 2008; Lim vd., 2002; Okutan vd., 2015; Yalçın vd., 2013; Jones vd., 1997; Webster, 2014; Wu vd., 2005; Németh vd., 2003).

Farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) kristal-mor boya katkıli hidrojellerin karmaşık iyonik iletkenliğin gerçek ($\sigma'(\omega)$) kısmının frekansla deęişimine ait deneysel sonuçlar Şekil 4.45' de gösterildi. Bu örneklerin $\sigma'(\omega)$ değerlerinin artan frekansla birlikte üstel olarak attığı, bu artışın düşük frekans bölgesinde yavaşça yüksek frekans bölgesinde ise hızlıca olduğu görüldü. Frekansın düşük olduğu bölgede $\sigma'(\omega)$ ' nün en düşük ve en yüksek değerlerinin sırasıyla, 75 ve 25 mg/L yüklü hidrojele ait olduğu

belirlendi. Numunelerin $\sigma'(\omega)$ değerinin 10^3 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında yüklenen boya derişime bağı olarak dalgalı bir davranışa sahip olduğu görüldü. Bu dalgalı davranışın bir sonucu olarak yüksek frekanslarda en düşük ve en yüksek $\sigma'(\omega)$ değerinin sırasıyla, 25 ve 100 mg/L katkıli hidrojele ait olduğu belirlendi. Ayrıca $\sigma'(\omega)$ ' nün derişime bağı olarak aldığı en düşük ve en yüksek değerlerin Şekil 4.44' de verilen yüzey özdirenci ile ters çalıştığı ($\sigma = 1/\rho$) belirlendi.

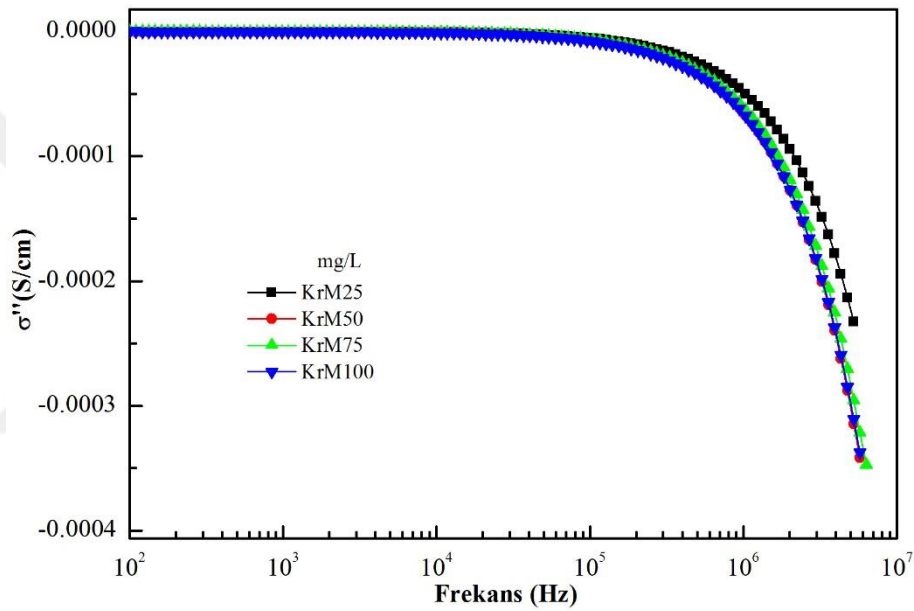


Şekil 4.45. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkıli hidrojellerin karmaşık iyonik iletkenliğinin gerçek kısmının frekansla değışimi

Elektrot polarizasyon ve ara yüzeyde oluşan empedans etkilerden dolayı düşük frekans bölgesinde tüm örneklerin $\sigma'(\omega)$ değerinin düşük olduğu tespit edildi. Artan frekansla birlikte elektrot polarizasyon ve ara yüzey empedans etkilerinin numunelerin iyonik iletkenliği üzerine olan etkisinin giderek azaldığı ve tüm numunelerin yüksek $\sigma'(\omega)$ değerlerine sahip olduğu görüldü. Ayrıca bu bölgede boya iyonlarının yüksek mobilitelere sahip olmasının ve boya iyonlarının Brownian hareketinin de tüm numunelerin $\sigma'(\omega)$ değerlerinin yüksek olmasında etkili olduğu belirlendi. Diğer taraftan düşük frekanslarda artan boya derişimi ile $\sigma'(\omega)$ değerinin azaldığı, fakat bu genel davranışa 100 mg/L yüklü hidrojinin uymadığı tespit edildi. Buradan hareketle iyonik boya yüklü hidrojellerin iyonik iletiminin hidrojel içindeki boya iyonlarının miktarına, Jonscher güç yasasına, Brown hareketliliğine ve hidrojel yapının tane boyutundaki değışikliklere güçlü bir şekilde bağı olduğu tespit edildi (Sredić vd., 2008; Venkateswarlu ve Satyanarayana, 1998; Nam vd., 2004; Chen vd., 2000; Ogihara vd.,

2004; Raghasudha vd., 2013; Minami, 1985; Baskaran vd., 2006; Liew vd., 2012; MacCallum ve Vincent, 1988; Zwanzig ve Bixon, 1970).

Şekil 4.46' da Farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) kristal-mor boya katkıli hidrojelilerin karmaşık iyonik iletkenliğinin sanal kısmının ($\sigma''(\omega)$) geniş bir frekans aralığındaki deęişimine ait deneysel sonuçlar gösterildi. 10^2 – 10^5 Hz frekans aralığında bu numunelerin $\sigma''(\omega)$ deęerinin frekanstan bağımsız davrandığı tespit edildi. Frekansın yüksek olduğu bölgede ise tüm numunelerin $\sigma''(\omega)$ deęerinin monotonik olarak azaldığı görüldü.



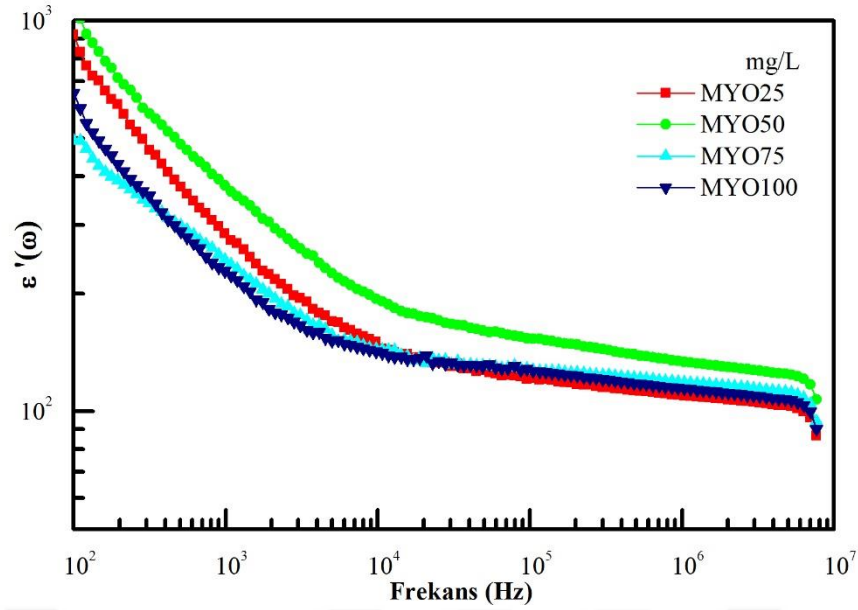
Şekil 4.46. Farklı derişimlerde kristal-mor boya katkıli hidrojelilerin karmaşık iyonik iletkenliğinin sanal kısmının frekansla deęişimi

Düşük frekanslarda tüm numunelerin $\sigma''(\omega)$ deęerinin sifıra gitmesinin nedeninin bu bölgedeki yüksek kapasitif olguyu oluşturan elektrot polarizasyon etkinin olduğu tespit edildi. Yüksek frekans bölgesinde yüklü hidrojelilerin $\sigma''(\omega)$ deęerindeki monotonik azalışın dielektrik durulma mekanizmasından kaynaklandığı belirlendi. Ayrıca bu bölgede serbest boya iyonlarına karşı hidrojelilerin kanalları içinde artan sınır etkisinin de $\sigma''(\omega)$ deęerinin monotonik azalışında önemli bir katkı sağladığı tespit edildi (Venkateswarlu vd., 2000; Kar ve Choudhary, 2002; Kashyap vd., 2012; Farea vd., 2008; León vd.,2001; Ratner ve Shriver, 1988; Harris, 1983).

4.6 Malaşit Yeşil Oksalat Katkılı Hidrojellerin Empedans Spektroskopi Analizi

Farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) malaşit yeşil oksalat boya iyonları yüklü hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitin gerçek kısmı, dielektrik sabitin sanal kısmı, tanjant faktörü, dielektrik sabitin düzlem çizgileri, rezistansı, reaktansı, empedansı, faz açısı, karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmı, elektrik modülünün sanal kısmı, elektrik modülünün düzlem çizgilerinin Smith Chart uygulaması, kapasitans, yüzey özdirenci, karmaşık iyonik iletkenliğinin gerçek kısmı ve iyonik iletkenliğinin sanal kısmının frekansla gelişimleri sırasıyla Şekil 4.47, Şekil 4.48, Şekil 4.49, Şekil 4.50, Şekil 4.51, Şekil 4.52, Şekil 4.53, Şekil 4.54, Şekil 4.55, Şekil 4.56, Şekil 4.57, Şekil 4.58, Şekil 4.59, Şekil 4.60 ve Şekil 4.61’ da verildi. Farklı derişimdeki malaşit yeşil oksalat boya iyonu katkılı bu numunelerin frekansla gelişimine etki eden tüm dielektrik mekanizmaları düşük ve yüksek frekans bölgeleri başta olmak üzere önemli frekans değerlerinde ayrıntılı bir şekilde incelendi. Bu malzemelerin biyoelektronik, fotoelektronik, mikro-elektronik devreler, askeri güvenlik teknolojiler, iyontronik davranış gösteren aygıtlar, bilgi depolama sistemleri, biyosensörler, fotonik sensörler, süper kapasitörler, bazı ekolojik sistemler gibi uygulamalarının hangi koşullar altında olacağı belirlendi.

Farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) malaşit yeşil oksalat boya katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitin gerçek kısmının ($\epsilon'(\omega)$) frekansla değişimine ait deneysel sonuçlar Şekil 4.47’ de verildi. Bu hidrojellerin $\epsilon'(\omega)$ değerlerinin artan frekansla birlikte üstel olarak 10^2 Hz– 10^4 Hz frekans aralığında hızlıca, 10^4 Hz üzeri frekanslarda ise yavaşça azaldığı tespit edildi. Frekasin düşük olduğu bölgelerde en düşük ve en yüksek $\epsilon'(\omega)$ değerlerin sırasıyla, 75 ve 50 mg/L boya iyonu katkılanmış hidrojellere ait olduğu görüldü. Artan frekansla birlikte bu hidrojellerin derişime bağlı değişimi incelendiğinde boya iyonları ile hidrojellerin bantları arasında oluşan ara yüzey etkileşimlerden dolayı bir dalgalanma davranışı sergiledikleri tespit edildi. Yüksek frekanslara gelindiğinde ise $\epsilon'(\omega)$ ’ nün en yüksek değerinin yine 50 mg/L, en düşük değerinin ise 25 mg/L yüklü hidrojele ait olduğu belirlendi.

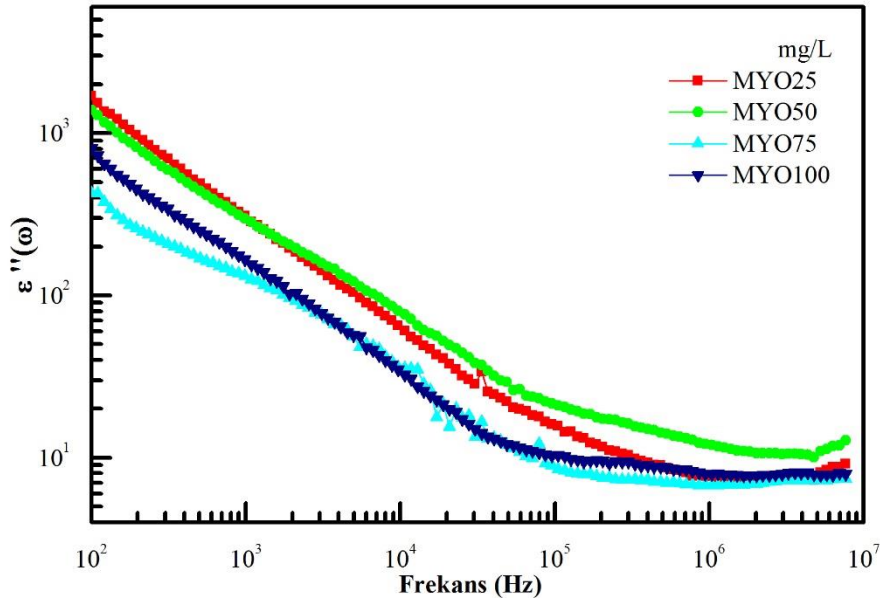


Şekil 4.47. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin gerçek kısmının frekansla deęişimi

Düşük frekans bölgesinde tüm numunelerin dielektrik özelliklerinin elektrot polarizasyon tarafından kontrol edildi belirlendi. Bu bölgede elektrot-elektrolit ara yüzeyindeki boya iyonlarının uygulanan elektrik alanın yönünde polarize olarak tüm örneklerin $\epsilon'(\omega)$ deęerinin yüksek olmasını sağladığı belirlendi. Başka bir ifadeyle bu bölgede hidrojel kanallar içinde güçlü boya iyonu dağılımına baęlı olarak yoğun elektrot polarizasyonun oluştuęu ve $\epsilon'(\omega)$ ' nün yüksek deęerler aldığı saptandı. Yüksek frekans bölgesinde ise alanın hızlı periyodik ters çevrimiyle tüm numunelerin $\epsilon'(\omega)$ deęerinin düşük olduęu tespit edildi. Bu bölgede yaşanan hızlı periyodik ters çevrimin boya iyonlarının alan yönünde yöneliminin yavaşlamasına dolayısıyla elektrot-elektrolit ara yüzeyinde biriken iyonlarının yoğunluęunun azalmasına ve hidrojellerin kanalları içindeki difüzyonunun artmasına sebep olduęu belirlendi. Frekansın yüksek olduęu bölgede tüm örneklerin $\epsilon'(\omega)$ ' nün düşük deęer almasında Maxwell dinamiklerinin, katyonlarının hareketlilięinin ve dipollerin durulmasının, Stokes-Einstein ve Brown hareketlilięinin kombine etkisinin olduęu saptandı. Ayrıca bu bölgedeki düşük $\epsilon'(\omega)$ deęerinin alandaki salınımın çok hızlı olmasından ve hidrojel kanallar içindeki boya iyonu hareketlilięini yöneten zayıf geri yükleme kuvvetinden kaynaklandığı tespit edildi. Yine bu bölgede dipollerin kendilerini alanın yönünde hizalayabilmelerinin mümkün olamadığı için $\epsilon'(\omega)$ ' nün düşük deęerler aldığı belirlendi. Buradan hareketle yüksek frekansta düşük $\epsilon'(\omega)$ deęerinin Kroop'un teorisi ve Maxwell-Wagner yaklaşımı ile açıklanabileceęi sonucuna varıldı. (Singh vd., 2017; Maji vd., 2015; Akhtar vd.,

2018; Maji ve Choudhary, 2017; Armstrong vd., 1974; Mahmoodi vd., 2012; Dutta ve Biswas, 2002; Ramesh vd., 2011; Venkateswarlu vd., 2000; Rajendran vd., 2004; Liew vd., 2012; Mishra ve Rao, 1998; Adachi ve Urakawa, 2002; Xu vd., 2014; Dyre, 1991; Kumar vd., 2009; Zwanzig ve Bixon, 1970; Rodríguez ve Salinas-Rodríguez, 1988).

Şekil 4.48’ de farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) malaşit yeşil oksalat boya katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin sanal kısmının ($\epsilon''(\omega)$) frekansla deęişimine ait deneysel sonuçlar verildi. Artan frekansla birlikte numunelerin $\epsilon''(\omega)$ deęerlerinin 10^5 Hz frekansa kadar doęrusal daha yüksek frekanslarda ise üstel olarak azaldığı tespit edildi. Daha önce Şekil 4.47’ de verilen $\epsilon'(\omega)$ deęerinde olduğu gibi numunelerin $\epsilon''(\omega)$ deęerinin de artan frekansla birlikte derişime baęlı olarak bir dalgalı davranış sergilediği belirlendi. Boya iyonları ile hidrojellerin bantları arasında oluşan ara yüzey etkileşimlerden kaynaklanan bu dalgalı davranışın daha çok 10^3 Hz– 10^6 Hz frekans aralığında oluştuğu saptandı. Ayrıca bu dalgalanmanın 25 ile 50 ve 75 ile 100 mg/L boya yüklü hidrojellerin aralarında yaşandığı belirlendi. Düşük ve yüksek frekans bölgesinde en yüksek $\epsilon''(\omega)$ deęerlerinin sırasıyla 25 mg/L ve 50 mg/L yüklü hidrojellere ait olduğu tespit edildi.

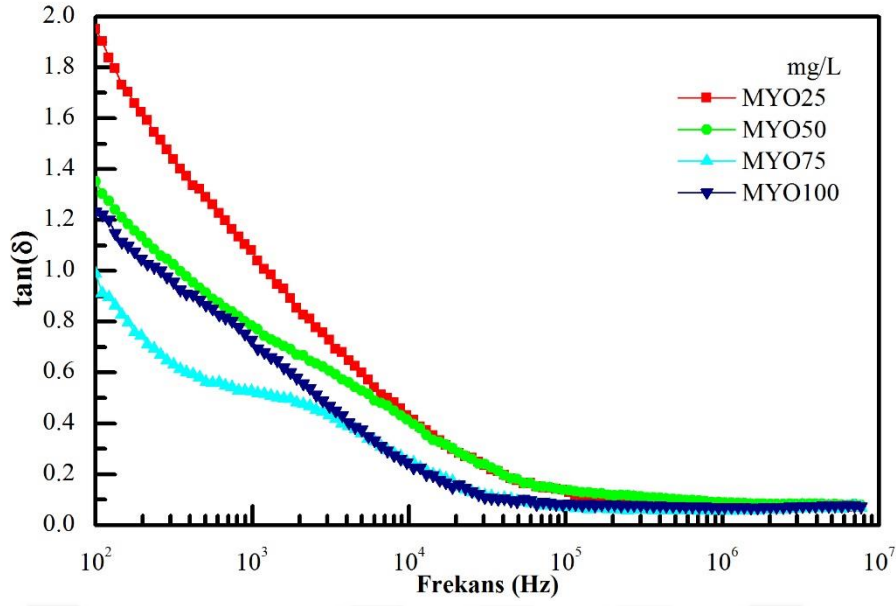


Şekil 4.48. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya katkılı hidrojellerin karmaşık dielektrik sabitinin sanal kısmının frekansla deęişimi

Düşük frekanslarda elektrot-elektrolit ara yüzünde biriken boya iyonlarının uygulanan dış elektrik alan yönünde kutuplanması sonucu oluşan ara yüzey polarizasyonunun ve

yüklü hidrojenlerin elektrotlarında oluşan elektrot polarizasyonun örneklerin yüksek $\varepsilon''(\omega)$ değeri almasında etkili olduğu tespit edildi. Ayrıca bu bölgede dielektrik durulma sürecini engelleyen dc iletkenlik etkisinden dolayı numunelerin $\varepsilon''(\omega)$ değerlerinin yüksek olduğu belirlendi. Düşük frekans bölgesinde boya iyonlarının hidrojel kanallar arasındaki asimetrik atlayışlarının bölgede $\varepsilon''(\omega)$ değerlerinin yüksek olmasını sağlayan dipolar polarizasyona katkı sağladığı tespit edildi. Artan frekansla birlikte, uygulanan dış elektrik alanın periyodik ters çevriminin çok hızlı olması nedeni ile boya iyonlarının alan yönünde yönelim fırsatı bulamadığı ve bu nedenle tüm numunelerin $\varepsilon''(\omega)$ değerlerinin giderek azaldığı belirlendi. Yüksek frekans bölgesinde yaşanan dielektrik durulma ya bağlı olarak boya iyonlarının hareketliliğinin (ion migration), dipollerin durulmasının ve vizkoelastik dinamiklerinin ortaklaşa bir etkisiyle tüm numunelerin $\varepsilon''(\omega)$ değerinin azaldığı saptandı. Buna ilave olarak, Kroop'un teorisi ve Maxwell-Wagner yaklaşımının $\varepsilon''(\omega)$ ' nün yüksek frekans bölgesinde düşük değerler almasında etkin rol oynadığı saptandı. Yani bölgede dielektrik durulmaya bağlı olarak $\varepsilon''(\omega)$ ' nün değeri üzerine dipolar polarizasyon katkının giderek azaldığı belirlendi (Mahmoodi vd., 2012; Xu vd., 2014; Singh vd., 2017; Mahmoodi vd., 2012; Liew vd., 2012; Kamath ve Devendrappa, 2015; Murthy vd., 1977; Scaife, 1989; Mitsumata vd., 1998; Kar ve Choudhary, 2002; Saha vd., 2017; Dereman vd., 2014; Xu vd., 2014).

Şekil 4.49'da farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) malaşit yeşil oksalat boya katkılı hidrojenlerin tanjant faktörünün frekansla olan deęişimine ait deneysel sonuçlar verildi. Tüm örneklerin tanjant faktörü ($\tan(\delta)$) değerinin 10^2 Hz– 10^4 Hz frekans aralığında anormal bir davranış sergilemekle birlikte, 10^5 Hz altındaki frekanslarda hemen hemen doğrusal olarak azaldığı ve bu değerinin üzerinde frekanstan bağımsız davrandığı tespit edildi. 75 mg/L yüklü hidrojenin $\tan(\delta)$ değerinin 10^4 Hz frekans değerinin bölgede diğer yüklü hidrojenlerden farklı davrandığı belirlendi. Bu farklı davranışının boya iyonu ile hidrojel bağ arası etkileşimden kaynaklandığı saptandı. Ayrıca numunelerin $\tan(\delta)$ değerlerinin düşük frekans bölgesinde derişimle ters orantılı olarak çalıştığı görüldü. Bu duruma 75 mg/L boya yüklü hidrojenin aykırı davrandığı görüldü. Düşük frekanslarda $\tan(\delta)$ değerlerinin en düşük ve en yüksek değerinin sırasıyla 75 ve 25 mg/L boya yüklü hidrojenlere ait olduğu saptandı. Yüksek frekanslarda ise tüm örneklerin $\tan(\delta)$ değerinin sıfıra gitme eğiliminde olduğu belirlendi.

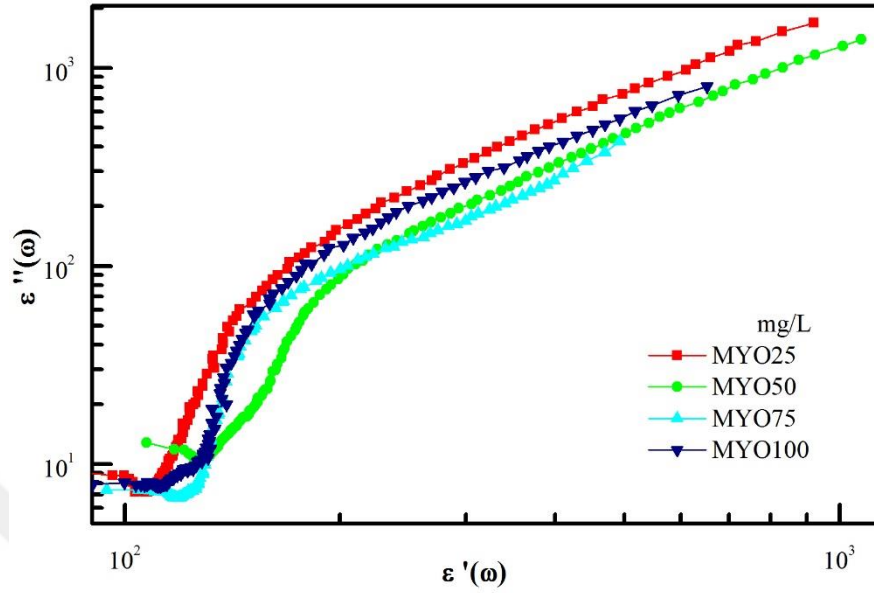


Şekil 4.49. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya katkıli hidrojjellerin tanjant faktörünün frekansla deęişimi

Frekansın düşük deęerler aldığı bölgede ara yüzey ve elektrot polarizasyon etkisiyle tüm numunelerin $\tan(\delta)$ deęerinin yüksek olduęu tespit edildi. Artan frekansla birlikte tüm örneklerin $\tan(\delta)$ deęerindeki azalmanın dielektrik durulma mekanizmasından ötürü olduęu belirlendi. Ayrıca yüksek frekans bölgesinde katkıli hidrojjellerin $\tan(\delta)$ deęeri üzerine dipol durulmasının, boya iyonlarının mobilitesinin ve rotasyon hareketindeki moleküler titreşimin kombine etkisi olduęu saptandı. Yine bu bölgede boya iyonlarının uygulanan dış alan doğrultusunda hizalanabilecek gerekli zamanı bulamadıkları için numunelerin tanjant faktörünün düşük deęerler aldığı belirlendi. Bölgede dielektrik iletim mekanizmasını kontrol eden polarizasyon etkisinin oluşmadığı tespit edildi (Dutta ve Biswas, 2002; Ram ve Chakrabarti, 2008; Ramesh vd., 2011; Rajendran vd., 2004; Singh vd., 2001; Roy vd., 2013; Mansour, 2005; Heikes ve Johnston, 1957; Venkataraju vd., 2010; Lidorenko vd., 1980).

Farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) malaşit yeşil oksalat boya katkıli hidrojjellerin karmaşık dielektrik sabitinin düzlem çizgilerinin (Cole–Cole çizgilerinin) geniş bir frekans aralıęındaki gelişimine ait deneysel sonuçlar Şekil 4.50' de gösterildi. Düşük frekanslarda yüklü hidrojjellerin dielektrik sabitinin düzlem çizgilerinin ($\epsilon''-\epsilon'$) elektrot yüzeyler ve numuneler arasındaki ara yüzeyde oluşan çift katmanlı kapasitif etkiden kaynaklandığı tespit edildi. Artan frekansla birlikte, numunelerin Cole–Cole

çizgilerini etkileyen kapasitif etkinin yerini alması beklenen direnç etkisinin oluşmadığı görüldü.

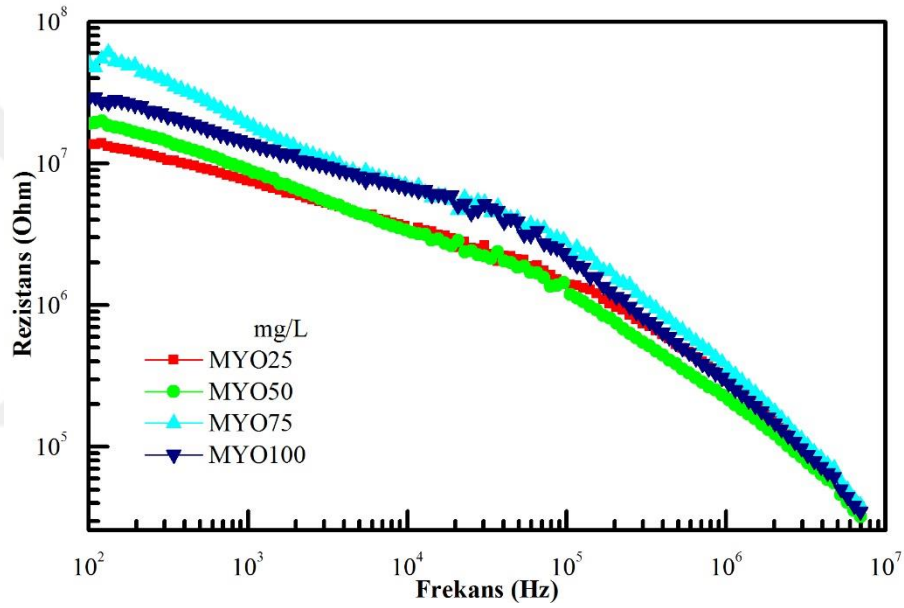


Şekil 4.50. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya katkılı hidrojjelerin karmaşık dielektrik sabitinin Cole–Cole düzlem çizgileri

Yüksek frekanslarda hidrojjelerin çapraz bağ yoğunluğunun ve malaşit yeşil oksalat boya iyon derişiminin istenilen düzeyde olmamasından dolayı numunelerin Cole–Cole çizgilerinin oluşmasını sağlayan direnç etkisinin görülmediği tespit edildi. Bu bölgede direnç etkisinin oluşmamasından dolayı eşdeğer bir elektrik devresine (RC) karşılık gelen $\epsilon''-\epsilon'$ çizgilerinin oluşmadığı saptandı. Diğer taraftan, sentezlenen hidrojjelerin çapraz bağ yoğunluğunun veya hidrojele yüklenen boya derişiminin daha fazla olması durumunda direnç etkisinin görülebileceği yani eşdeğer bir RC devresini karşılayan Cole–Cole çizgilerinin oluşturabileceği sonucuna varıldı (Yalçın 2013; Sengwa ve Choudhary, 2010; Cole ve Cole, 1941; Sengwa vd., 2000; Afzal vd., 2010; Küçükçelebi vd., 2012; Shinyashiki ve Yagihara,1999).

Şekil 4.51' de farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) malaşit yeşil oksalat boya yüklü hidrojjelerin karmaşık empedansın gerçek kısmının (rezistansın) frekansla olan değişimine ait deneysel sonuçlar verildi. Bu hidrojjelerin rezistans değerinin 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında yavaşça, 10^5 Hz üzeri frekanslarda ise keskin bir şekilde doğrusal olarak azaldığı belirlendi. 10^4 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında tüm numunelerin rezistans değerini belirleyen özellikler için, bulk yapıdan yüzey yapıya geçiş bölgesinin olduğu

tespit edildi. Ayrıca bu geçiş bölgesinde numunelerin boya iyonlarının derişimine bağı olarak bir dalgalı davranış sergilediğı belirlendi. Derişime bağı bu dalgalı davranışın boya iyonları ile hidrojjelerin bantları arasında yaşanan ara yüzey etkileşimlerden kaynaklandığı saptandı. Frekansın düşük değerler aldığı bölgede örneklerin rezistansının en yüksek ve en düşük değerlerinin sırasıyla, 75 ve 25 mg/L yüklü hidrojele ait olduğu tespit edildi. Yüksek frekanslarda ise malzemelerin rezistans değerleri arasındaki farkın giderek azaldığı ve birbirlerine çok yakın değerler aldığı saptandı. Bu bölgede katkılı hidrojjelerin rezistansının en yüksek değerinin yine 75 mg/L yüklü hidrojele, en düşük değerinin ise bu kez 50 mg/L yüklü hidrojele ait olduğu belirlendi.

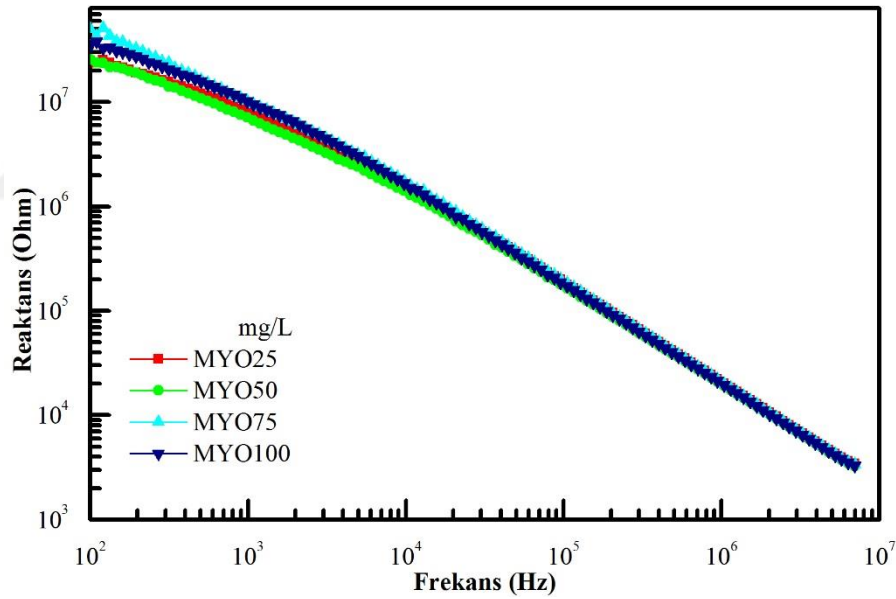


Şekil 4.51. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya katkılı hidrojjelerin karmaşık empedansının gerçek kısmının frekansla değışimi

Düşük frekanslarda malzemelerin rezistansının yüksek değer almasının elektrot polarizasyon etkiden kaynaklandığı tespit edildi. Başka bir deyişle bu bölgede boya iyonlarının uygulanan dış elektrik alan yönünde polarize olması ile oluşan bu elektrot polarizasyonun numuneler üzerinde yüksek kapasitif etkiye neden olduğu görüldü. Yüksek frekanslarda ise yüklü hidrojjelerin rezistansının yüksek değerler almasını sağlayan elektrot polarizasyonun etkisini giderek kaybettiğı, dolayısıyla yüksek kapasitif olgunun bu bölgesinde azaldığı belirlendi. Ayrıca frekansın 10^5 Hz üzeri bölgede bütün numunelerin rezistans değerinin doğrusal olarak azalmasının bu bölgede artan iyonik iletkenliğinin bir sonucu olduğu tespit edildi (Wang ve Dong, 2007; Okutan vd., 2015;

Sengwa ve Sankhla, 2007a; Padmasree vd., 2006; Saha vd., 2017; Pokhriyal ve Biswas, 2016; Cava vd., 1984; Rao vd., 2006).

Farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) malaşit yeşil oksalat (MYO) boya katkıli hidrojjelerin karmaşık empedansın sanal kısmının (reaktans) frekansla olan deęişimine ait deneysel sonuçlar Şekil 4.52’ de sunuldu. Bu örneklerin reaktans deęerinin artan frekansla birlikte neredeyse doğrusal olarak azaldığı tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde boya yüklü hidrojjelerin reaktans deęerlerinin birbirlerine çok yakın olmakla birlikte az da olsa aralarında bir fark olduğu görüldü. Bu bölgede ($< 10^4$ Hz) numunelerin rezistansının en düşük deęerinin 50 mg/L, en yüksek deęerinin ise 75 mg/L yüklü hidrojele ait olduğu tespit edildi. Frekans deęeri 10^5 Hz civarlarına yaklaştığında ise malzemelerin reaktans deęerleri arasındaki farkın ortadan kalktığı ve neredeyse birbirine eşit deęerler aldığı belirlendi.

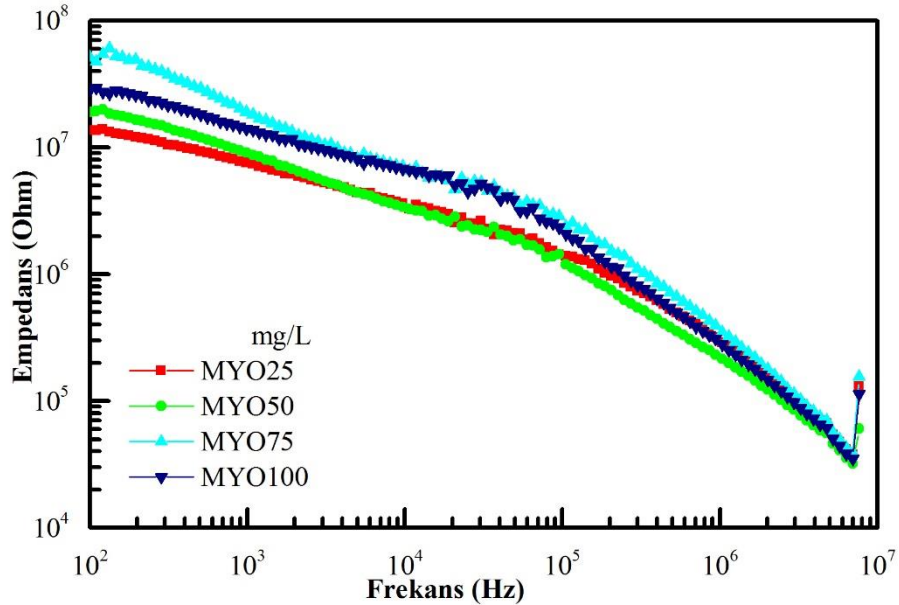


Şekil 4.52. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya katkıli hidrojjelerin karmaşık empedansının sanal kısmının frekansla deęişimi

Yüklü hidrojjelerin azalan frekans deęerleriyle birlikte yüksek reaktans deęerleri almasının nedeninin elektrot/elektrolit ara yüzeylerde oluşan ara yüzey polarizasyon olduğu saptandı. Frekans deęeri arttıkça numunelerin dielektrik özelliklerini etkileyen ara yüzey polarizasyon etkinin giderek azaldığı ve yerini dielektrik durulmaya sürecine bıraktığı tespit edildi. Dielektrik durulma mekanizmasından dolayı uygulanan alana baęlı olarak polarize olan boya iyonlarının serbest hareket ettiği ve buna baęlı olarak

hidrojel kanallar içindeki iyonik iletiminde artacağı sonucuna ulaşıldı (Wang ve Dong, 2007; Okutan vd., 2015; Padmasree vd., 2006; Saha vd., 2017; Pokhriyal ve Biswas, 2016; Cava vd., 1984; Rao vd., 2006).

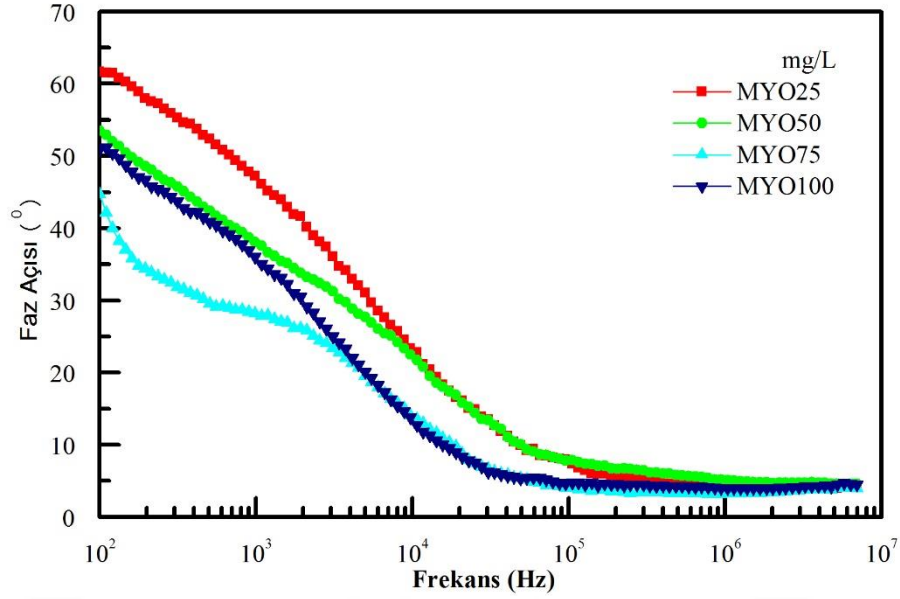
Şekil 4.53' de farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) malaşit yeşil oksalat boya katkıli hidrojellerin empedansın frekansla deęişimine ait deneysel veriler gösterildi. Bu örneklerin empedansının frekansla olan gelişiminin daha önce Şekil 4.52' de verilen rezistansın frekansla gelişimine çok benzedięi görüldü. Boya yüklü hidrojellerin empedans deęerinin 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans aralıęında yavaşça, 10^5 Hz üzeri frekanslarda ise hızlı bir şekilde doğrusal olarak azaldığı tespit edildi. Düşük frekanslarda en yüksek ve en düşük empedans deęerinin sırasıyla 75 ve 25 mg/L katkıli hidrojele ait olduğu belirlendi. Ayrıca 10^4 Hz– 10^5 Hz frekans aralıęında tüm numunelerin empedans deęerlerinin dielektrik durulma mekanizmasından etkilendięi ve bu etkinin bir sonucu olarak da tüm örneklerin empedans deęerinin azalmaya başladığı tespit edildi. Artan frekansla birlikte numunelerin empedans deęerleri arasındaki farkın giderek kaybolduęu ve birbirlerine çok yakın deęerler aldığı tespit edildi. Yüksek frekans bölgesinde malzemelerin empedansının en yüksek ve en düşük deęerlerinin sırasıyla, 75 ve 50 mg/L yüklü hidrojele ait olduğu saptandı.



Şekil 4.53. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya katkıli hidrojellerin empedansının frekansla deęişimi

Tüm malzemelerin empedansının 10^4 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında katkılanan boya derişime baęlı olarak dalgalı bir tutum sergiledięi belirlendi. Bu dalgalı tutumun yařandığı bölgenin tüm örneklerin empedans özelliklerini belirleyen bulk yapının yerini yüzey yapının aldığı bir geçiř bölgesi olduęu saptandı. Bu geçiř bölgesinde malařit yeřil oksalat boya iyonları ile hidrojellerin bantları arasında yařanan ara yüzey etkileřimlerin çok yoęun olduęu tespit edildi. Frekansın düşük olduęu bölgede numunelerin empedansının yüksek deęerler almasını elektrot polarizasyon mekanizmasının saęladığı tespit belirlendi. Bu bölgede oluřan elektrot polarizasyondan dolayı tüm numuneler üzerinde yüksek kapasitif etkinin oluřtuęu saptandı. Artan frekansla birlikte numuneler üzerindeki yüksek kapasitif etkinin azalmasından dolayı yüklü hidrojellerin empedans deęerlerinin azaldığı görüldü (Wang ve Dong, 2007; Okutan vd., 2015; Sengwa ve Sankhla, 2007b; Padmasree vd., 2006; Saha vd., 2017; Pokhriyal ve Biswas, 2016; Cava vd., 1984; Rao vd., 2006).

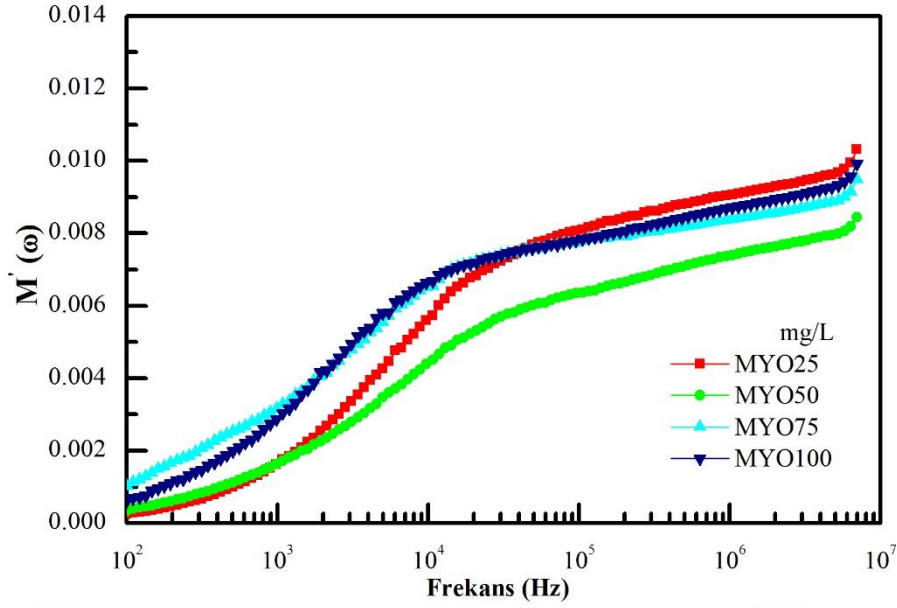
Farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) malařit yeřil oksalat boya katkılı hidrojellerin faz açısının frekansla deęişimine ait deneysel sonuçlar Şekil 4.54' de gösterildi. Bu malzemelerin faz açısı deęerinin 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında hemen hemen sigmoid ($1/(1 + e^{\omega})$) olarak azaldığı görüldü. 10^5 Hz üzeri bölgede ise numunelerin faz açısı deęerinin frekanstan baęımsız davrandığı ve nerdeyse sıfıra gittięi belirlendi. Düşük frekanslarda numunelerin faz açısının en düşük deęeri 75 mg/L, en yüksek deęerinin ise 25 mg/L yüklü hidrojele ait olduęu görüldü. Bu bölgede örneklerin genellikle benzer davranıř gösterdiği fakat 75 mg/L yüklü hidrojelin dięerlerinden farklı davrandığı tespit edildi.



Şekil 4.54. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya katkıli hidrojellerin faz açısının frekansla deęişimi

Bu farklı davranışın, 75 mg/L yüklü hidrojinin faz açısının dięer numunelere kıyasla daha farklı viskoelastik süreç geçirmesinden kaynaklandığı saptandı. Ayrıca bu numunenin Maxwell akışkanındaki ilişim etkilerinin, viskoelastik sistemdeki dielektrik durulmanın ve Brown hareketinin dinamik davranışının farklı olduğu sonucuna varıldı. Buna ek olarak bu davranışın, Şekil 4.49' da gösterilen tanjant faktörünün ($\delta = 90^\circ - \varphi$) frekansla olan deęişimiyle uyumlu olduğu tespit edildi. Katkıli hidrojinin 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında faz açısı deęerinin elektrot polarizasyon mekanizmadan, 10^5 Hz– 10^7 Hz frekans aralığında ise dielektrik durulma mekanizmasından etkilendięi tespit edildi (Keller ve Licastao, 1959; Taylora vd., 2005; Yalçın, vd, 2013; Conde, vd., 2003; Chen, vd., 2007).

Farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) malaşit yeşil oksalat boya katkıli hidrojinin karmaşık elektrik modülünün gerçek ($M'(\omega)$) kısmının frekansla deęişimine ait deneysel sonuçlar Şekil 4.55' de verildi. Bu numunelerin $M'(\omega)$ deęerinin artan frekansla birlikte asimptotik olarak arttığı belirlendi. Düşük frekans bölgesinde bütün örneklerin $M'(\omega)$ deęerinin sıfıra gitmeye meyilli olduğu tespit edildi. Frekansın yüksek deęerlerinde $M'(\omega)$ ' nün en düşük deęerinin 50 mg/L yüklü hidrojele, en yüksek deęerinin ise 25 mg/L yüklü hidrojele ait olduğu belirlendi.

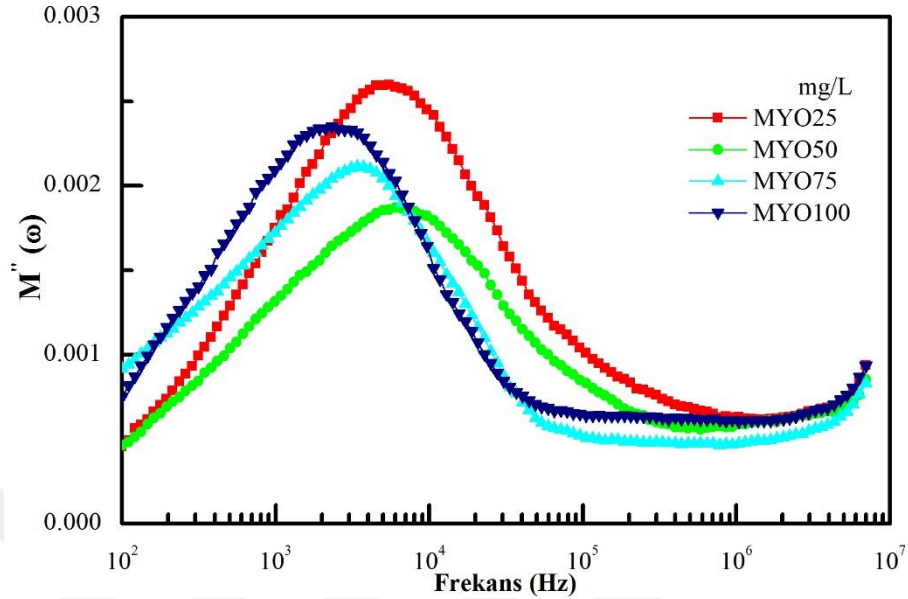


Şekil 4.55. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya katkıli hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün gerçek kısmının frekansla deęişimi

Düşük frekanslarda $M'(\omega)$ ' nün düşük deęerinin elektrot polarizasyondan kaynaklandığı tespit edildi. Artan frekansla birlikte numunelerin $M'(\omega)$ deęerinde yaşanan asimtotik davranışın ise boya iyonlarının iletkenlik etkisinden kaynaklandığı saptandı. 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında katkıli hidrojellerin $M'(\omega)$ deęerinin boya derişime baęlı olarak dalgalı bir davranış (fluctuation behavior) sergilediği belirlendi. Yüksek frekanslarda numunelerin artan $M'(\omega)$ deęerinin dielektrik durulma mekanizmasından kaynaklandığı belirlendi. Ayrıca bu bölgede hidrojellin kanalları içinde malaşit yeşil oksalat boya iyonlarının artan mobilitesinin de örneklerin $M'(\omega)$ deęerinin yüksek olmasında etkili olduğu tespit edildi (Dixon, 1990; Rouahi vd., 2013; Yu vd., 2000; Zhang vd., 2005; Smaoui vd., 2009; Bordi vd., 2007; Deraman vd., 2014; Liew vd., 2012; Ram ve Chakrabarti, 2008; Padmasree vd., 2006; Gogulamurali vd., 1992; Ramesh ve Chai, 2007).

Şekil 4.56' da farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) malaşit yeşil oksalat boya katkıli hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının ($M''(\omega)$) frekansla deęişimine ait deneysel veriler gösterildi. Katkıli hidrojellerin $M''(\omega)$ deęerlerinin 10^3 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında bir tepe deęere ulaştığı görüldü. Buna ilaveten bütün numunelerin tepe deęerine ulaştığı bu aralığın kritik frekans olduğu tespit edildi. Bu kritik frekansın altındaki bölgede boya katyonlarının komşu bölgeye sıçrayabildikleri, altındaki bölgede ise bir potansiyel kuyuda sınırlandırılmış gibi davrandıkları tespit

edildi. Ayrıca kritik frekans değerinin genellikle artan derişimle arttığı, fakat bu genel durumu 25 mg/L yüklü hidrojelın bozduđu belirlendi.



Şekil 4.56. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya katkılı hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının frekansla deđişimi

Diđer taraftan boya yüklü hidrojellerin $M''(\omega)$ deđerinin artan derişimle birlikte genellikle düşük frekans bölgesine dođru kaydığı tespit edildi. Düşük frekanslarda elektrot polarizasyon etkiden dolayı tüm numunelerin $M''(\omega)$ deđerinin düşük olduđu görüldü. Orta frekans deđerlerinde ise tüm numunelerin $M''(\omega)$ deđerlerinin dielektrik durulma mekanizmasından etkilendiđi belirlendi. Bu bölgede oluşan tepe deđerlerinin katyonik boya iyonlarının uzun menzilli hareketlilikten kısa menzilli hareketliliđe geçişine karşılık geldiđi saptandı. Yüksek frekanslarda ise tepe deđerine ulaşan numunelerin yeniden azalışa geçmesinin yeniden yönelim polarizasyonundan kaynaklandıđı belirlendi. Ayrıca uygulanan dış elektrik alanın frekansı ile iyonları hareket ettiren frekansın eşit olduđu durumda $M''(\omega)$ deđerinin maksimum noktaya ulaştığı tespit edildi. $M''(\omega)$ tepe deđerine ulaştığında sistemin ara yüzey polarizasyon tarafından kontrol edildiđi belirlendi. Bu bölgede boya iyonlarının mobilitesinin giderek arttığı tespit edildi. Farklı derişimlerde MYO yüklenmiş hidrojellerin elektrik modülünün sanal kısmının tepe deđerleri ve bu tepe deđerlerine karşılık gelen kritik frekans deđerleri Çizelge 4.6' da sunuldu. Karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının pik deđerlerinin en yüksek olduđu numunenin 2.5946×10^{-3} ile 25 mg/L MYO katkılı örnek olduđu belirlendi. Bu durumun boya iyonları ile hidrojele ait gruplar arasındaki

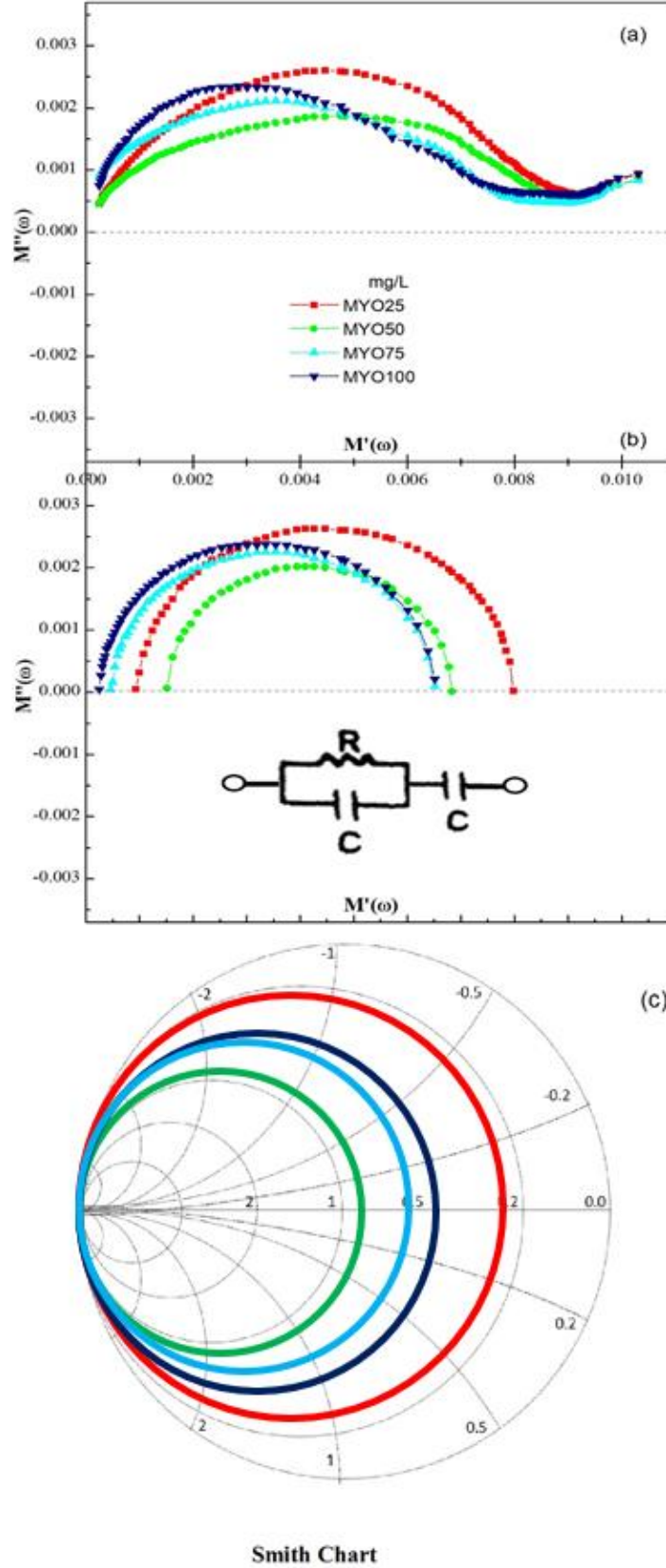
ara yüzey etkileşmelerin 25 mg/L MYO katkılı hidrojelde daha zayıf olmasından kaynaklandığı tespit edildi. Ayrıca 50 mg/L MYO katkılı hidrojelden başlamak üzere artan boya derişimi ile birlikte $M''(\omega)$ ' nün tepe deęerinin artan iyon difüzyonundan ötürü giderek arttığı belirlendi. Çizelge 4.6' da daki kritik frekans deęerleri incelendiğinde en yüksek kritik frekansın 6235,50 Hz deęeri ile 50 mg/L MYO katkılı hidrojele ait olduğu görüldü. Dolasıyla 50 mg/L MYO katkılı numunenin durulma frekansının dięer derişimlerde katkılı hidrojellere kıyasla daha yüksek olduğu sonucuna varıldı. Buradan hareketle 50 mg/L MYO katkılı numunenin iletim mekanizmasının daha uzun süre bozulmadan korunabildiğı tespit edildi (Singh vd., 2017; Wang vd., 2017; Akhtar vd., 2018; Ramesh ve Chai, 2007; Karmakar ve Ghost, 2012; Tsangaris vd., 1998; Boucher vd., 2006; Kaiser, 2012; Macedo vd., 1972; Ranjan vd., 2011; Borsa vd., 1992).

Çizelge 4.6. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya yüklü hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının pik deęerleri ve kritik frekans deęerleri

Numune adı	Karmaşık elektrik modülünün sanal kısmının pik deęerleri (ω) x 10 ⁻³	Kritik frekans deęeri (Hz)
MYO 25	2.5946	5143,50
MYO 50	1.8411	6235,55
MYO 75	2.1174	3324,64
MYO 100	2.3334	2121,58

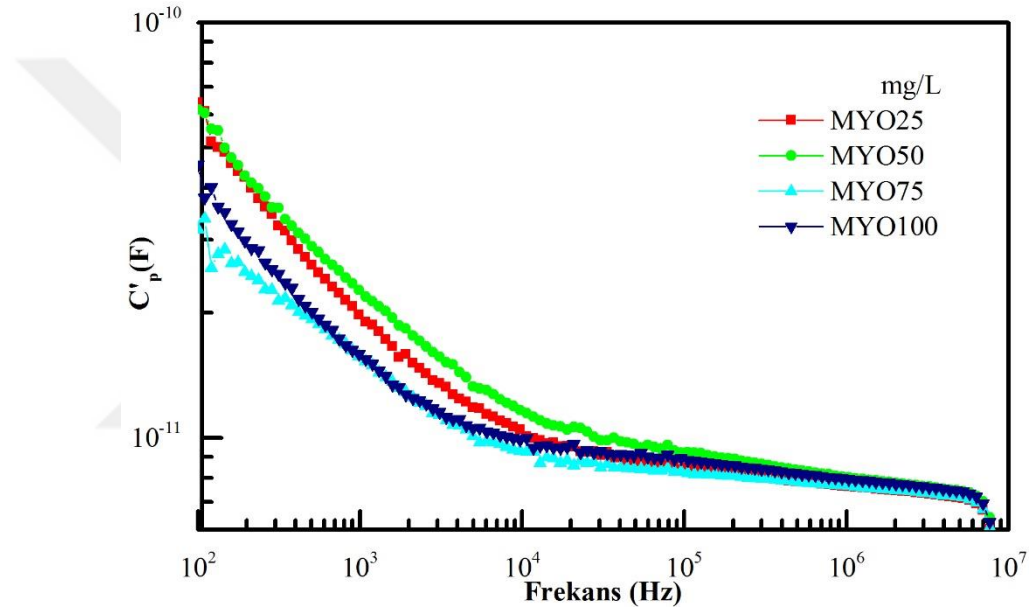
Farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) malaşit yeşil oksalat boya katkılı hidrojellerin karmaşık elektrik modülünün düzlem çizgilerinin ($M''-M'$) deneysel sonuçları, Maxwell elementli elektrik modülünün Cole–Cole diyagramı ve onların Smith Chart diyagramı ile uyumluluęu sırasıyla Şekil 4.57a, Şekil 4.57b ve Şekil 4.57c' de verildi. Bütün numunelerin $M''-M'$ düzlem çizgilerinin Cole–Cole durulma modeliyle uyumlu olduğu belirlendi. Boya katkılı hidrojellerin Cole–Cole çizgilerinin oluşumu üzerinde düşük, orta ve yüksek frekanslarda sırasıyla, elektrot polarizasyon, dielektrik durulma ve yeniden yönelim polarizasyonunun etkili olduğu saptandı. Katkılı numunelerin Cole–Cole düzlem çizgilerinin oluşmasından bu numunelerin elektronik uygulamalar açısından uygun olduğu tespit edildi. Eşdeęer bir elektrik devresine (RC) karşılık gelen Cole–Cole düzlem çizgilerinin teorik empedans devresini gösteren Smith

Chart diyagramı ile uyumlu olduğu saptandı. Şekilde gösterilen RC devresi için farklı derişimlerde MYO katlılı hidrojelilerin farklı direnç ve kapasitans deęerleri aldıęı belirlendi. MYO boya katlılı numuneler içinde en düşük direnç ve en yüksek kapasitans deęerine sahip RC devresinin 25 mg/L katlılı hidrojele ait olduęu tespit edildi. Bu örneęin oluřturduęu devrede direncin $1,8 \times 10^7$ Ohm, kapasitansın ise $8,7 \times 10^{-10}$ F deęerini aldıęı saptandı. En büyük yarım daireye oluřturan 25 mg/L K_rM katlılı hidrojin en düşük direnç deęerine sahip olması nedeniyle düşük frekans bölgesinde en yüksek iyonik iletkenlik sergileyeceęi öngöröldü. Dięer taraftan en yüksek direnç ve en düşük kapasitans deęerine sahip devrenin 75 mg/L MYO iyonu katlılı hidrojele ait olduęu belirlendi. Bu numunenin oluřturduęu Cole-Cole çizgilerine karřılık gelen RC devresi için direnç deęeri $7,9 \times 10^7$ Ohm ve kapasitans deęeri $6,3 \times 10^{-10}$ F olarak hesaplandı. 75 mg/L MYO katlılı hidrojin en yüksek direnç deęerinin, bu derişimde MYO boya iyonları ile hidrojel arayüzeyler arasındaki etkileşimlerin daha güçlü olmasından kaynaklandıęı saptandı. Doalsıyla hidrodinamik etkileşimlere sahip olan boya yüklü hidrojelilerin elektronik bir devrede kullanılabileceęi sonucuna ulařıldı. Ayrıca elektronik devre de kullanılacak MYO katlılı hidrojeliler için en uygun derişimde 25 mg/L olduęu tespit edildi (Wagner ve Richert, 1997; Böettcher ve Bordewijk, 1978; Cole ve Cole, 1941; Smith, 1939; Tsangaris vd., 1998; Richert ve Wagner, 1995; Tsangaris vd., 1991; Boyd, 1980; León vd., 1997; Yuan, 2012; Tomozawa vd., 1979; Richert ve Wagner, 1998).



Şekil 4.57. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya katkılı hidrojellerin elektrik modülün düzlem çizgileri (a), Maxwell elementli elektrik modülünün Cole-Cole diyagramı (b) ve onların Smith Chart diyagramına uyarlanmış hali (c)

Şekil 4.58’ de farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) malaşit yeşil oksalat boya katkıli hidrojjelerin kapasitansının frekansla deęişimine ait deneysel veriler gösterildi. Bu numunelerin kapasitans deęerinin artan frekansla birlikte üstel olarak azaldığı belirlendi. Frekansın düşük olduęu bölgede kapasitansın en yüksek ve en düşük deęerlerinin sırasıyla 25 ve 75 mg/L boya yüklü hidrojele ait olduęu görüldü. Bu bölgedeki kapasitansa ait en yüksek ve en düşük deęerlerin karmaşık dielektrik sabitin gerçek kısmıyla orantılı ($\epsilon' = Cd/\epsilon_0A$) ve empedansla da ters orantılı olduęu ($C = 1/(\omega Z)$) tespit edildi. Yüksek frekanslarda ise tüm örneklerin kapasitansının birbirine çok yakın deęerler aldığı ve neredeyse frekanstan bağımsız davrandığı belirlendi.

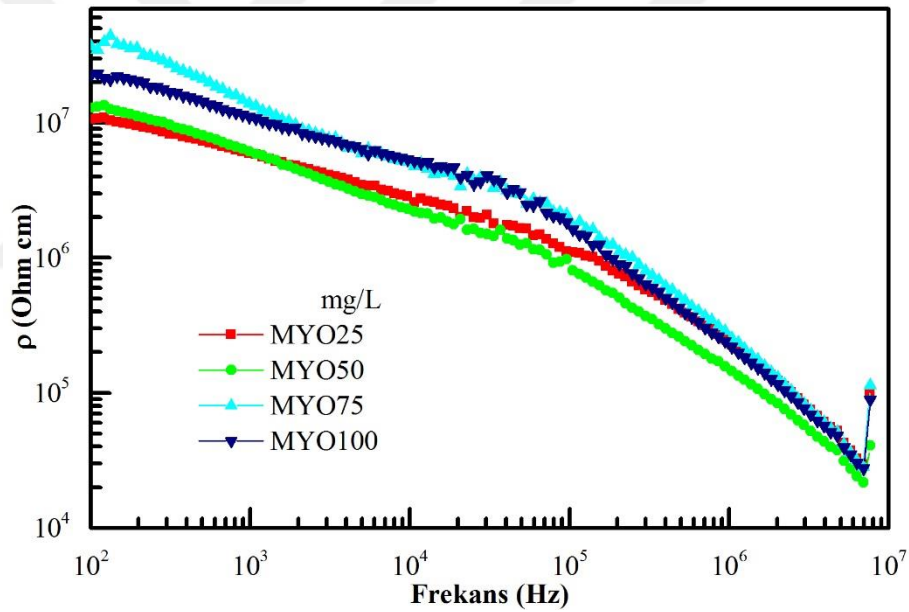


Şekil 4.58. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya katkıli hidrojjelerin kapasitansının frekansla deęişimi

Katkılı hidrojjelerin kapasitans deęerlerinin 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında derişime baęlı olarak dalgalı bir tutum sergilediğı tespit edildi. Bu dalgalı tutumun, boya iyonları ile hidrojjelerin bantları arasında oluřan ara yüzey etkileşimlerden kaynaklandığı saptandı. Düşük frekanslarda elektrotların iç yüzey alanlarında fazla boya iyonu birikmesinden dolayı derişime baęlı kalmaksızın tüm numunelerin kapasitansın yüksek deęerler aldığı belirlendi. Yani boya iyonlarının elektrot ara yüzeylerde uygulanan dış elektrik alan yönünde polarize olması ile oluřan elektrot polarizasyonun bu bölgede etkin olduęu tespit edildi. Ayrıca kapasitans deęerinin düşük frekans bölgesinde yüksek deęerler almasında elektrot/elektrolit ara sınır etkilerinde ciddi bir katkı sağladığı saptandı. Artan frekansla birlikte, numunelerin kapasitans deęerindeki azalmanın

dielektrik durulma mekanizmasından kaynaklandığı tespit edildi (Arbizzani vd., 2001; Simon ve Gogotsi, 2010; Pieta vd., 2013; Walter, 1991; Castela vd., 2001; Aureli ve Porfiri, 2012; Taberna vd., 2003; Conway vd., 1997; Pech vd., 2010).

Şekil 4.59’ da farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) malaşit yeşil oksalat boya katkılı hidrojelilerin yüzey özdirencinin frekansla olan gelişimine ait deneysel veriler gösterildi. Boya yüklü hidrojelilerin yüzey özdirenci değerinin 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında yumuşakca, 10^5 Hz üzerindeki bölgede ise hızlıca bir şekilde doğrusal olarak azaldığı tespit edildi. Düşük frekanslarda yüzey özdirencinin en düşük ve en yüksek değerlerinin 25 ve 75 mg/L boya yüklü hidrojele ait olduğu belirlendi. Ayrıca numunelerin yüzey özdirencinin en yüksek ve en düşük değerlerinin karmaşık empedansının en yüksek ve en düşük değerleri ile uyumlu olduğu tespit edildi.

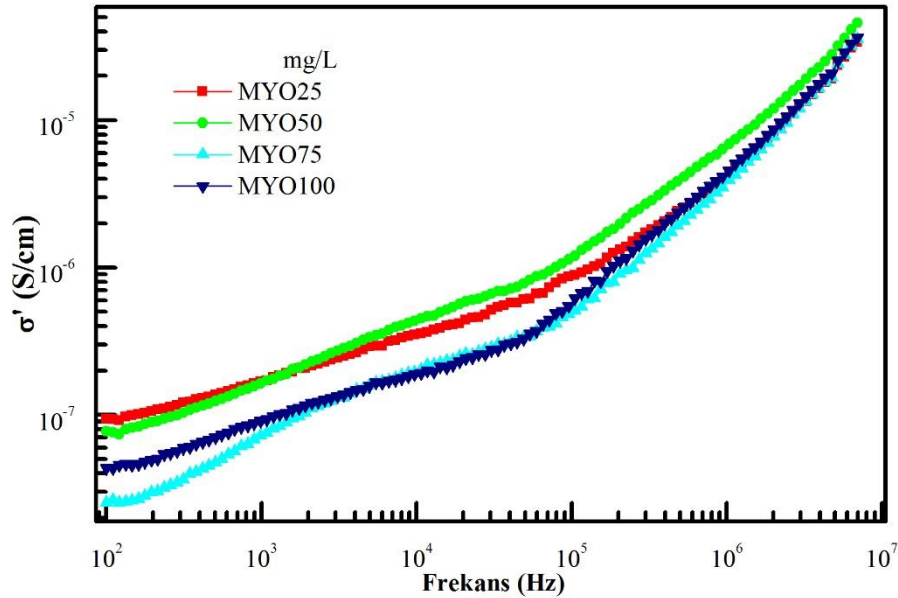


Şekil 4.59. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya yüklü hidrojelilerin yüzey özdirencinin frekansla değişimi

Yüksek frekanslarda en yüksek yüzey özdirenci değerinin aynı kaldığı, en düşük yüzey özdirenci değerinin ise 75 mg/L MYO boya yüklü hidrojele ait olduğu saptandı. Bu bölgedeki maksimum ve minimum yüzey özdirenci değerlerinin daha önce Şekil 4.58’ de verilmiş olan kapasitans değerleriyle ters çalıştığı tespit edildi. Ayrıca katılan boya derişiminin artmasıyla numunelerin yüzey özdirencinin arttığı, fakat derişim oranı 100 mg/L’ ye ulaşınca aniden azaldığı tespit edildi. Bu azalışın, 100 mg/L boya yüklenmiş hidrojellerdeki katyonlarının hidrojelilerin sınırlarından daha büyük kısıtlama

etkisi görmesinden kaynaklandığı belirlendi. Frekansın düşük olduğu bölgede elektrot polarizasyon etkiden dolayı tüm numunelerin yüzey özdirencinin yüksek değerler aldığı tespit edildi. Öte taraftan, artan frekansla birlikte dielektrik durulma mekanizmasından dolayı bütün örneklerin yüzey özdirencinin düşük değerler aldığı saptandı (Wu vd., 2005; Németh vd., 2003; Weiler ve Chaussidon, 1968; Yalçın vd., 2013; Jones vd., 1997; Webster, 2014; Souza Jr. vd., 2008; Lim vd., 2002; Okutan vd., 2015).

Farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) malaşit yeşil oksalat boya katkıli hidrojelilerin karmaşık iyonik iletkenliğin gerçek ($\sigma'(\omega)$) kısmının frekansla deęişimine ait deneysel sonuçlar 100 Hz–40 MHz frekans aralığında gösterildi. Bu numunelerin $\sigma'(\omega)$ deęerinin artan frekansla birlikte üstel olarak attığı tespit edildi. Düşük frekanslarda $\sigma'(\omega)$ ' nün en düşük deęerinin 75 mg/L, en yüksek deęerinin ise 25 mg/L boya yüklü hidrojele ait olduğu tespit edildi. 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında malzemelerin $\sigma'(\omega)$ deęerinin yüklenen boya derişime baęlı olarak dalgalı bir davranış sergiledikleri saptandı. Yüksek frekanslarda ise $\sigma'(\omega)$ ' nün en düşük ve en yüksek deęerinin sırasıyla, 75 ve 50 mg/L boya yüklü hidrojele ait olduğu görüldü.

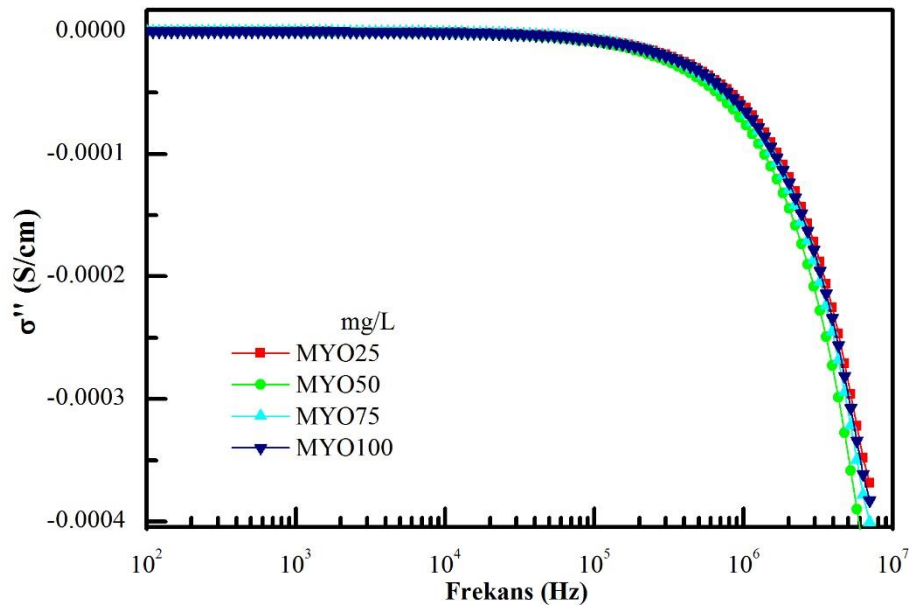


Şekil 4.60. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya katkıli hidrojelilerin karmaşık iyonik iletkenliğin gerçek kısmının frekansla deęişimi

Düşük ve yüksek frekans bölgesindeki bu iki durum dikkate alındığında numunelerin $\sigma'(\omega)$ ' nün en düşük ve en yüksek deęerlerin daha önce Şekil 4.49' da ifade edilen yüzey özdirenci ile ters çalıştığı ($\sigma = 1/\rho$) saptandı. Frekansın düşük olduğu bölgede boya

iyonlarının uygulanan dış elektrik alanın yönünde yönelmesi ile oluşan elektrot polarizasyon ve ara yüzeylerde oluşan empedans etkiden dolayı örneklerin $\sigma'(\omega)$ değerinin düşük olduğu belirlendi. Frekansın yüksek olduğu bölgede ise boya katyonlarının yüksek mobilitelerinden dolayı $\sigma'(\omega)$ değerinin yüksek olduğu tespit edildi. Diğer taraftan düşük frekans bölgesinde genellikle artan boya derişimi ile $\sigma'(\omega)$ değerinin azaldığı, fakat bu genel davranışa 100 mg/L yüklü hidrojelün uymadığı belirlendi. Buradan iyonik iletkenliğin yüklü hidrojellerin içindeki iyon taşıyıcılarının miktarına ve Jonscher güç yasasına güçlü bir şekilde bağlı olduğu tespit edildi. Ayrıca numunelerin iyonik iletkenlik özelliklerinin hidrojel yapının tane boyutundaki değişikliklere bağlı olduğu belirlendi (Venkateswarlu ve Satyanarayana, 1998; Jonscher, 1977; Gogulamurali vd., 1992; Capaccioli vd., 1998; Bordi vd., 2007; Sredić vd., 2008; Nam vd., 2004; Chen vd., 2000; Raghasudha vd., 2013; Ogihara vd., 2004; Minami, 1985; Jonscher, 1980).

Şekil 4.61' de farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) malaşit yeşil oksalat boya katkılı hidrojellerin karmaşık iyonik iletkenliğinin sanal kısmının ($\sigma''(\omega)$) geniş bir frekans aralığındaki gelişimine ait deneysel sonuçlar gösterildi. Tüm numunelerin $\sigma''(\omega)$ değerinin 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında frekanstan bağımsız davrandığı belirlendi. Bu frekans aralığında yüksek kapasitif etkiden dolayı numunelerin $\sigma''(\omega)$ değerinin sıfır olduğu tespit edildi.



Şekil 4.61. Farklı derişimlerde malaşit yeşil oksalat boya katkılı hidrojellerin karmaşık iyonik iletkenliğinin sanal kısmının frekansla deęişimi

Ayrıca bu bölgede serbest boya katyonlarının uygulanan dış alan yönünde polarize olmasıyla oluşan elektrot polarizasyonun da $\sigma''(\omega)$ değerinin sıfır olmasında etkisi olduğu belirlendi. Yüksek frekans bölgelerinde tüm numunelerin $\sigma''(\omega)$ değerinin monotonik olarak azaldığı tespit edildi. Bu monotonik azalışın, dielektrik durulma mekanizmasından kaynaklandığı saptandı. Ayrıca yüksek frekanslarda en düşük ve yüksek $\sigma''(\omega)$ değerinin sırasıyla, 50 ve 25 mg/L yüklü hidrojele ait olduğu belirlendi (Baskaran vd., 2006; Liew vd., 2012; MacCallum ve Vincent, 1988; Venkateswarlu vd., 2000; Kar ve Choudhary, 2002; Kashyap vd., 2012; Farea vd., 2008; León vd.,2001; Ratner ve Shriver, 1988; Harris, 1983).



BÖLÜM V

SONUÇ

Bu tez çalışmasında, radikalik katılma polimerizasyon yöntemi ile sentezlenen hidrojellere Ag^{+1} , Co^{+2} , Cr^{+3} , Mn^{+2} , Ni^{+2} metal, Rodamin-B (RB), Safranin (SR), Kristal-Mor (KrM) ve Malaşit Yeşil Oksalat (MYO) boya iyonu yüklenmiş numunelerin elektriksel ve dielektriksel özellikleri detaylıca incelendi. Radikalik katılma polimerizasyon yönteminin hidrojel sentezlemede en çok tercih edilen ve aynı zamanda en kolay sentezleme tekniklerinden biri olduğu sonucuna varıldı. Aynı zamanda Empedans Spektroskopi tekniğinin malzemelerin frekansa bağlı dielektrik özelliklerini belirlemede en etkin ve doğru tekniklerin başında geldiği belirlendi.

Aynı derişimde Ag^{+1} , Co^{+2} , Cr^{+3} , Mn^{+2} , Ni^{+2} metal iyonları, RB ve farklı dozlarda SR, KrM, MYO boya iyonları yüklenmiş hidrojellerin morfolojik karakterizasyonu Taramalı Elektron Mikroskop (SEM) ve Optik Mikroskop (OM) gibi teknikler kullanılarak yapıldı. Bu iki teknik yoluyla alınan görüntülerden metal ve boya iyonu yüklenmiş hidrojellerin boyutuna ve morfolojisine dair bilgiler elde edildi. SEM ve OM görüntülerinden metal ve boya iyonlarının hidrojellerin kanalları içinde homojen olarak dağıldığı görüldü. Malzemelerin dielektrik özelliklerinin belirlenmesi için kullanılan Empedans Spektroskopisi yönteminden kapasitans ve kayıp faktörü değerleri elde edildi. Elde edilen bu değerlerden numunelerin karmaşık dielektrik, elektrik modülü ve iyonik iletkenlik gibi ölçümlerinin frekansla olan gelişimi belirlendi.

Düşük frekans bölgesinde aynı derişimde (50 mg/L) RB boya ve Ag^{+1} , Co^{+2} , Cr^{+3} , Mn^{+2} , Ni^{+2} metal iyonları yüklenmiş hidrojellerin $\epsilon'(\omega)$ değerleri açısından Ag^{+1} metal ve RB boya iyonları yüklü hidrojellerin birbiriyle, Co^{+2} ve Ni^{+2} metal iyonları yüklü hidrojellerin birbiriyle, Cr^{+3} ve Mn^{+2} metal iyonları yüklü hidrojellerin de birbiriyle benzer davranış sergilediği görüldü. Bu bölgede metal/boya iyonlarının ara yüzeyde oluşturduğu polarizasyon etkiden dolayı tüm örneklerin $\epsilon'(\omega)$ değerinin yüksek olduğu belirlendi. Ayrıca bu numunelerin 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında metal/boya iyonları ile hidrojellerin bantları arasındaki etkileşimlerden kaynaklanan dalgalı bir davranışa sahip oldukları tespit edildi. Yüksek frekanslarda ise numunelerin $\epsilon'(\omega)$ değerinin dielektrik durulmadan kaynaklanan bir azalış sergilediği saptandı. Katkılanmış numunelerin $\epsilon''(\omega)$ değerinin frekansla olan değişiminin $\epsilon'(\omega)$ ile hemen hemen aynı

olduğu tespit edildi. Ag^{+1} iyonu katkılı hidrojellerin tanjant faktörünün frekansla olan gelişiminin diğerlerinden farklı olduğu görüldü. Bu örneğin tanjant faktörünün orta frekans bölgesinde frekanstaki salınım bağımlılığına ve rotasyon hareketindeki moleküler titreşimine bağlı olarak bir tepe değere sahip olduğu tespit edildi. Gerek düşük gerekse yüksek frekanslarda RB boya iyonları yüklü hidrojelin metal iyonları katkılı hidrojellere göre daha küçük empedans değerlerine sahip olduğu belirlendi. Bütün örneklerin faz açısının frekansla sarmal değişiminin viskoelastik karakteristik özellikten kaynaklandığı tespit edildi. Bu numunelerin faz açısının tanjant faktörü değeri ile uyumlu ($\delta = 90 - \varphi$) olduğu belirlendi. Ayrıca numunelerin $\tan \delta$ değerlerinin birden büyük olmasından bu malzemelerin iletimlerinin hemen hemen Ohm yasasına uygun davrandığı sonucuna varıldı. Co^{+2} ve Ni^{+2} , Cr^{+3} ve Mn^{+2} iyonları katkılı hidrojellerin faz açısının frekansla değişiminin birbirlerine çok benzemesinin bu geçiş elementlerinin atom çaplarının ve elektron ilgilerinin birbirlerine çok yakın olmasından kaynaklandığı tespit edildi. Benzer şekilde RB boya iyonunun atom çapının ve elektron ilgisinin Ag^{+1} iyonuna yakın olduğu sonucuna varıldı. Düşük ve yüksek frekans bölgesinde en yüksek kapasitans değerlerinin sırasıyla Ag^{+} ve RB katkılı hidrojellere ait olduğu gözlemlendi. Frekansın tüm bölgelerinde metal iyonlarına kıyasla daha büyük mobiliteye sahip olan RB boya iyonu yüklü hidrojelin en yüksek $\sigma'(\omega)$ değerine sahip olduğu tespit edildi. Diğer taraftan düşük frekans bölgesinde boya/metal iyonu katkılı hidrojellerin $M'(\omega)$ ve $M''(\omega)$ değerlerinin elektrot polarizasyon etkiden dolayı sıfır değeri aldığı tespit edildi. Bu malzemelerin elektrik modülünün düzlem çizgilerinin (Cole–Cole çizgilerinin) non-Debye durulma modeliyle uyumlu olduğu belirlendi. Eşdeğer bir elektriksel devreye karşılık gelen Cole–Cole çizgilerinin oluşmasından bu malzemelerin elektronik devrelerde kullanılabileceği sonucuna varıldı. RB boya iyonu katkılı hidrojellerin düşük empedans ve yüksek iyonik iletkenlik özelliklerine sahip olması nedeni ile teknolojik uygulamalar açısından daha uygun olduğu belirlendi. Bu numuneler için elde edilen sonuçların literatür ile uyumlu olduğu bulundu (Conde, vd., 2003; Chen, vd., 2007; Okutan vd., 2015; Saha vd., 2017; Dereman vd., 2014; Sengwa ve Sankhla, 2007a; Cole ve Cole, 1941; Tsangaris vd., 1998; Capaccioli vd., 1998).

Farklı derişimlerde (25, 50, 75, 100, 200 ve 300 mg/L) SR boya katkılı hidrojellerin $\varepsilon'(\omega)$ değerinin düşük frekanslarda derişime bağlı olarak dalgalı bir tutum sergilediği belirlendi. Yüksek frekanslarda ise elektrik alanın periyodik ters çevriminin çok hızlı olmsından dolayı numunelerin $\varepsilon'(\omega)$ değerinin giderek azaldığı tespit edildi. Diğer

tarafından düşük ve yüksek frekans bölgelerinde en yüksek $\varepsilon''(\omega)$ değerinin sırasıyla 100 ve 50 mg/L SR yüklenmiş hidrojelere ait olduğu saptandı. 10^2 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında tüm örneklerin $\tan(\delta)$ değerinin frekanstaki salınım bağımlılığına bağlı olarak bir tepe değere sahip olduğu gözlemlendi. Bu tepe değerinin katılanan derişim oranı 100 mg/L ye kadar artırıldığında yüksek frekans bölgesine, daha yüksek derişimlerde ise tekrar düşük frekans bölgesine doğru kaydığı tespit edildi. Frekansın düşük değerlerinde numunelerin rezistans ve empedans değerlerinin derişime bağlı dalgali bir davranış sergiledikleri görüldü. Bu bölgede rezistansının ve empedansın en yüksek değerinin 25 mg/L, en düşük değerinin ise 100 mg/L katkıli hidrojele ait olduğu tespit edildi. 10^2 Hz– 10^6 Hz frekans aralığında bir tepe değerine sahip olan SR boya katkıli hidrojellerin faz açısının artan derişimle birlikte yüksek frekans bölgesine doğru kaydığı, lakin bu duruma 75 ve 200 mg/L yüklü hidrojellerin uymadığı tespit edildi. Düşük frekans bölgesinde yaşanan yüksek kapasitif etkiden dolayı katkıli hidrojellerin $M'(\omega)$ ve $M''(\omega)$ değerlerinin sıfıra gittiği belirlendi. Diğer taraftan numunelerin $M''(\omega)$ ' ne ait tepe değerlerinin artan derişimle birlikte genellikle yüksek frekans bölgesine doğru kaydığı, 75 ve 200 mg/L katkıli hidrojellerin bu davranışa uymadığı tespit edildi. Numunelerin tepe değerlerinin yüksek frekans bölgesine kaymasını sağlayan ara yüzey polarizasyon etkinin 75 ve 200 mg/L SR katkıli hidrojeller üzerine etkisinin diğer derişim oranlarına göre zayıf olmasından kaynaklandığı belirlendi. Bu iki derişim değerinin SR katkıli hidrojeller için kiritik derişim değeri olduğu tespit edildi Buradan hareketle numunelerin faz açısı ile $M''(\omega)$ tepe değerlerinin bulunduğu frekansın derişime bağlı gelişimlerinin birbiriyle uyumlu olduğu görüldü. Katkıli numunelerin Cole-Cole dairelerinin $M''(\omega)$ ' nün tepe değerleri ile uyumlu olduğu tespit edildi. Buna ilaveten eşdeğer bir elektrik devresine (RC) karşılık gelen Cole–Cole çizgilerinin teorik empedans devresini gösteren Smith Chart diyagramı ile uyumlu olduğu belirlendi. En yüksek kapasitans, en düşük öz direnç ve en yüksek iyonik iletkenliğe sahip olan 100 mg/L SR yüklü hidrojin elektronik uygulamalar için en uygun numune olduğu sonucuna varıldı. Ayrıca iletim mekanizması hakkında bilgi veren s değerleri tüm numunelerin için farklı üç bölgede ayrı ayrı hesaplandı. 25 mg/L katkıli örnek için polarizasyon, plato ve dağılım bölgelerindeki s değerleri sırasıyla 1,17, 0,72 ve 3,04 olarak tespit edildi. Dolayısıyla 25 mg/L SR katkıli hidrojin polarizasyon bölgesinde iletim mekanizmasının süper doğrusal güç kanunu (Super Linear Power Law/SLPL) ilişkili olduğu saptandı. Aynı zamanda bu numunenin plato bölgesindeki iletim mekanizmasının kuantum mekanik tünel (Quantum Mechanical

Tunneling/QMT) mekanizmasıyla ilişkili olduğu belirlendi. Bunlara ek olarak 25 mg/L dağılım bölgesindeki iletim mekanizmasının süper doğrusal güç kanunu (Super Linear Power Law/SLPL) ilişkili olduğu tespit edildi. Burada da elde edilen sonuçların literatür ile uyumlu olduğu belirlendi (Tiwari vd., 2013; Elliot, 1994; Ke vd., 2010; Cramer and Buscher, 1998; Tiwari ve Shahi, 2005; Canli vd, 2017; Kılıç vd., 2018; Coşkun vd., 2017; Simon ve Gogotsi, 2010; Smith, 1939; Tsangaris vd., 1998; Pokhriyal ve Biswas, 2016; Dutta vd., 2007).

Farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) kristal mor boya iyonları yükü hidrojenlerin derişime bağılı $\epsilon'(\omega)$ ve $\epsilon''(\omega)$ değerlerinin kristal mor boya katyonları ile hidrojenlerin bantları arasında oluşan ara yüzey etkileşimlerden kaynaklanan dalgalı bir davranış sergilediği tespit edildi. Düşük frekanslarda numunelerin $\epsilon'(\omega)$ ve $\epsilon''(\omega)$ değerlerinin boya iyonlarının elektrot-elektrolit ara yüzeyde uygulanan dış elektrik alan yönünde polarize olmaları ile oluşan elektrot polarizasyon etkiden dolayı yüksek olduğu belirlendi. Düşük frekanslarda 25 mg/L boya katkılı hidrojenin $\tan(\delta)$ değerinin diğer numunelere göre alternatif bir davranış sergilediği ve bir tepe değerine sahip olduğu tespit edildi. Ayrıca bu bölgede örneklerin $\tan(\delta)$ değerinin genellikle artan boya derişimi ile giderek azaldığı fakat bu azalışa 75 mg/L boya katkılı hidrojenin aykırı davrandığı gözlemlendi. Bu aykırı davranışın nedeni olarak 75 mg/L boya katkılı hidrojenin emilim akımının farklı olması görüldü. Yani artan boya derişimiyle hidrojenin arayüz katmanında oluşan emilim akımı azaldığı fakat 75 mg/L derişimdeki katkılamada emilim akımının arttığı tespit edildi. 10^4 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında numunelerin rezistans, reaktans ve empedans değerlerinin hacimsel (bulk) yapıdan ziyade yüzey yapının baskın olduğu bir geçiş bölgesinden etkilendiği tespit edildi. Düşük frekanslarda (geçiş bölgesinin altında) kristal mor boya yüklü hidrojenlerin rezistans, reaktans ve empedansının en yüksek değerinin 75 mg/L, en düşük değerinin ise 25 mg/L yüklü hidrojenle ait olduğu tespit edildi. Yine bu bölgede numunelerin faz açısının en düşük ve en yüksek değerlerinin sırasıyla, 100 mg/L ve 25 mg/L katkılı hidrojenle ait olduğu belirlendi. Ayrıca 25 mg/L yüklü hidrojenin sahip olduğu viskoelastik etkileşimlerin farklı olmasından dolayı diğer numunelerden değişik davranış sergilediği tespit edildi. Yüksek frekanslarda dielektrik durulmaya bağılı olarak boya iyonlarının yüksek hareketliliğinden dolayı numunelerin $M'(\omega)$ ' nün yüksek değerler aldığı saptandı. Ayrıca tüm örneklerin $M''(\omega)$ değerinin 10^3 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında bir tepe değere sahip olduğu ve artan derişimle birlikte azaldığı görüldü. Diğer taraftan

örneklerin $M''(\omega)$ tepe değerinin artan derişimle birlikte genellikle düşük frekans bölgesine doğru kaydığı, fakat 100 mg/L yüklü hidrojjelerin bu genel davranışa uymadığı belirlendi. Elektrot polarizasyon, dielektrik durulma ve yeniden yönelim polarizasyonunun sırasıyla düşük, orta ve yüksek frekans bölgelerinde numunelerin Cole–Cole çizgilerinin oluşumu üzerinde etkili olduğu tespit edildi. Hidrodinamik etkileşimlere sahip boya yüklü hidrojjelerin eşdeğer bir elektrik devresine karşılık gelen Cole–Cole çizgilerinin oluşmasından bu malzemelerin sentetik bir devrede kullanılabileceği sonucuna ulaşıldı. Düşük frekanslarda elektrotların iç yüzey alanlarında fazla boya iyonu birikmesinden dolayı örneklerin derişime bağlı kalmaksızın hepsinin kapasitansının yüksek değerler aldığı saptandı. Malzemelerin $\sigma'(\omega)$ değerinin 10^3 Hz– 10^5 Hz frekans aralığında katkılanan boya derişime bağlı olarak dalgali bir davranışa sahip olduğu tespit edildi. Düşük ve yüksek frekanslarda sırasıyla, 25 ve 100 mg/L yüklü hidrojjelerin daha yüksek iyonik iletkenliğe sahip olduğu belirlendi (Öztürk vd., 2018; Dyre, 1991; Kumar vd., 2008; Dixon, 1990; Smaoui vd., 2009; Deraman vd., 2014; Liew vd., 2012; Akhtar vd., 2018).

Farklı derişimlerde (25, 50, 75 ve 100 mg/L) malaşit yeşil oksalat boya yüklü hidrojjelerin frekasin düşük olduğu bölgelerde boya iyonlarının uygulanan elektrik alanın yönünde polarize olmasından dolayı $\varepsilon'(\omega)$ değerinin yüksek olduğu belirlendi. Yüksek frekanslarda ise tüm örneklerin $\varepsilon'(\omega)$ ' nün düşük değer almasında Maxwell dinamiklerinin, katyonlarının hareketliliğinin ve dipollerin durulmasının kombine etkisinin olduğu saptandı. Bu numunelerin $\varepsilon''(\omega)$ değerinin 10^3 Hz– 10^6 Hz frekans aralığında derişime bağlı olarak bir dalgali davranış sergilediği tespit edildi. Bu dalgali davranışın, boya iyonları ile hidrojjelerin bantları arasında oluşan ara yüzey etkileşimlerden kaynaklandığı, 25 ile 50 ve 75 ile 100 mg/L boya yüklü hidrojjelerin aralarında yaşandığı görüldü. Düşük frekanslarda genellikle numunelerin $\tan(\delta)$ değerinin derişimle ters orantılı olduğu görüldü. Fakat farklı viskoelastik dinamiklerden dolayı 75 mg/L boya katkılı hidrojjelin diğer örneklere göre ters davranmadığı tespit edildi. Bu malzemelerin tanjant faktörü ile faz açısı birlikte incelendiğinde düşük frekanslarda tanjant faktörü değerlerinin birden büyük olduğu ($\tan\delta > 1$) saptandı. Bu bölgede tanjant faktörünün birden büyük değerler almasından boya yüklü hidrojjelerin iletkenliğinin nerdeyse tamamen ohmik (Ohm yasası) davrandığı sonucuna varıldı. Düşük frekans bölgesinde tüm örneklerin empedans ve rezistansının elektrot/elektrolit ara yüzeylerde oluşan ara yüzey polarizasyon etkiden dolayı yüksek değerler aldığı

belirlendi. Bütün numunelerin $M''-M'$ düzlem çizgilerinin Cole–Cole durulma modeliyle uyumlu olduğu görüldü. Malaşit yeşil oksalat yüklü hidrojellerin elektrik modülünün en yüksek ve düşük Cole–Cole çizgilerinin elektrik modülün sanal kısmının maksimum ve minimum tepe değerleri ile ahenk içinde olduğu tespit edildi. Düşük frekanslarda numunelerin kapasitansına ait en yüksek ve en düşük değerlerin karmaşık dielektrik sabitin gerçekte kısmıyla orantılı ($\epsilon' = Cd/\epsilon_0A$) olduğu ve empedans değerleriyle de ters orantılı olduğu ($C = 1/(\omega Z)$) tespit edildi. Derişime bağlı yüzey özdirenci değerleri incelendiğinde 75 mg/L derişime kadar artan derişimle birlikte yüzey özdirencinin arttığı, derişim oranı 100 mg/L' ye ulaşınca bu değerinin aniden azaldığı görüldü. Bu azalışın, 100 mg/L boya katyonlarının hidrojel sınırlarında daha büyük boyutta sınırlama etkisi görmesinden kaynaklandığı belirlendi. Frekansın düşük olduğu bölgede boya iyonlarının uygulanan dış elektrik alanın yönünde yönelmesi ile oluşan elektrot polarizasyon ve ara yüzeylerde oluşan empedans etkiden dolayı tüm örneklerin $\sigma'(\omega)$ değerinin düşük olduğu belirlendi. Yüksek frekanslarda ise boya katyonlarının yüksek mobilitesinden dolayı $\sigma'(\omega)$ değerinin yüksek olduğu saptandı. İyonik iletkenliğin katkılı hidrojellerin içerisindeki iyon taşıyıcılarının miktarına ve Jonscher güç yasasına güçlü bir şekilde bağlı olduğu tespit edildi. Ayrıca boya katkılı hidrojellerin iyonik iletkenlik özelliklerinin boya derişimleri nedeniyle hidrojel yapısının tane boyutundaki değişikliklere de bağlı olduğu saptandı (Kashyap vd., 2012; Lim vd., 2002; Pröbstle vd., 2002; Yuan, 2012; Padmasree vd., 2006; Gogulamurali vd., 1992; Keller ve Licastao, 1959).

Aynı derişimde (50 mg/L) RB, SR, KrM ve MYO iyonik boya yüklü hidrojellerin $\epsilon'(\omega)$ değerlerinin frekansla gelişimde RB ve SR katkılı örneklerin daha keskin bir davranış sergilediği görüldü. Düşük frekanslarda en yüksek değerin RB katkılı, en küçük değerin ise SR katkılı numunelere ait olduğu tespit edildi. Genel olarak bu örnekler için $\epsilon'(\omega)$ değerlerinin elektrot polarizasyondan dolayı yüksek çıktığı belirlendi. Bu örneklerin $\epsilon''(\omega)$ ' nün frekansla gelişiminin $\epsilon'(\omega)$ gibi davranış sergilediği, RB yüklü örneklerin ise farklı davrandığı belirlendi. Elektrot-elektrolit ara yüzünde biriken boya iyonların uygulanan elektrik alan yönünde polarizasyonundan dolayı düşük frekanslarda $\epsilon''(\omega)$ yüksek değerler aldığı tespit edildi. Bu malzemelerin tanjant faktörünün ($\tan(\delta)$) frekanstaki salınım bağımlılığından dolayı tepe değerine sahip olduğu belirlendi. Bu örneklerin tepe değeri düşük frekanslarda gözlenirken SR yüklü hidrojinin tepe değeri 10^4-10^5 Hz civarlarına olduğu görüldü. Düşük frekanslarda elektrot polarizasyon

etkiden dolayı empedansın en yüksek değeri MYO iyonu katkılı hidrojele, en düşük değerinin ise RB iyonu katkılı hidrojele ait olduğu belirlendi. Frekansın yüksek olduğu bölgelerde boya iyonlarının iletme katkısının giderek arttığı tespit edildi. Düşük frekanslarda SR yüklü hidrojin diğer örneklere kıyasla daha yüksek $M'(\omega)$ değeri alınırken, yüksek frekanslarda iyonik iletkenlikten dolayı bütün örneklerin $M'(\omega)$ değerlerinin yüksek olduğu bulundu. Hidrojellerin kanalları içinde boya iyonlarının hareketinin kısıtlanmasından dolayı tüm numunelerin $M''(\omega)$ ' nün bir tepe (sinyal) değerine sahip olduğu belirlendi. RB, SR, KrM ve MYO katkılı örneklerin özellikle düşük frekanslarda yüksek kapasitif özellikler sergilediği tespit edildi. Bu örnekler arasında kapasitif değerinin en yüksek olduğu SR, en düşük olduğu ise RB yüklü hidrojel olduğu kaydedildi. Numunelerin yüzey özdirençlerinin ara yüzey polarizasyon etkisinden dolayı yüksek çıktığı bulundu. Bütün frekanslarda yüzey özdirençinin en düşük olan numunenin RB katkılı hidrojin olduğu tespit edildi. Metal iyonları yüklenmiş hidrojin hiçbirisi boya iyonları yüklenmiş hidrojin yüzey özdirençlerinden büyük olmaması nedeniyle opto-elektronik uygulamalar için iyon yüklü en uygun hidrojin RB katkılı malzeme olduğu sonucuna varıldı. RB boya iyonunun hidrojel kanallar içindeki mobilitesinin daha yüksek olmasından dolayı bu boya iyonu ile katkılanmış hidrojin diğer boya katkılı hidrojelere göre daha yüksek iyonik iletkenliğe sahip olduğu tespit edildi (Yalçın vd., 2013; Okutan vd., 2015; Coşkun vd., 2017; Öztürk vd., 2018; Saha vd., 2017; Gürbüz vd., 2016; Pokhriyal ve Biswas, 2016; Coşkun vd., 2012; Pradhan vd., 2008; Smaoui vd., 2009; Dixon, 1990; Tsangaris vd., 1998; Wan vd., 1995; Capaccioli vd., 1998).

Metal iyonu katkılanmış hidrojelere kıyasla daha yüksek iyonik iletkenlik ve daha düşük empedans değerlerine sahip olan boya iyonları katkılanmış hidrojin teknolojik uygulamalar açısından daha uygun olduğu tespit edildi. İyonik boya yüklenmiş hidrojin Cole–Cole çizgilerine karşılık gelen Smith Chart eğrileri elde edildi. Bu Smith Chart eğrilerinden yararlanılarak her bir malzemeye karşılık gelen eşdeğer elektrik devreleri tespit edildi. Buradan elde edilen sonuçlara göre iyonik boya yüklü bu hidrojin elektronik ambalaj, akıllı malzeme mühendisliği, mikrobiyal yakıt hücreleri ve sentetik opto-elektronik devreler gibi teknolojilerde kullanılabileceği tespit edildi (Okutan vd., 2015; Coşkun vd., 2017; Öztürk vd., 2018). Sonuç olarak, radikal katılma polimerizasyon yöntemi ile sentezlenen hidrojelere Ag^{+1} , Co^{+2} , Cr^{+3} , Mn^{+2} , Ni^{+2} metal, RB, SR, KrM ve MYO boya iyonu yüklenmiş hidrojin opto

elektronik, biyoelektronik, foto-elektronik, mikro-elektronik devreler, askeri güvenlik teknolojiler, iyontronik davranış gösteren aygıtlar, bilgi depolama sistemleri, biyosensörler, fotonik sensörler, süper kapasitörler, bazı ekolojik sistemler, doku mühendisliği (biyomedikal aygıt), biyo uyumlu sistemler, ilaç dağıtım sistemleri, yapay organ, doku yenileme ve sıvı kristal teknolojilerinde kullanılacak nitelikte malzemeler olduğu anlaşıldı.



KAYNAKLAR

Abd-ElKader, F. H., Osman, W. H. and Hafez, R. S., “DC conduction mechanism and dielectric properties of Poly(methyl methacrylate)/Poly(vinylacetate) blends doped and undoped with malachitegreen”, *Physica B*, 408, 140–150, 2013.

Adachi, K. and Urakawa, O., “Dielectric study of concentration fluctuations in concentrated polymer solutions”, *J. Non-Cryst. Solids*, 307, 667–670, 2002.

Afzal, A. B., Akhtar, M. J., Nadeem, M. and Hassan, M. M., “Dielectric and impedance studies of DBSA doped polyaniline/PVC composites”, *Current Applied Physics*, 10, 601–606, 2010.

Agarwal, P., Orazem, M. E. and Garcia-Rubio, L. H., “Application of Measurement Models to Impedance Spectroscopy”, *J. Electrochem. Soc.* 142, 4159–4168, 1995.

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

Akhtar, N., Rafique, H. M., Atiq, S., Aslam, S., Razaq, A. and Saleem, M., “Dielectric based energy storage capacity of sol-gel synthesized Sr-doped ZrTiO₄ nanocrystallites”, *Ceram. Int.* 44, 6705–6712, 2018.

Almdal, K., Dyre, J., Hvidt, S. and Kramer, O., “What is a gel?”, *Makromol. Chem. Macromol. Symp.* 76, 49–51, 1993.

Alveroglu, E., Gelir, A. and Yılmaz, Y., “Swelling Behavior of Chemically Ion-Doped Hydrogels”, *Macromol. Symp.* 281, 174–180, 2009.

Amulya, K., “Saxena synthetic biodegradable hydrogel (Pleura Seal) sealant for sealing of lung tissue after thoracoscopic resection”, *Journal of Thoracic Cardiovasc Surgery*, 139 (2), 496–497, 2010.

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.

Ansari, S. A., Nisar, A., Fatma, B., Khan, W. and Naqvi, A. H., “Investigation on structural, optical and dielectric properties of Co doped ZnO nanoparticles synthesized by gel-combustion route”, *Materials Science and Engineering B*, 177, 428–435, 2012.

Aouada, F. A., Guilherme, M. R., Campese, G. M., Girotto, E. M., Rubira, A. F. and Muniz, E. C., “Electrochemical and mechanical properties of hydrogels based on conductive poly(3,4-ethylene dioxythiophene)/poly(styrenesulfonate) and PAAm”, *Polymer Testing*, 25, 158–165, 2006.

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.

Armstrong, R. D., Dickinson, T. and Wills, P. M., “The A.C. impedance of powdered and sintered solid ionic conductors”, *J. Electroanal Chem. and Interfacial Electrochem.* 53(3), 389–405, 1974.

Ateş, M. S., “R (+)- α -Metilbenzilamiz ile fonksiyonlandırılmış manyetik nanoparçacıkların sentezi ve karakterizasyonu, Yüksek Lisans Tezi, *Dicle Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, Diyarbakır, s. 33, 2012.

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.

Balaji, G., Rekha, R. and Ramalingam, K. A., “Nonlinear Characterization of Safranin O Dye for Application in Optical Limiting”, *Acta Physica Polonica A*, 199, 359–363, 2011.

Barbero, G., Alexe Ionescu, A. L. and Lelidis, I., “Significance of Small Voltage in Impedance Spectroscopy Measurements on Electrolytic Cells” *J. Appl. Phys.* 98, 05202–5, 2005.

Baskaran, R., Selvasekarapandian, S., Kuwata, S., Kawamura, J. and Hattori, T., “Conductivity and thermal studies of blend polymer electrolytes based on PVAc–PMMA”, *Solid State Ionics*, 177, 2679–2682, 2006.

Bastide, J. and Candau, S. J., “Structure of gels as investigated by means of static scattering techniques. In: Cohen Addad JP (ed) Physical properties of polymeric gels”, *Wiley*, New York, 143–308, 1996.

Bauerle, J. E., “Study of solid electrolyte polarization by a complex admittance method”, *J. Phys. Chem. Solids*, 30, 2657–2670, 1969.

Baziard, Y., Breton, S., Toutain, S. and Gourdenne, A., “Dielectric properties of aluminium powder-epoxy resin composites”, *Eur. Polym. J.* 24, 521–526, 1988.

Bordi, F., Cametti, C., Sennato, S. and Viscomi, D., “Polyion-induced liposomal vesicle aggregation: A radiowave dielectric relaxation study”, *J. Chem. Phys.* 126, 024902–9, 2007.

Borsa, F., Torgeson, D. R., Martin, S. W. and Patel, H. K., “Relaxation and fluctuations in glassy fast-ion conductors: Wide-frequency-range NMR and conductivity measurements”, *Phys. Rev. B. Condens Matter.* 46, 795–800, 1992.

Boucher, E., Guiffard, B., Lebrun, L. and Guyomar, D., “Effects of Zr/Ti ratio on structural, dielectric and piezoelectric properties of Mn- and (Mn, F)-doped lead zirconate titanate ceramics”, *Ceram. Int.* 32, 479–485, 2006.

Boyd, R. H., “Electrical Methods in Methods of Experimental Physics”, Vol. 16, part C, “Polymers-Physical Properties”, edited by R. A. Fava (*Academic Press*, New York, 1980) p. 390.

Böettcher, C. J. F. and Bordewijk, P., “Theory of Electric Polarization”, *Elsevier, Amsterdam*, 2, p. 62, 1978.

Brannon-Peppas, L. and Harland, R.S., “Absorbent polymer technology”, *J. Controlled Release*, 17(3), 297–298, 1991.

Brohede, U., Bramer, T., Edsmanand, K. and Strømme, M., “Electrodynamic investigations of ion transport and structural properties in drug-containing gels: dielectric spectroscopy and transient current measurements on cationic carbopol systems”, *J. Phys. Chem. B*, 109, 15250–15255, 2005.

Buchholz, F. L. and Graham, A. T., “Modern superabsorbent polymer technology”, *New York: Wiley-VCH*, 1–279, 1998.

Burkert, S., Thomas, S., Gohs, U., Dorschner, H. and Arndt, K. F., “Cross-linking of poly(N-vinyl pyrrolidone) films by electron beam irradiation”, *Radiat. Phys. Chem.* 76(8–9), 1324–1328, 2007.

Callister, W. D., “Materials Science and Engineering”, *John Wiley & Sons, Inc.* 2007.

Canli, N. Y., Ocak, H., Yildiz, A., Okutan, M. and Eran, B. B., “The temperature effect on dielectric parameters of bent-core liquid crystal (DHB)”, *Journal of Molecular Liquids*, 238, 370–378, 2017.

Capaccioli, S., Lucchesi, M., Rolla, P. A. and Ruggeri, G., “Dielectric response analysis of a conducting polymer dominated by the hopping charge transport”, *J. Phys, Condens. Matter*, 10, 5595–5617, 1998.

Caspers, F., “RF engineering basic concepts: the Smith chart”, *CERN Yellow Report CERN*, 007, 95–116, 2012.

Castela, A. S. L., Simões, A. M. and Ferreira, M. G. S., “E.I.S. evaluation of attached and free polymer films”, *Progress in Organic Coatings*, 38, 1–7, 2000.

Cava, R. J., Fleming, R. M., Littlewood, P. and Rietman, E. A., Schneemeyer, L. F., Dunn, R. G., “Dielectric response of the charge-density wave in $K_{0.3}MoO_3$ ”, *Physical Review B*, 30, 3228–3238, 1984.

Chan, A. S., Danquah, M. K., Agyei, D., Hartley, P. G. and Zhu, Y., A “Simple Microfluidic Chip Design for Fundamental Bioseparation”, *Journal of Analytical Methods in Chemistry*, 2014, 1–6, 2013.

Chen, P., Yang, J. J., Li, S. S., Wang, Z., Xiao, T. Y., Qian, Y. H. and Yun, S. H., “Hydrothermal synthesis of macroscopic nitrogen-doped graphene hydrogels for ultrafast supercapacitor”, *Nano Energy*, 2, 249–256, 2013.

Chen, Z., Tan, X., Will, A. and Ziel, C., “A dynamic model for ionic polymer–metal composite sensors”, *Smart Mater. Struct.* 16, 1477–1488, 2007.

Chen, H. P., Fergus, J. W. and Jang, B. Z., “The effect of ethylene carbonate and salt concentration on the conductivity of propylene carbonate lithium perchlorate electrolytes”, *Electrochem. Soc.* 147(2), 399–406, 2000.

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.

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”, *J. Chem. Phys.* 9, 341, 1941.

Conde, A., Durán, A. and Damborenea, J. J., “Polymeric sol–gel coatings as protective layers of aluminium alloys”, *Progress in Organic Coatings*, 46, 288–296, 2003.

Conway, B. E., Pell, W. G. and Liu, T. C., “Diagnostic analyses for mechanisms of self-discharge of electrochemical capacitors and batteries”, *J. Power Sources*, 65, 53–59, 1997.

Coşkun, R., Okutan, M., Yalçın, O. and Kösemen, A., “Electric and Magnetic Properties of Hydrogels Doped with Cu Ions”, *Acta Physica Polonica A*. 122, 683–687, 2012.

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.

Cramer, C. and Buscher, M., “Complete conductivity spectra of fast ion conducting silver iodide/silver selenate glasses”, *Solid State Ionics*, 105, 109–120, 1998.

Çınar, M., “Bazı Bazalt Malzemelerin Manyetik Alandaki Elektriksel Özellikleri”, Yüksek Lisans Tezi, *Yıldız Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, s. 5–11, 2015.

Day, D. R., Lewis, T. J., Lee, H. L. and Senturia, S. D., “The role of boundary layer capacitance at blocking electrodes in the interpretation of dielectric cure data in adhesives”, *J. Adhesion*. 18, 73–90, 1985.

Debye, P., “Polar Molecules”, *Dover Publications*, Inc., Reinhold Publishing Corporation, Germany, 1929.

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.

Dispenza, C., Fiandaca, G., Lo Prestia, C., Piazza, S. and Spadaro, G., “Electrical properties of g-crosslinked hydrogels incorporating organic conducting polymers”, *Radiation Physics and Chemistry*, 76, 1371–1375, 2007.

Dispenza, C., Lo Presti, C., Belfiore, C., Spadaro, G. and Piazza, S., “Electrically conductive hydrogel composites made of polyaniline nanoparticles and poly(N-vinyl-2-pyrrolidone)”, *Polymer*, 47, 961–971, 2006.

Dixon, P. K., “Specific-heat spectroscopy and dielectric susceptibility measurements of salol at the glass transition”, *Phys. Rev. B.* 42, 8179–81785, 1990.

Dutta, P. and Biswas, S., “Dielectric relaxation in polyaniline-polyvinyl alcohol composites”, *Mater. Res. Bull.* 37, 193–200, 2002.

Dutta, A., Sinha, T. P. and Shannigrahi, S., “Dielectric relaxation and electronic structure of $\text{Ca}(\text{Fe}_{1/2}\text{Sb}_{1/2})\text{O}_3$ ”, *Phys. Rev. B.* 76, 155113–7, 2007.

Dyre, J. C., “Some remarks on ac conduction in disordered solids”, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 135, 219–226, 1991.

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.

Elliott, S. R., “Frequency-dependent conductivity in ionically and electronically conducting amorphous solids”, *Solid State Ionics*, 27, 70–71, 1994.

- Gemant, A., “The conception of a complex viscosity and its application to dielectrics”, *Trans. Faraday Soc.* 31, 1582–1590, 1935.
- Farea, A. M. M., Kumar, S., Bato, K. M., Yousef, A. and Alimuddin., “Influence of frequency, temperature and composition on electrical properties of polycrystalline $\text{Co}_{0.5}\text{Cd}_x\text{Fe}_{2.5-x}\text{O}_4$ ferrites”, *Physica B*, 403, 684–701, 2008.
- Feldman, Y., Puzenko, A. and Ryabov, Y., “Dielectric relaxation phenomena in complex Materials”, John Wiley & Sons, Inc. Margland 20742-3360, USA, s. 3–18, 2006.
- Ferreira, L., Figueiredo, M. M., Gil, M. H. and Ramos, M. A., “Structural analysis of dextran-based hydrogels obtained chemoenzymatically”, *J. Biomed. Mater. Res. B Appl. Biomater.* 77(1), 55–64, 2006.
- Ferry, J. D., “Viscoelastic Properties of Polymer Solutions”, *J. Res. Natl. Bur. Stand.* 41, 53–62, 1948.
- Ferry, J. D. Viscoelastic properties of polymers, *John Wiley & Sons*, New York, 486–544, 1980.
- Flory, P. J., “Principles of polymer chemistry”, *Cornell University Press*, Ithaca, New York, 1–688, 1953.
- Freire, F. C. M., Becchi, M., Ponti, S., Miraldi, E. and Strigazzi, A., “Impedance Spectroscopy of Conductive Commercial Hydrogels for Electromyography and Electroencephalography”, *Physiol. Meas.* 31, 157–169, 2010.
- Funke, W., Okay, O. and Joos-Muller, B., “Microgels–intramolecularly crosslinked macromolecules with a globular structure”, *Adv. Polym. Sci.* 136, 139–234, 1998.
- Gabai, R., Sallacan, N., Chegel, V., Bourenko, T., Katz, E. and Willner, I., “Characterization of the Swelling of Acrylamidophenylboronic Acid-Acrylamide Hydrogels upon Interaction with Glucose by Faradaic Impedance Spectroscopy,

Chronopotentiometry, Quartz-Crystal Microbalance (QCM), and Surface Plasmon Resonance (SPR) Experiments”, *J. Phys. Chem. B.* 105, 8196–8202, 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.

Grimm, M., Jeney, S. and Franosch, T., “Brownian motion in a Maxwell fluid”, *Soft Matter*, 7, 2076–2084, 2011.

Gulrez, S. K. H., Phillips, G. O. and Al-Assaf, S., “Hydrogels: Methods of Preparation, Characterisation and Applications”, *INTECH Open Access Publisher*, 118–151, 2011.

Hamidi, M., Azadi, A. and Rafiei, P., “Hydrogel nanoparticles in drug delivery”, *Adv. Drug. Deliv. Rev.* 60(15), 1638–1649, 2009.

Harris, A. B., “Field-theoretic approach to biconnectedness in percolating systems”, *Phys. Rev. B*, 28(5), 2614–2629, 1983.

Heaviside, O., “The Electrician”, *Printing and Publishing Co, London*, 212, 1886.

Heikes, R. R. and Johnston, W. R., “Mechanism of conduction in Li-substituted transition metal oxides”, *J. Chem. Phys.* 26, 582–587, 1957.

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

Hoffman, A. S., “Hydrogels for biomedical applications”, *Advanced Drug Delivery Reviews*, 54, 3–12, 2002.

Hench, L. L. and West, J. K., “The sol-gel process”, *Chem. Rev.* 90 (1), 33–72, 1990.

Hennink, W. E. and Nostrum, C. F. V., “Novel crosslinking methods to design hydrogels”, *Advanced Drug Delivery Reviews*, 54, 13–36, 2002.

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

Huang, M., Shen, D., Chow, L. M. and Yang, M., “Correlations of the Impedance Parameters and Conductivity and Permittivity of Liquid and Gel Phases in a Series Piezoelectric Quartz Crystal Sensor”, *Sens. Actuators B*, 72, 21–27, 2001.

Ingram, M. D., “Ionic conductivity and glass structure”, *Journal Philosophical Magazine B*, 60, 729–740, 1989.

Jain, H. and Hsieh, C. H., “‘Window’ effect in the analysis of frequency dependence of ionic conductivity”, *J. Non-Cryst. Solids*, 172–174, 1408–1412, 1994.

Jarry, C., Leroux, J. C., Haeck, J. and Chaput, C., “Irradiating or autoclaving chitosan/polyol solutions: Effect on thermogelling chitosan-beta-glycerophosphate systems”, *Chemical Pharmaceutical Bulletin*, 50, 1335–1340, 2002.

Jeong, B., Kim, S. W. and Bae, Y. H., “Thermosensitive sol–gel reversible hydrogels”, *Advanced Drug Delivery Reviews*, 54, 37–51, 2002.

Jia, W., Tchoudakov, R., Segal, E., Joseph, R., Narkis, M. and Siegmann, A.,

“Electrically conductive composites based on epoxy resin with polyaniline-DBSA fillers”, *Synth. Met.* 132, 269–278, 2003.

Jonscher, A. K., “Universal dielectric response: a review of data and their new interpretation”, *Physics of Thin Films: Advances in Research and Development*, 11, 205–317, 1980.

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

Kaihara, S., Matsumura, S. and Fisher, J. P., “Synthesis and characterization of cyclic acetal based degradable hydrogels”, *Eur. J. Pharm. Biopharm.* 68(1), 67–73, 2008.

Kaiser, M., “Electrical conductivity and complex electric modulus of titanium doped

nickel–zincferrites”, *Physica B*, 407, 606–613, 2012.

Kamath, A. and Devendrappa, H., “Concentration-dependent ionic conductivity and dielectric relaxation of methyl blue-dyed polyethylene oxide films”, *Polym. Bull.* 72, 2705–2724, 2015.

Kar, T. and Choudhary, R. N. P., “Structural, dielectric and electrical conducting properties of CsB'B"O₆ (B'=Nb,Ta; B"=W, Mo) ceramics”, *Mater. Sci. Eng. B.* 90, 224–233, 2002.

Karakoç, Z., Ketani, M. A. and Ketani, Ş., “Mikroskopların Çalışma Mekanizması ve Çeşitleri”, *Dicle Üniversitesi Vet. Fak. Derg.* 1(1), 1–6, 2016.

Karmakar, A. and Ghosh, A., “A comparison of ion transport in different polyethylene oxide-lithium salt composite electrolytes”, *J. Appl. Phys.* 107, 104113, 2010.

Karmakar, A. and Ghosh, A., “Dielectric permittivity and electric modulus of polyethylene oxide (PEO)eLiClO₄ composite electrolytes”, *Current Applied Physics*, 12, 539–543, 2012.

Kashyap, N., Kumar, N. and Kumar, M., “Hydrogels for pharmaceutical and biomedical applications”, *Crit. Rev. Ther. Drug. Carr. Syst.* 22, 107–149, 2005.

Kashyap, R., Thakur, O. P. and Tandon, R. P., “Study of structural, dielectric and electrical conduction behavior of Gd substituted CaCu₃Ti₄O₁₂ ceramics”, *Ceramics International*, 38, 3029–3037, 2012.

Kaya, A. and Fang, H.Y., “Identification of Contaminated Soils by Dielectric Constant and Electrical Conductivity”, *Journal of Environmental Engineering*, 123, 169–177, 1997.

Ke, S., Huang, H., Yu, S. and Zhou, L., “Crossover from a nearly constant loss to a superlinear power-law behavior in Mn-doped Bi(Mg_{1/2}Ti_{1/2})O₃–PbTiO₃ Ferroelectrics”, *J. Appl. Phys.* 107, 084112–8, 2010.

Keller, G. V. and Licastao, P. H., “Dielectric Constant and Electrical Resistivity of Natural-State Cores”, *United States Government Printing Office Washington*, 3, 263–264, 1959.

Kennelly, A. E., “Impedance”, *IEEE*, 1, 172–232, 1893.

Kılıç, M., Karabul, Y., Özdemir, Z. G., Erdönmez, S., Bulgurcuoğlu, A. E., Yeşilkaya, S. S., Okutan, M. and İçelli, O., “Effect of borax additive on the dielectric response of polypyrrole”, *Bull. Mater. Sci.* 41:52, 1–9, 2018.

Kızılay, M. Y. and Okay, O., “Effect of initial monomer concentration on spatial inhomogeneity in poly(acrylamide) gels”, *Macromolecules*, 36, 6856–6862, 2003a.

Kızılay, M. Y. and Okay, O., “Effect of hydrolysis on spatial inhomogeneity in poly(acrylamide) gels of various crosslink densities”, *Polymer*, 44, 5239–5250, 2003b.

Konsta, A. A., Daoukaki, D., Pissis, P. and Vartzeli, K., “Hydration and conductivity studies of polymer–water interactions in polyacrylamide hydrogels”, *Solid State Ionics*, 125, 235–241, 1999.

Krsko, P., McCann, T., Thach, T. T., Laabs, T., Geller, H. M. and Libera, M., “Length-scale mediated adhesion and directed growth of neural cells by surface-patterned poly(ethylene glycol) hydrogels”, *Biomaterials*, 30(5), 721–729, 2009.

Kumar, D. and Sharma, R. C., “Advances in conductive polymers”, *Eur. Polym. J.* 34(8), 1053–1060, 1998.

Kumar, V. P., Reddy, Y. S., Kistaiah, P., Prasad, G. and Reddy, C. V., “Thermal and electrical properties of rare-earth co-doped ceria ceramics”, *Materials Chemistry and Physics*, 112, 711–718, 2008.

Kumar, M. P., Sankarappa, T., Kumar, B. V. and Nagaraja, N., “Dielectric relaxation studies in transition metal ions doped tellurite glasses”, *Solid State Sciences*, 11, 214–218, 2009.

Küçükçelebi, H., Durmuş, H., Deryal, A., Taşer, M. and Karakaya, N., “Activation energy of polarization due to electrical conductivity and dipole rotation in purified ca-bentonite”, *Applied Clay Science*, 62–63, 70–79, 2012.

León, C., Rivera, A., Várez, A., Sanz, J., Santamaria, J. and Nagi, K. L., “Origin of constant loss in ionic conductors”, *Phys. Rev. Lett.* 86, 1279–1282, 2001.

León, C., Lucia, M. L. and Santamaria, J., “Correlated ion hopping in single-crystal yttria-stabilized zirconia”, *Phys. Rev. B.* 55, 882–887, 1997.

Li, Y., Huang, G., Zhang, X., Li, B., Chen, Y., Lu, T., Lu, T. J. and Xu, F., “Magnetic hydrogels and their potential biomedical applications”, *Adv. Funct. Mater.* 23(6), 660–672, 2013.

Lidorenko, N. S., Zil’Bervarg, V. E. and Nagaev, E. L., “Dielectric constants of solid electrolytes and transition to superionic state”, *Sov. Phys. JETP*, 51(1), 89–93, 1980.

Liew, C. W., Ramesh, S. and Durairaj, R., “Impact of low viscosity ionic liquid on PMMA–PVC–LiTFSI polymer electrolytes based on AC -impedance, dielectric behavior, and HATR–FTIR characteristics”, *J. Mater. Res.* 27, 2996 – 3004, 2012.

Lim, H., Lee, Y., Han, S., Kim, Y., Cho, J. and Kim, K., “Reduction in surface resistivity of polymers by plasma source ion implantation”, *Surface and Coatings Technology*, 160, 158–164, 2002.

Lindemann, B., Schroder, U. P. and Oppermann, W., “Influence of crosslinker reactivity on the formation of inhomogeneities in hydrogels”, *Macromolecules*, 30, 4073–4077, 1997.

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”, *J. Appl. Polym. Sci.* 104(2), 842–850, 2007.

Londono, M. E., Jaramillo, J. M., Sabater, R. and Velez, J. M., “Dielectric properties of poly(vinyl alcohol) hydrogels prepared by freezing/thawing technique”, *Revista EIA*, 18, 105–114, 2012.

Lunkenheimer, P., Götzfried, T., Fichtl, R., Weber, S., Rudolf, T., Loidl, A., Reller, A. and Ebbinghaus, S. G., “Apparent giant dielectric constants, dielectric relaxation, and ac-conductivity of hexagonal perovskites $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{2.7}\text{BO}_{7.33}$ (B=Ru, Ir)”, *J. Solid State Chem.* 179, 3965–3973, 2006.

MacCallum, J. R. and Vincent, C. A., “Polymer Electrolyte Reviews”, *Elsevier Applied Science Publishers*, London, 20, 299–300, 1988.

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

Macedo, P. B., Moynihan, C. T. and Bose, R., “The Role of Ionic Diffusion in Polarization in Vitreous Ionic Conductors”, *Phys. Chem. Glasses*, 13, 171–179, 1972.

Mahmoodi, M., Arjamand, M., Sundaraj, U. and Park, S., “Comparative study of electromagnetic interference shielding properties of injection molded versus compression molded multi-walled carbon nanotube/polystyrene”, *Carbon*, 50, 1455–1464, 2012.

Maji, P. and Choudhary, R. B., “Facile synthesis, dielectric properties and electrocatalytic activities of PMMA-NiFe₂O₄ nanocomposite”, *Materials Chemistry and Physics*, 193, 391–400, 2017.

Maji, P., Pande, P. P. and Choudhary, R. B., “Effect of Zn(NO₃)₂ filler on the dielectric permittivity and electrical modulus of PMMA”, *Bull. Mater. Sci.* 38, 417–424, 2015.

Malisuwan, S. and Sivaraks, J., “Frequency-Dependent Smith-Chart Model as Applied to Integrated Circuit Package Antenna Design”, *International Journal of Computer and Communication Engineering*, 2, 625–629, 2013.

Manohar, R., Manohar, S. and Chandel, V. S., “Dielectric behaviour of pure and dye doped nematic liquid crystal BKS/B07”, *Mater. Sci. Appl.* 2, 839–847, 2011.

Mansour, S. F., “Frequency and Composition Dependence on the Dielectric Properties for Mg-Zn Ferrite”, *Egypt J. Solids*, 28, 263–273, 2005.

Maolin, Z., Jun, L., Min, Y. and Hongfei, H., “The swelling behaviour of radiation prepared semi-interpenetrating polymer networks composed of polyNIPAAm and hydrophilic polymers”, *Radiat. Phys. Chem.* 58, 397–400, 2000.

Masci, G. and Cametti, C., “Dielectric properties of thermo-reversible hydrogels: the case of a dextran copolymer grafted with poly (N-isopropylacrylamide)”, *J. Phys. Chem. B*, 113, 11421–11428, 2009.

Minami, T., “Fast ion conducting glasses”, *J. Non. Cryst. Solids*, 73, 273–284, 1985.

Mishra, R. and Rao, K. J., “Electrical conductivity studies of poly(ethyleneoxide)-poly(vinylalcohol) blends”, *Solid State Ionics*, 106, 113–127, 1998.

Mitsumata, T., Gong, J. P., Ikeda, K. and Osada, Y., “Low-frequency dielectric relaxation of polyelectrolyte gels”, *J. Phys. Chem. B*. 102, 5246–5251, 1998.

Murthy, V. R. K., Rao, T. A. P. and Sobhanadri, J., “Dielectric properties of some dyes in the radio-frequency region”, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 10, 2405–2409, 1977.

Naghash, H. J. and Okay, O., “Formation and structure of polyacrylamide gels”, *J. Appl. Polym. Sci.* 60, 971–979, 1996.

Nam, S. C., Yong, M. L., Baik, H. L., Je, L. and Jung, P., “Nanocomposite single ion conductor based on organic–inorganic hybrid”, *Solid State Ionics*, 167, 293–299, 2004.

Németh, E., Albrecht, V., Schubert, G. and Simon, F., “Polymer tribo-electric charging: dependence on thermodynamic surface properties and relative humidity”, *Journal of Electrostatics*, 58, 3–16, 2003.

Nho, Y. C., Park, S. E., Kim, H. I. and Hwang, T. S., “RETRACTED: Oral delivery of insulin using pH sensitive hydrogels based on polyvinyl alcohol grafted with acrylic acid/methacrylic acid by radiation”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 236, 283–288, 2005.

Ogihara, W., Sun, J., Forsyth, M., MacFarlane, D. R., Yoshizawa, M. and Ohno, H., “Ionic conductivity of polymer gels deriving from alkali metal ionic liquids and negatively charged polyelectrolytes”, *Electrochimica Acta*, 49, 1797–1801, 2004.

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

Orakdogan, N. and Okay, O., “Correlation between crosslinking efficiency and spatial inhomogeneity in poly(acrylamide) hydrogels”, *Polym. Bull.* 57, 631–641, 2006.

Orazem, M. E., Agarwal, P., Jansen, A. N., Wojcik, R. T. and Garcia-Rubio, L. H., “Development of physico-chemical models for electrochemical impedance spectroscopy”, *Electrochimica Acta*, 38, 1903–1911, 1993.

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.

Padmasree, K. P., Kanchan, D. K. and Kulkarni, A. R., “Impedance and Modulus studies of the solid electrolyte system $20\text{CdI}_2-80[\text{xAg}_2\text{O}-\text{y}(0.7\text{V}_2\text{O}_5-0.3\text{B}_2\text{O}_3)]$, where $1 \leq \text{x/y} \leq 3$ ”, *Solid State Ionics*, 177, 475–482, 2006.

Park, B. H. and Choi, J. H., “Improvement in the capacitance of a carbon electrode prepared using water-soluble polymer binder for a capacitive deionization application”, *Electrochimica Acta*. 55, 2888–2893, 2010.

Pech, D., Brunet, M., Taberna, P. L., Simon, P., Fabre, N., Mesnilgrete, F., Conédéra, V. and Durou, H., “Elaboration of a microstructured inkjet-printed carbon electrochemical capacitor”, *Journal of Power Sources*, 195, 1266–1269, 2010.

Pieta, P., Obraztsov, I., D’Souza, F. and Kutnera, W., “Composites of Conducting Polymers and Various Carbon Nanostructures for Electrochemical Supercapacitors”, *ECS Journal of Solid State Science and Technology*, 2 (10), 3120–3134, 2013.

Pissis, P. and Kyritsis, A., “Electrical conductivity studies in hydrogels”, *Solid State Ionics*, 97, 105–113, 1997.

Pissis, P., Kyritsis, A. and Shilov, V. V., “Molecular mobility and protonic conductivity in polymers: hydrogels and ionomers”, *Solid State Ionics*, 125, 203–212, 1999.

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.

Pradhan, D. K., Samantaray, B. K., Choudhary, R. N. P. and Thakur, A. K., “Complex Impedance Studies on a Layered Perovskite Ceramic Oxide– NaNdTiO_4 ”, *Mater. Sci. Eng., B*, 116, 7–13, 2005.

Pradhan, D. K., Choudhary, R. N. P. and Samantaray, B. K., “Studies of Dielectric Relaxation and AC conductivity Behavior of Plasticized Polymer Nanocomposite Electrolytes”, *Int. J. Electrochem. Sci.* 3, 597–608, 2008.

Provenzano, V., Boesch, L. P., Volterra, V., Moynihan, C. T. and Macedo, P. B., “Electrical Relaxation in $\text{Na}_2\text{O}\cdot 3\text{SiO}_2$ Glass”, *J. Am. Ceram. Soc.* 55, 492–496, 1972.

Pröbstle, H., Schmitt, C. and Fricke, J., “Button cell super capacitors with monolithic carbon aerogels”, *J. Power Sources*, 105, 189–194, 2002.

Raghasudha, M., Ravinder, D. and Veerasomaiah, P., “Influence of Cr³⁺ Ion on the Dielectric Properties of Nano Crystalline Mg-Ferrites Synthesized by Citrate-Gel Method”, *Materials Sciences and Applications*, 4, 432–438, 2013.

Rajendran, S., Sivakumar, M. and Subadevi, R., “Investigations on the effect of the various plasticizers in PVA–PMMA solid polymer blend electrolytes”, *Mater. Lett.* 58, 641–649, 2004.

Raju, K. M. and Raju, M. P., “Synthesis of novel superabsorbing copolymers for agricultural and horticultural applications”, *Polym. Int.* 50, 946–951, 2001.

Ram, M. and Chakrabarti, S., “Dielectric and modulus studies on LiFe_{1/2}Co_{1/2}VO₄”, *Journal of Alloys and Compounds*, 462, 214–219, 2008.

Ramesh, S. and Chai, M. F., “Conductivity, dielectric behavior and FTIR studies of high molecular weight poly(vinyl chloride)–lithium triflate polymer electrolytes”, *Mater. Sci. Eng. B.* 139, 240–245, 2007.

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.

Ramesh, S., Liew, C. W. and Arof, A. K., “Ion conducting cornstarch biopolymer electrolytes doped with ionic liquid 1-butyl-3-methylimidazolium hexafluorophosphate”, *J. Non-Cryst. Solids*, 357, 3654–3660, 2011.

Ranjan, R., Kumar, R., Kumar, N., Behera, B. and Choudhary, R. N. P., “Impedance and electric modulus analysis of Sm-modified Pb(Zr_{0.55}Ti_{0.45})_{1-x/4}O₃ ceramics”, *Journal of Alloys and Compounds*, 509, 6388–6394, 2011.

Rao, K. S., Prasad, D. M., Krishna, P. M., Tilak, B. and Varadarajulu, K. C., “Impedance and modulus spectroscopy studies on Ba_{0.1}Sr_{0.81}La_{0.06}Bi₂Nb₂O₉ ceramic”, *Materials Science and Engineering B*, 133, 141–150, 2006.

Ratner, M. A. and Shriver, D. F., “Ion Transport in Solvent-Free Polymers”, *Chem. Rev.* 88, 109–124, 1988.

Ren, Y. and Lam, D. C. C., “Properties and Microstructures of Low-Temperature-Processable Ultralow-Dielectric Porous Polyimide Films”, *Journal of Electronic Materials*, 37, 955, 2008,

Riaz, S., Majid, F. and Naseem, S., “Structural, Dielectric and Magnetic Properties of Sol-Gel Synthesized $\text{Bi}_{1-x}\text{La}_x\text{FeO}_3$ Nanoparticles ($x=0.3$)”, *Proceedings of the 16th International Conference on Nanotechnology*, Sendai, Japan, August 22–25, 2016.

Richert, R. and Wagner, H., “Polarization Response of a Dielectric Continuum to a Motion of Charge”, *J. Phys. Chem.* 99 (27), 10948–10951, 1995.

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

Rodríguez, R. F. and Salinas-Rodríguez, E., “Brownian motion and correlation functions in a viscoelastic fluid”, *J. Phys. A Math. Gen.* 21, 2121–2130, 1988.

Rosiak, J. M. and Yoshii, F., “Hydrogels and their medical applications”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 151, 56–64, 1999.

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.

Rouillard, A. D., Tsui, Y., Polacheck, W. J. and Lee, J. Y., “Control of the Electromechanical Properties of Alginate Hydrogels via Ionic and Covalent Cross-Linking and Microparticle Doping”, *Biomacromolecules*, 11, 2184–2189, 2010.

Roy, D., Bagchi, B., Das, S. and Nandy, P., “Electrical and dielectric properties of sol-gel derived mullite doped with transition metals”, *Materials Chemistry and Physics*, 138, 375–383, 2013.

Saha, S., Nandy, A., Pradhan, S. K. and Meikap, A. K., “Electrical transport and dielectric modulus formalism of CuO doped ZrO₂ partially stabilized solid solution”, *Materials Research Bulletin*, 88, 272–280, 2017.

Sartape, A. S., Mandhare, A. M., Jadhav, V. V., Raut, P. D., Anuse, M. A. and Kolekar, S. S., “Removal of malachite green dye from aqueous solution with adsorption technique using *Limonia acidissima* (wood apple) shell as low cost adsorbent”, *Arabian Journal of Chemistry*, 10, 3229–3238, 2017.

Sasaki, S., Koga, S. and Maeda, H., “Dielectric Properties of Collapsing Hydrogels”, *Macromolecules*, 32, 4619–4624, 1999.

Scaife, B. K. P., “Principles of Dielectrics”, *Clarendon Pres Oxford U.K*, 45, p. 448, 1989.

Schuetz, Y. B., Gurny, R. and Jordan, O., “A novel thermoresponsive hydrogel based on chitosan”, *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics*, 68, 19–25, 2008.

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, 2007a.

Sengwa, R. J. and Sankhla, S., “Solvent effects on the dielectric dispersion of poly(vinyl pyrrolidone)-poly(ethylene glycol) blends”, *Colloid. Polym. Sci.* 285, 1237–1246, 2007b.

Sengwa, R. J. and Choudhary, S., “Investigation of Correlation between Dielectric Parameters and Nanostructures in Aqueous Solution Grown Poly(vinyl alcohol)-Montmorillonite Clay Nanocomposites by Dielectric Relaxation Spectroscopy”, *eXPRESS Polym. Lett.* 4, 559–569, 2010.

Sengwa, R. J., Kaur, K. and Chaudhary, R., “Dielectric properties of low molecular weight poly(ethylene glycol)s”, *Polym. Int.* 49, 599–608, 2000.

Shantha, K. L. and Harding, D. R. K., “Synthesis and evaluation of sucrose-containing polymeric hydrogels for oral drug delivery”, *J. Appl. Polym. Sci.* 84, 2597–2604, 2002.

Shibayama, M., “Spatial inhomogeneity and dynamic fluctuations of polymer gels”, *Macromol. Chem. Phys.* 199, 1–30, 1998.

Shin, J., Braun, P. V. and Lee, W., “Fast response photonic crystal pH sensor based on templated photopolymerized hydrogel inverse opal”, *Sens. Actuat. B: Chem.* 150(1), 183–190, 2010.

Shinyashiki, N. and Yagihara, S., “Comparison of Dielectric Relaxations of Water Mixtures of Poly(vinylpyrrolidone) and 1-Vinyl-2-pyrrolidinone”, *J. Phys. Chem. B*, 103(21), 4481–4484, 1999.

Sikareepaisan, P., Ruktanonchai, U. and Supaphol, P., “Preparation and characterization of asiaticoside-loaded alginate films and their potential for use as effectual wound dressings”, *Carbohydr. Polym.* 83(4), 1457–1469, 2011.

Simon, P. and Gogotsi, Y., “Charge storage mechanism in nanoporous carbons and its consequence for electrical double layer capacitors”, *Philos. T. R. Soc. A.* 368, 3457–3467, 2010.

Singh, N. K., Panigrahi, A. and Choudhary, R. N. P., “Structural and dielectric properties of $\text{Ba}_5\text{EuTi}_{3-x}\text{Zr}_x\text{Nb}_7\text{O}_{30}$ relaxor ferroelectrics”, *Materials Letters*, 50, 1–5, 2001.

Singh, A., Sharma, P. K., Garg, V. K. and Garg, G., “Hydrogels: a review”, *International Journal of Pharmaceutical Sciences Review and Research*, 4(2), 97–105, 2010.

Singh, D. N., Sinha, T. P. and Mahato, D. K., “Electric modulus, scaling and ac conductivity of $\text{La}_2\text{CuMnO}_6$ double perovskite”, *Journal of Alloys and Compounds*, 729, 1226–1233, 2017.

Smaoui, H., Mir, L. E. L., Guermazi, H., Agnel, S. and Toureille, A., “Study of dielectric relaxations in zinc oxide-epoxy resin nanocomposites”, *J. Alloys Compd.* 477, 316–321, 2009.

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

Smith, P. H., “Transmission line calculator”, *Electronics*, 12, 29–31, 1939.

Souza Jr, F. G., Soares, B. G. and Pinto, J. C., “Electrical surface resistivity of conductive polymers—A non-Gaussian approach for determination of confidence intervals”, *European Polymer Journal*, 44, 3908–3914, 2008.

Sözeri, H., Gelir, A., Alveroglu, E., Tulun, M. and Yılmaz, Y., “Magnetic and fluorescence properties of cobalt implanted hydrogels”, *Journal of Physics: Conference Series*, 153, 012067, 2009.

Sözeri, H., Alveroğlu, E., Kurtan U., Şenel, M. and Baykal, A., “Magnetic hydrogel with high coercivity”, *Materials Research Bulletin*, 48, 2751–2757, 2013.

Sözeri, H., Alveroğlu, E., Kurtan, U., Şenel, M. and Baykal, A., “Synthesis, Electrical and Magnetic Characterization of Polyacrylamide Hydrogels Including NiFe_2O_4 Nanoparticles”, *J Supercond Nov Magn.* 26, 213–218, 2013.

Sredić, S., Davidović, M., Spasjevic-de Biré, A., Mioč, U. B., Todorović, M., Šegan, D., Jovanović, D., Polizos, G. and Pissis, P., “Inorganic-inorganic nanocomposite: Surface and conductive properties”, *J. Phys. Chem. Solids*, 69, 1883–1890, 2008.

Stamatialis, D. F., Papenburg, B. J., Gironés, M., Saiful, S., Bettahalli, S. N. M., Schmitmeier, S. and Wessling, M., “Medical applications of membranes: drug delivery, artificial organs and tissue engineering”, *J. Membr. Sci.* 308(1–2), 1–34, 2008.

Tabata, Y., “Biomaterial technology for tissue engineering applications”, *J. R. Soc. Interface*, 6, 311–324, 2009.

Taberna, P. L., Simon, P. and Fauvarque, J. F., “Electrochemical Characteristics and Impedance Spectroscopy Studies of Carbon-Carbon Supercapacitors”, *J. Electrochem. Soc.* 150, 292–300, 2003.

Takeda, H. and Taniguchi, Y., “Production process for highly water absorbable polymer”, *American Colloid Company, US 4525527 A Patent*, 4, 525–527, 1985.

Tareev, B., “Physics of Dielectric Materials”, *Mir Publishers*, Moscow, 1–270, 1975.

Taylor, C., Pearson, J. P., Draget, K. I., Dettmar, P. W. and Smidsrød, O., “Rheological characterisation of mixed gels of mucin and alginate”, *Carbohydrate Polymers*, 59, 189–195, 2005.

Tiwari, A. K., “Smith Chart and its Applications”, *International Journal of Electronic and Electrical Engineering*, 4, 75–94, 2011.

Tiwari, T., Srivastava, N. and Srivastava, P. C., “Ion Dynamics Study of Potato Starch + Sodium Salts Electrolyte System”, *International Journal of Electrochemistry*, 670914, 1–8, 2013.

Tiwari J. P. and Shahi, K., “Ion dynamics in mechanochemically synthesized amorphous fast ionic conductor $\text{Ag}_2\text{S}-\text{Sb}_2\text{S}_3$ ”, *Solid State Ionics*, 176 1271–1280, 2005.

Tomozawa, M., Cordaro, J. and Singh, M., “Low frequency dielectric relaxation from complex impedance and complex electric modulus”, *Journal of Materials Science*, 14, 1945–1951, 1979.

Townsend, A. A. R., “The Smith Chart and its applications”, *Transmission lines*, p. 2, 1995.

Tummala, G. K., Felde, N., Gustafsson, S., Bubholz, A., Schröder, S. and Mihranyan, A., “Light scattering in poly(vinyl alcohol) hydrogels reinforced with nanocellulose for ophthalmic use”, *Optical Materials Express*, 7, 2824–2837, 2017.

Tsangaris, G. M., Psarras, G. C. and Kontopoulos, A. J., “Dielectric permittivity and loss of an aluminum-filled epoxy resin”, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 131–133, 1164–1168, 1991.

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.

Venkataraju, C., Sathiskumar, G. and Sivakumar, K., “Effect of nickel on the electrical properties of nanostructured MnZn ferrite”, *J. Alloys Compd.* 498, 203–206, 2010.

Venkateswarlu, M., Reddy, K. N., Rambabu, B. and Satyanarayana, N., “AC conductivity and dielectric studies of silver-based fast ion conducting glass system”, *Solid State Ionics*, 127, 177–184, 2000.

Venkateswarlu, M. and Satyanarayana, N., “AC conductivity studies of silver based fast ion conducting glassy materials for solid state batteries”, *Mater. Sci. Eng. B*, 54, 189–195, 1998.

Wagner, H. and Richert, R., “Thermally stimulated modulus relaxation in polymers: Method and interpretation,” *Polymer*, 38, 5801–5806, 1997.

Walter, G. W., “The application of impedance methods to study the effects of water uptake and chloride ion concentration on the degradation of paint films—II. Free films and attached/free film comparisons”, *Corros. Sci.* 32, 1085–1103, 1991.

Wan, M., Li, M., Li, J. and Liu, Z., “Transparent and conducting coatings of polyaniline composites”, *Thin Solid Films*, 259, 188–193, 1995.

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

Wang, M. and Dong, S., “Enhanced electrochemical properties of nanocomposite polymer electrolyte based on copolymer with exfoliated clays”, *Journal of Power Sources*, 170, 425–432, 2007.

Wang, L. M. and Richert, R., “Debye type dielectric relaxation and the glass transition of alcohols”, *J. Phys. Chem. B.* 109 (22), 11091–11094, 2005.

Webster, M., “Calculated vs. Experimental Values for Volume and Surface Resistivity in Various Polymer Compounds”, *The Journal of Undergraduate Research at the University of Tennessee*, 5, 189–198, 2014.

Weiler, R. A. and Chaussidon, J., “Surface conductivity and dielectrical properties of montmorillonite gels”, *Clays and Clay Minerals*, 16, 147–155. 1968.

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

Winter, J. O., Cogan, S. F. and Rizzo, J. F., “Neurotrophin-Eluting Hydrogel Coatings for Neural Stimulating Electrodes”, *J. Biomed Mater Res B Appl Biomater*, 81(2), 551–563, 2007.

Wu, J., Zhou, D., Too, C. O. and Wallace, G. G., “Conducting polymer coated lycra”, *Synthetic Metals*, 155, 698–701, 2005.

Xu, P., Gui, H., Hu, Y., Bahader, A. and Ding, Y., “Dielectric Properties of Polypropylene-Based Nanocomposites with Ionic Liquid-Functionalized Multiwalled Carbon Nanotubes”, *Journal of Electronic Materials*, 43, 2754–2758, 2014.

Yalçın, O., Coşkun, R., Okutan, M. and Öztürk, M., “Comparison Effects and dielectric Properties of Different Dose Methylene Blue-Doped Hydrogels”, *J. Phys. Chem. B.* 117, 8931–8938, 2013.

Yang, L., Chu, J. S. and Fix, J. A., “Colon-specific drug delivery: new approaches and in vitro/in vivo evaluation”, *Int. J. Pharm.* 235, 1–15, 2002.

Yazıcı, I., Okay O., “Spatial inhomogeneity in poly(acrylic acid) hydrogels”, *Polymer*, 46, 2595–2602, 2005.

Yu, S., Hing, P. and Hu, X., “Dielectric properties of polystyrene-aluminum-nitride composites”, *J. Appl. Phys.* 88, 398–405, 2000.

Yuan, W. X., “Impedance and electric modulus approaches to investigate four origins of giant dielectric constant in $\text{CaCu}_3\text{Ti}_4\text{O}_{12}$ ceramics”, *Solid State Sciences*, 14, 330–334, 2012.

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

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

Zhang, L., Li, K., Xiao, W., Zheng, L., Xiao, Y., Fan, H. and Zhang, X., “Preparation of collagen–chondroitin sulfate–hyaluronic acid hybrid hydrogel scaffolds and cell compatibility in vitro”, *Carbohydr. Polym.* 84(1), 118–125, 2011.

Zhang, S., Dou, S., Colby, R. H. and Runt, J., “Glass transition and ionic conduction in plasticized and doped ionomers”, *J. Non-Cryst Solids*, 351, 2825–2860, 2005.

Zhao, W., Jin, X., Cong, Y., Liu, Y. and Fu, J., “Degradable natural polymer hydrogels for articular cartilage tissue engineering”, *J. Chem. Technol. Biotechnol.* 88(3), 327–339, 2013.

Zohuriaan-Mehr, M. J. and Kabiri, K., “Superabsorbent Polymer Materials: A Review”, *Iranian Polymer Journal*, 17 (6), 451–477, 2008.

Zwanzig, R. and Bixon, M., “Hydrodynamic theory of the velocity correlation function”, *Phys. Rev. A*, 2, 2005–2012, 1970.



ÖZ GEÇMİŞ

Muhittin ÖZTÜRK 01.01.1984 tarihinde Kayseri’de doğdu. İlköğretim ve lise eğitimini doğduğu ilde tamamladı. 2005 yılında girdiği Erciyes Üniversitesi Yozgat Fen Edebiyat Fakültesi Fizik bölümünden 2009 yılında mezun oldu. 2009 yılında Bozok Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsünde Katıhal Fiziği Anabilim dalında yüksek lisans eğitimine başladı. “Grafen Transistörlerin Elektriksel Parametrelerinin Belirlenmesi” konusunda yüksek lisans eğitimi 2011 yılında tamamladı. 2012 yılında Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi Fizik Anabilim Dalı’nda doktora öğrenimine başladı. 2013 yılında Niğde Çalışma ve İş Kurumu İl Müdürlüğü’nde İş ve Meslek Danışmanı olarak göreve başladı. Metal ve boya iyonları katkılı hidrojenlerin dielektrik özelliklerinin araştırılması üzerine çalışmalar yapmaktadır.

TEZ ÇALIŞMASINDAN ÜRETİLEN ESERLER

Bu tez çalışmasından, 3 (üç) adet uluslararası makale ve 2 adet bildiri üretilmiştir. Bu üretilen çalışma aşağıda sunulmuştur.

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

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

Öztürk, M., Coşkun, R., Okutan, M., 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., Coşkun, R., Okutan, M., Yalçın, O., “Kristal-Violet İyonik Boya Yüklü Hidrojellerin Dielektrik ve İletkenlik Özellikleri”, *22.Yoğun Madde Fiziği, Ankara Toplantısı*, Ankara Üniversitesi, 16 Aralık 2016, Ankara, Türkiye, Sayfa: 66.

Coşkun, R., Okutan, M., Öztürk, M., Yalçın, O., “Dielectric Properties of the Malachite Green Oxalate Doped Living Hydrogels”, *Turkish Physical Society 33rd International Physics Congress*, 6-10 September 2017, Bodrum, Turkey, Page: 600.