

**T.C.
AKDENİZ ÜNİVERSİTESİ**



**KOLOİT PARÇACIKLARIN ETKİLEŞİM POTANSİYEL ENERJİLERİNİN
VIDEO MİKROSKOP YÖNTEMİYLE ÖLÇÜLMESİ**

Naim Tuna TOKSÖZ

FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**FİZİK
ANABİLİM DALI**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

ŞUBAT 2021

ANTALYA

**T.C.
AKDENİZ ÜNİVERSİTESİ**



**KOLOİT PARÇACIKLARIN ETKİLEŞİM POTANSİYEL ENERJİLERİNİN
VIDEO MİKROSKOP YÖNTEMİYLE ÖLÇÜLMESİ**

Naim Tuna TOKSÖZ

FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**FİZİK
ANABİLİM DALI**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

ŞUBAT 2021

ANTALYA

T.C.
AKDENİZ ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

KOLOİT PARÇACIKLARIN ETKİLEŞİM POTANSİYEL ENERJİLERİNİN
VIDEO MİKROSKOP YÖNTEMİYLE ÖLÇÜLMESİ

Naim Tuna TOKSÖZ

FİZİK
ANABİLİM DALI

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Bu tez, Türkiye Bilimsel ve Teknik Araştırma Kurumu (TÜBİTAK) tarafından,
116M396 projesiyle desteklenmiştir.

ŞUBAT 2021

T.C.
AKDENİZ ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

KOLOİT PARÇACIKLARIN ETKİLEŞİM POTANSİYEL ENERJİLERİNİN
VIDEO MİKROSKOP YÖNTEMİYLE ÖLÇÜLMESİ

Naim Tuna TOKSÖZ

FİZİK
ANABİLİM DALI

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Bu tez 18/02/2021 tarihinde jüri tarafından Oybirliği ile kabul edilmiştir.

Dr. Öğr. Üyesi Deniz KAYA (Danışman)

Prof. Dr. Rıza ERDEM

Dr. Öğr. Üyesi M.İlker BEYAZ

ÖZET

KOLOİT PARÇACIKLARIN ETKİLEŞİM POTANSİYEL ENERJİLERİNİN VIDEO MİKROSKOP YÖNTEMİYLE ÖLÇÜLMESİ

Naim Tuna TOKSÖZ

Yüksek Lisans Tezi, Fizik Anabilim Dalı

Danışman: Dr. Öğr. Üyesi Deniz KAYA

Şubat 2021;45 sayfa

Koloitler, teknoloji ve endüstride birçok uygulama alanına sahip olmakla kalmayıp, aynı zamanda bilimsel açıdan da önemli bir role sahiptirler. Örneğin, ışık mikroskobu ile mikrometre büyüklükteki küresel koloit parçacıklar, maddeyi oluşturan atom sistemlerine benzetilebilir ve faz geçişi mekanizması gibi istatistiksel mekaniğin temel problemlerini incelemek için bir model sistem olarak kullanılabilir. Küresel koloit parçacıkların yapıları atomik yapılar ile örtüşmektedir ve ışık mikroskobu sayesinde koloit parçacıkların konumları büyük bir hassasiyetle ölçülebilir. Böylelikle atom sistemlerinde teknolojik olarak mümkün olmayan eşzamanlı lokal ve dinamik ölçümler, koloit parçacıklar ve ışık mikroskobu kullanılarak eşzamanlı olarak yerine getirilebilir ve koloit sistemlerdeki yeni bulgular atom sistemlerindeki cevaplanamamış sorulara ışık tutabilir.

Sıvı içerisindeki koloit parçacıklar arasındaki etkileşimler, bir asırdan fazladır çalışılmasına rağmen, tam olarak anlaşılamamıştır. Koloit parçacıklar genellikle, çözücü moleküller, moleküler ölçekli iyonlar ve diğer yüklü yüzeyler ile birlikte karmaşık bir ortamda bulunur. Koloit parçacıkların dinamiği incelenmeden önce bunların hepsi dikkate alınmalıdır. Bu bileşenler arasındaki etkileşimler; oldukça güçlü itme, van der Waals etkileşimi, makro iyonlar (koloit küreler), sudaki iyonlar ve hidrodinamik çapraz bağlama ajanları arasındaki Coulomb etkileşimlerini içerir.

Bu çalışmada, seçilen uygun polimerler Poli(N-izopropilakrilamid) (PNIPAM) kullanılarak hazırlanan koloit süspansiyonlarda parçacıklar arası etkileşim potansiyel enerjilerini ölçmek için dijital video mikroskop yöntemi ve sıvı yapı teorisi kullanılmıştır.

Optik mikroskop ile doğrudan gözlemlenebilen, suda yayılan mikrometre boyutundaki koloit parçacıkların dinamiği incelenmiştir. Dijital görüntü analizi sayesinde koloit süspansiyonların incelenmesi anlık ve gözlemlenebilir olarak gerçekleştirilmiştir. Çalışmamızda mikron boyutunda PNIPAM hidrojel parçacıkları kullanılmıştır. Sentezlenen koloit parçacıkların ısıya duyarlılığını ve büyüklüklerini kontrol ederek, bir optik mikroskop ile hareketleri kısıtlanmış geometriler içinde ve farklı sıcaklıklar altında etkileşimleri “eşzamanlı” olarak gözlemlenerek, fiziksel özellikleri ölçülmüştür.

Çalışma sonucunda, video mikroskop yöntemi ile alınan veriler, görüntü işleme programı yardımıyla bir araya getirilerek koloit parçacıkların, etkileşim potansiyel enerjilerinin doğrudan hesaplanmıştır.

ANAHTAR KELİMELELER: Çift Korelasyon Fonksiyonu, Etkileşim Potansiyel Enerjisi, Görüntü Analizi, Koloit Parçacıklar, Isıya Duyarlı Malzemeler, Video Mikroskop Yöntemi

JÜRİ: Dr. Öğr. Üyesi Deniz KAYA

Prof. Dr. Rıza ERDEM

Dr. Öğr. Üyesi M.İlker BEYAZ

ABSTRACT

MEASURING THE INTERACTION POTENTIAL ENERGY OF COLLOIDAL PARTICLES BY VIDEO MICROSCOPY METHOD

Naim Tuna TOKSÖZ

MSc Thesis in PHYSICS

Supervisor:Asst.Prof.Dr. Deniz KAYA

February 2021;45 pages

Colloids have many applications in technology and industry, but they also play an important role scientifically. For example, with the light microscope, micrometer-sized spherical colloid particles can be associated with atomic systems that make up matter and can be used as a model system to study basic problems in statistical mechanics such as the phase transition mechanism. The structure of colloidal systems are similar to atomic stuctures, and the positions of the colloid particles can be measured with great precision thanks to the light microscope. Thus, simultaneous local and dynamic measurements that are not technologically possible in atomic systems can be carried out simultaneously using colloid particles and light microscopy, and new findings in colloid systems can shed light on unanswered questions in atomic systems.

The interactions between colloid particles in liquid are not fully understood, although they have been studied for more than a century. Colloid particles usually exist in a complex environment with solvent molecules, molecular-scale ions and other charged surfaces. All of these must be considered before examining the dynamics of colloid particles. Interactions between these components include; the extremely strong repulsion, van der Waals interaction, macro ions (colloid spheres), ions in water, Coulomb interactions among hydrodynamic crosslinking agents.

In this study, digital video microscope method and liquid structure theory were used to measure the potential energies of double interaction between particles in colloid suspensions prepared using the selected polymers Poly (N-isopropylacrylamide (PNIPAAm)).

By controlling the sensitivity and size of the synthesized colloid particles to heat, the interactions of the synthesized colloid particles in restricted geometries and under different temperatures were observed simultaneously and its physical properties were measured.

As a result of the study, the data obtained by the video microscope method were brought together with the help of the image processing program and the pair interaction potential energies of the colloid particles were directly calculated.

KEYWORDS: Colloid Particles, Pair Correlation Function, Heat Sensitive Materials, Image Analysis, Interaction Potential Energy, Video Microscope Method

COMMITTEE: Asst.Prof.Dr. Deniz KAYA

Prof.Dr. Rıza ERDEM

Asst.Prof.Dr. M.İlker BEYAZ

ÖNSÖZ

Çapları yaklaşık birkaç nanometre ve birkaç mikrometre arasında olan koloitler, parçacıklar arası etkileşimlerden dolayı çeşitli özelliklere sahiptirler. Koloit parçacıkları arasındaki kuvvetler reolojik ve optik özellikler de dâhil olmak üzere koloit süspansiyonların birçok yönünü kontrol eder. Koloit parçacıkları arası etkileşimler elektrostatik, van der Waals, hidrofobik, hidrasyon ve sterik etkileşimler olarak sınıflandırılır.

Yoğun koloit süspansiyonların fiziksel özellikleri, küresel koloit parçacıklar arasındaki etkileşim potansiyeli tarafından belirlenir. Örneğin, çift yönlü etkileşimin sıcaklık, hacim kesri ve sınır koşulları üzerindeki bağımlılığı aktif araştırma konusudur. Pratik uygulamalarda, çift yönlü etkileşim ölçümleri, süspansiyondaki parçacıkların yük durumu ve kimyasal ortamı hakkında ayrıntılı bilgi sağlar. Bir dizi video görüntüsünden alınan verileri görüntü işleme programı yardımı ile bir araya getirerek koloit parçacıkların, etkileşim potansiyel enerjileri doğrudan hesaplanmıştır. Bu amaçla mikrometre çapında ve büyüklükleri sabit koloit parçacıklar ile büyüklüğü sıcaklıkla değişen mikrojel koloit parçacıkların etkileşim potansiyel enerjileri ölçülmüştür.

Bilimsel açıdan önemli olan bu tez çalışmasında; yüksek lisansa başlayarak akademik anlamda attığım ilk somut adımında yanımda olan, desteğini, bilgisini ve tecrübelerini esirgemeyen, bana araştırma fırsatı tanıyan, ekibinde çalışmaktan büyük bir gurur ve mutluluk duyduğum, öğrencisi olduğum için kendimi şanslı hissettiğim Akdeniz Üniversitesi Fen Fakültesi Fizik Bölümü öğretim üyesi olan değerli danışmanım Dr. Öğr. Üyesi Deniz KAYA'ya, lisans ve lisansüstü eğitimim boyunca bilgilerinden faydalandığım tüm bölüm hocalarıma, tüm çalışma arkadaşlarıma, fikirleri ile bana yardımcı olan jüri üyeleri Dr. Öğr. Üyesi M.İlker BEYAZ ve Prof. Dr. Rıza ERDEM hocalarıma, ayrıca eğitim hayatımın en başından beri benden maddi, manevi desteğini esirgemeyen, her durumda bana destek olup başarabileceğime beni inandırarak bana güç veren aileme teşekkürlerimi sunarım.

Bu tez çalışmasına yaptığı katkılarıyla Türkiye Bilimsel ve Teknik Araştırma Kurumu'na (TÜBİTAK) (Proje No 116M396) teşekkür ederim.

İÇİNDEKİLER

ÖZET	i
ABSTRACT	iii
ÖNSÖZ	v
AKADEMİK BEYAN	viii
SİMGELER VE KISALTMALAR	ix
ŞEKİLLER DİZİNİ	xi
1. GİRİŞ	1
2. KAYNAK TARAMASI	4
2.1. Koloitlerin Özellikleri	4
2.2. Koloit Parçacıklar Arası Kuvvetler ve DLVO Teorisi	5
2.2.1. Hidrofobik Kuvvetler	5
2.2.2. Hidrasyon Kuvvetleri	6
2.2.3. Derjaguin-Landau-Verwey Overbeek (DLVO) Teorisi	6
2.3. Brownian Hareketi	7
2.4. $u(r)$ Etkileşim Potansiyel Enerjisi ve Model Sistemler	9
2.5. Görüntüleme Tekniği	10
2.5.1. Dijital Video Mikroskop Yöntemi	11
2.5.2. Parçacık Ağırlık Merkezlerinin Tespiti	11
2.5.3. Bant-Geçiş (Band-pass) Filtreleme Tekniği	11
2.5.4. Parçacıkların Belirlenmesi	12
2.5.5. Parçacık Konumu Belirleme	12
2.5.6. Sahte Parçacıkları Ortadan Kaldırmak	12
2.5.7. Yörüngeleri Bağlama	13
2.6. $g(r)$ Çift Korelasyon Fonksiyonu	13
2.7. $g(r)$ Çift Korelasyon Fonksiyonu Kullanılarak $u(r)$ Etkileşim Potansiyel Enerjisi Eldesi	16
2.8. İntegral Yaklaşımları	17
2.8.1. Ornstein-Zernike (OZ) Denklemi	17
2.8.2. Percus-Yevick (PY) Yaklaşımı	19
2.8.3. Hypernetted-Chain (HNC) Yaklaşımı	20
3. MATERYAL VE METOT	22
3.1. Isıya Duyarlı Polimer Parçacıklar	22

3.1.1. PNIPAM Molekül Yapısı	23
3.2. Koloit Parçacık Sentezi	23
3.2.1. Isıya Duyarlı PNIPAM Parçacık Sentezi	23
3.3. Sıcaklık Kontrol Mekanizması ve Işık Mikroskobu	24
3.4. Sıcaklık Değişiminin Parçacıklar Arası Etkileşim Üzerine Etkisi	25
3.5. Koloit Parçacıklar Sistemi ve Örnek Hücre Hazırlanışı	26
3.6. Parçacıkların Takibi ve Analizi	26
3.6.1. Video - Mikroskop Yöntemi ile Görüntüleme Tekniği	27
3.6.2. Görüntü Bütününün İşlenmesi	29
3.6.3. Parçacıkların Parlaklık Merkezinin Bulunması	30
3.6.4. Görüntü Filtreleme	30
4. BULGULAR VE TARTIŞMA	33
4.1. Çift Korelasyon Fonksiyonu Hesaplama	33
4.2. Etkileşim Potansiyeli $u(r)$ Ölçümü	37
5. SONUÇLAR	39
6. KAYNAKLAR	41
ÖZGEÇMİŞ	

AKADEMİK BEYAN

Yüksek Lisans Tezi olarak sunduğum “Koloit Parçacıkların Etkileşim Potansiyel Enerjilerinin Video Mikroskop Yöntemiyle Ölçülmesi” adlı bu çalışmanın, akademik kurallar ve etik değerlere uygun olarak bulunduğunu belirtir, bu tez çalışmasında bana ait olmayan tüm bilgilerin kaynağını gösterdiğimi beyan ederim.

18/02/2021

Naim Tuna TOKSÖZ



SİMGELER VE KISALTMALAR

Simgeler:

$g(r)$	: Çift Korelasyon Fonksiyonu
$u(r)$	: Etkileşim Potansiyel Enerjisi
ε	: Ortamın Dielektrik Sabiti
k	: Debye uzunluğu
A_V	: Hamaker Sabiti
η	: Akışkanın Vizkosite Değeri
k_B	: Boltzmann Sabiti
T	: Sıcaklık
ψ_{oi}	: i Yüzey Potansiyeli
$N(t)$	: Alansal Yoğunluk
$w(r)$	: Ortalama Kuvvet Potansiyeli
m	: Mikron Boyutlu Parçacık Kütlesi
r	: Mikron Boyutlu Parçacık Çapı
D	: Difüzyon Katsayısı
τ	: Gecikme Süresi
$c(r)$	: Direkt Korelasyon Fonksiyonu
$h(r)$	: Toplam Korelasyon Fonksiyonu
h	: Ayrılma Mesafesi
θ	: Yüzey Açısı
$\langle \dots \rangle_\theta$	: Açısal Ortalama
α	: Parçacık Büyüklüğü
ρ	: Parçacık Dağılımı
$\rho(r)$	: Parçacık Yoğunluğu

Kısaltmalar:

<i>SFA</i>	: Yüzey Kuvvet Aparatı (Surface Force Apparatus)
<i>PNIPAM</i>	: Poli(N-İzopropilakrilamit)
<i>AFM</i>	: Atomik Kuvvet Mikroskobu (Atomic Force Microscopy)
<i>DLVO</i>	: Derjaguin - Landau - Verwey - Overbeek Teorisi
<i>LCST</i>	: Alt Kritik Çözelti Sıcaklığı (Lower Critical Solution Temperature)
<i>AAm</i>	: Akrilamid
<i>MBA</i>	: Metilen bisakrilamid
<i>LDPT</i>	: Lazer Sapmalı Parçacık İzleme
<i>TIRM</i>	: İç Yansıma Mikroskobu (Total Internal Reflection Microscopy)
<i>OT</i>	: Optik Cımbızlama (Optical Tweezers)
<i>AMPDH</i>	: 2,2-azobis (2-metilpropionamidin) hidroklorit
<i>OZ</i>	: Ornstein - Zernike Metodu
<i>PY</i>	: Percus - Yevick Yaklaşımı
<i>HNC</i>	: Hypernetted Chain Yaklaşımı

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 2.1	Sıvı bir ortamda bulunan iki koloit parçacık arasındaki van der Waals, elektrostatik ve Coulomb etkileşimleri (Weber, 2017)	5
Şekil 2.2	a) çekici etkileşim b) olası en minimum durum c) yapışma engeli durumu (Ronald, 2001)	7
Şekil 2.3	m kütleli parçacığa çarparak rastgele Brownian hareketi yapan sıvı molekülleri (Sjögren 2012)	8
Şekil 2.4	Atomik sıvılar için Lennard-Jones potansiyel çifti (Nägele 2004).	10
Şekil 2.5	PNIPAM küresel koloit parçacığının band-pass uygulanmadan önce a ve uygulandıktan sonra b görüntüsü (Crocker ve Grier 1996)	12
Şekil 2.6	Gauss maskesi geçirilmiş bir koloit parçacığının merkezi parlaklık konumunun belirlenmesi	13
Şekil 2.7	Sağdaki resim, iki boyutlu disklerin basit bir simülasyonu için hesaplanan $g(r)$ 'yi gösterir. Fonksiyon tüm parçacık çiftlerine göre hesaplanır, ancak netleştirmek için soldaki resimde bir referans parçacığını (siyah) vurgulanmıştır (Crocker 1996)	15
Şekil 3.8	PNIPAM polimerinin LCST grafiği (Natalia, Leonid 2015)	22
Şekil 3.9	Poli(N-Izopropilakrilamid) (PNIPAM) polimeri	23
Şekil 3.10	PNIPAM sentezlenerek oluşturulmuş koloit parçacık	24
Şekil 3.11	a) Sıcaklık kontrol ünitesi (Warner Instruments TC-144) ; b) Işık mikroskobu (Leica DMI8) ; c) Objektif ısıtıcısı	25
Şekil 3.12	Mikroskop gözlemi için PNIPAM koloit parçacık montaj yöntemi	26
Şekil 3.13	Seyreltilmiş koloit süspansiyondan oluşturulan örnek hücre paralel iki cam yüzey (lamel) arasına ince bir aralıkta tek bir tabaka halinde sınırlandırılmıştır	27
Şekil 3.14	Cam lameller-ayraç-yapıştırıcı kullanılarak yapılan örnek hücresi ışık mikroskobu ve mikroskop lensi tarafından görüntülenen örnek hücresinin yandan görünüşü ve kamera ile alınmış görüntü (110.000 görüntü karesi ile gerçekleştirilmiştir)	28
Şekil 3.15	a) Koloit parçacıkların IDL görüntü analizi b) ilk video görüntüsü c-e) parçacıkların işaretlenmesi d) filtre edilmiş görüntü	28
Şekil 3.16	Koloit parçacıkların parlaklık (pixel)- eksantrisite analiz görüntüsü	29

Şekil 3.17	Koloit parçacıkların parlaklık - parçacık çapı analiz görüntüsü . . .	30
Şekil 3.18	Konumları belirlenmiş koloit parçacıkların parlaklık merkezlerinin gösterimi	31
Şekil 3.19	1 μm çapındaki sıvı süspansiyon içinde bulunan PNIPAM koloit parçacıklarının görüntüsü. a) Dijitalleştirilmiş kusurlu görüntünün renksiz hali. b) Dijitalleştirilmiş kusurlu görüntünün renkli hali	32
Şekil 4.20	a)Koloit parçacıkların dağılımı b) $g(r)$ fonksiyonunun r 'ye göre değişimi c)PNIPAM parçacıklarının mikroskop altındaki görüntüsü	33
Şekil 4.21	H yüksekliği ve L genişliğindeki bulunan görüntü için taralı bölge, $g(r)$ 'nin hesaplanmasında kullanılmıştır (Han 2003)	34
Şekil 4.22	a) Bant geçiş filtresi uygulanmış tek bir görüntü b)PNIPAM parçacıklarından oluşan koloit süspansiyonda ölçülen çift dağılım fonksiyonu grafiği .	35
Şekil 4.23	110.000 görüntü karesi üzerinden hesaplanan PNIPAM parçacıklarından oluşan koloit süspansiyonun çift dağılım fonksiyonu $g(r)$	36
Şekil 4.24	0.89 μm çapındaki PNIPAM koloit parçacıklarının radyal dağılım fonksiyonu ve hata hesabi gösterilmiştir	36
Şekil 4.25	$H=2 \mu\text{m}$ hücre kalınlığı, 0.89 μm çapındaki PNIPAM koloit parçacıklarının etkileşim potansiyel enerjisi ve büyütülmüş hali	37

1. GİRİŞ

Bir sıvı içerisinde mikrometreden daha küçük parçacıkların dağılımının sonucunda oluşan karışıma koloit süspansiyonlar adı verilir ve yoğun madde fiziğinde birçok süreci araştırmak için güçlü bir model sistem olarak kullanılır (Pieranski 1983, van de Ven 1989). Bu tür süspansiyonlardaki küresel koloit parçacıklar, atomların maruz kaldığı yapısal geçişlere benzer şekilde gaz, sıvı ve katı durumlar arası faz geçişleri gösterirler.

Koloit parçacıklar tipik olarak birkaç nanometre ile birkaç mikrometre arasında boyutlara sahiptir ve koloit süspansiyonlardaki faz dağılımları, faz kararlılığı ilaç, boya ve kozmetik endüstrisindeki ürünlerin ve sistemlerin üretiminde etkin bir rol oynar (Rus-sel vd. 1989). Günümüzde kullanılan sistemler arasında aerosol su damlacıkları, boya ve mürekkeplerdeki pigmentler, kömür harçlarındaki mineral tanecikler, kağıt boyutlandırma, kan plazmasında dağılmış kırmızı kan hücreleri ve gıda ürünlerinde emülsifiye yağ globülleri vb. örnek olarak verilebilir (Durian vd. 1911, Thomas vd. 1994). Koloit süspansiyon içerisindeki parçacık yoğunluğu arttıkça, dağılmış parçacıklar arasındaki karşılıklı etkileşimler daha yaygın hale gelir ve bunların etkileşimleri sistemin özelliklerinin belirlenmesinde önemli bir rol oynar. Bu etkileşimler birkaç farklı fiziksel süreçten kaynaklanabilir. Hazırlanan koloit süspansiyonlarda homojen küresel parçacıkların mikroskobik hareketlerinin izlenmesi ve analiz edilmesi, çok parçacıklı yoğun madde fiziğinde çeşitli araştırmalarda kullanılır. Pek çok sistemdeki yapıların (kristaller, dendritler, kar taneleri, yaşam makineleri ve galaksiler vb.) kendi bileşenleri arasında etkileşimleri sonucu nasıl oluştuğunu anlamak, temel fizik çalışmaları için önemli bir konudur.

Kose ve çalışma arkadaşları, uzun bir süre önce küresel parçacıkların koloit süspansiyonlarındaki parçacıkların dağılımının, bir kristaldeki atomların dağılımına benzeyebileceğini göstermiştir (Kose vd. 1973). Böylece, süspansiyon içindeki koloit parçacıklar, ışık yayılımı ve video mikroskop yöntemi kullanılarak yüksek çözünürlükle yerleştirilebilir ve gözlemlenebilir. Bu model sistemlerin davranışları üzerine birçok grup tarafından yapılan son yıllardaki araştırmalar, yoğun madde fiziği alanındaki çeşitli sorulara yeni bakış açıları getirmektedir. Bu tür çalışmalar, koloit süspansiyonların faz geçiş dinamikleri, elastik ve akışkanlık özellikleriyle ilgili olup, aynı zamanda çeşitli malzemelerin davra-

nışlarına ve bunlara dair yeni bilgiler de sunmaktadır. Video mikroskop yöntemi, uzun zamandır hücrelerin yapısını ve işlevini incelemek için kullanılan aracı bir sistem olmuştur. Bununla birlikte, atomların aksine, küresel koloit parçacıklar, optik video mikroskop yöntemi ve bilgisayarlı görüntü analizi kullanılarak görüntülenebilir ve izlenebilir. Son yıllarda, fizikçiler ve kimyagerler, koloit süspansiyonların yapısını ve dinamiklerini incelemek için optik video mikroskop tekniklerini kullanmaktadırlar (Leahy vd. 2018). Bu yöntemde mikroskop, ışık yayılımı veya nötron saçılması gibi diğer tekniklere de fayda sağlayan tamamlayıcı bilgiler içerir. Bu tür uygulamalar, koloit süspansiyonların faz davranışını incelemek ve koloit parçacıklar arasındaki temel etkileşimler hakkında bilgi vermeyi amaçlamaktadır.

Koloit sistemlerin faz geçişleri ile ilgili çoğu araştırma, sabit sıcaklıkta süspansiyon içindeki küresel parçacıkların hacim oranı gibi diğer termodinamik değişkenlere dayanır. Son dönemde, dijital video mikroskop yöntemi, koloit etkileşimleri doğrudan araştıran yeni teknikler için temel sağlamıştır. Bu yöntemler, çift korelasyon fonksiyonunu bulmak için parçacık konumlarının ölçümelerini kullanır.

İki cam lamel arası düzlemde hareketi sınırlandırılmış olan seyreltilmiş bir koloit süspansiyon için çift korelasyon fonksiyonunu doğrudan ölçen Kepler ve Fraden, daha sonra da birçok parçacık katkısını ortadan kaldırmak için Monte Carlo tekniklerini uygulamıştır (Kepler vd. 1994). Daha sonra Crocker ve Grier, çift korelasyon fonksiyonu için denklem çözümlerini gösteren tekrarlanabilir başlangıç koşullarında, küresel parçacık çiftlerini konumlandırmak için optik cımbızlama yöntemi kullanmıştır (Crocker ve Grier 1994; 1996).

Bu tezde, özel etkileşimlerin, etkileşim potansiyel enerjisine ve koloit parçacıkların elastik özelliklerine olan etkisi çalışılarak, etkileşim potansiyel enerjisi dijital video mikroskop yönteminden yararlanarak ölçülmüştür. Bu amaçla, etkileşim potansiyel enerjisini ölçmek için, 100x büyütme kapasiteli yağ batırmalı objektifi bulunan ışık mikroskobu kullanılarak Brownian hareketi yapan koloit parçacıkların hareketi dijital kamera ile kaydedilmiştir. Gerekli veriler alınmadan önce hazırlanan hücre içerisinde çeşitli konumlarda yer alan koloit parçacıkların hareketi gözlemlenmiş olup, bu gözlem sonucu parçacıkların

odak derinliğinden kaçmadığı örneklerden görüntüler bütünü kaydedilmiştir. Işık mikroskobu kullanılarak elde edilen görüntü bütünü oluşturduğu verilerin görüntü işleme programları yazılarak gerekli analizler ve hesaplamalar yapılarak, her bir görüntü için koloit parçacıkların konumları piksel altı hassasiyette elde edilmiştir. Bu işlemler, görüntü analizi kısmında tüm görüntü bütünü için uygulanarak hesaplama yapılmıştır. Sıvı yapısı teorisine dayanan teknikler ile etkileşim potansiyel enerjisi, çift korelasyon fonksiyonu kullanılarak elde edilmiştir. Tez de yapılan çalışmalar şu şekilde düzenlenmiştir: ikinci bölümünde koloitler arası temel etkileşim kuvvetleri, Brownian hareketi, görüntüleme tekniği, çift korelasyon fonksiyonu ve integral yaklaşımları anlatılmıştır. Üçüncü bölümde, gerçekleştirilen deneylerin ve ölçümlerin detayları, dördüncü bölümde ise deneylerden ortaya çıkan bulgular detaylıca tartışılmış ve son bölümde de sonuçlar paylaşılmıştır.

2. KAYNAK TARAMASI

2.1. Koloitlerin Özellikleri

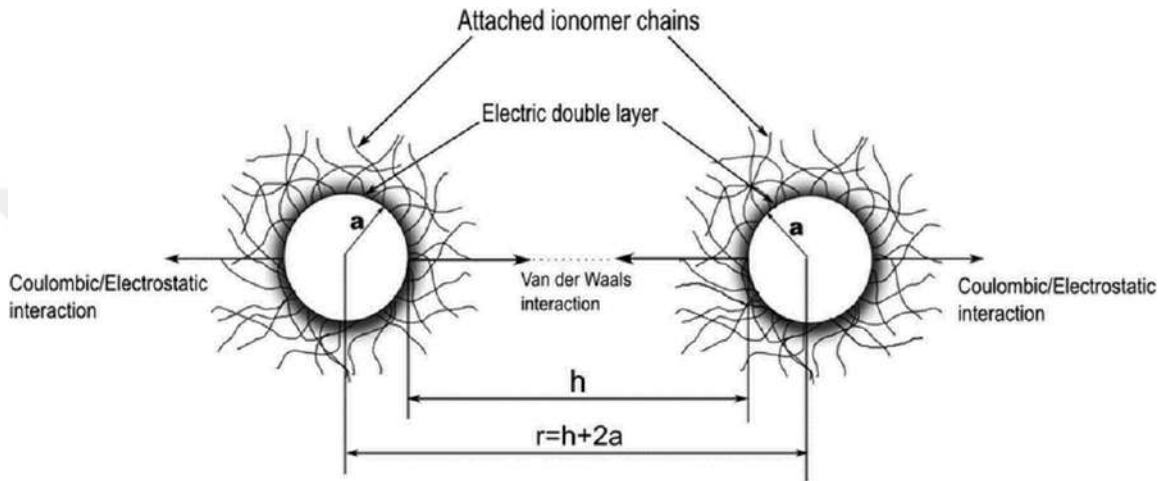
Koloit bilimi, çözelti içinde askıda kalan mikrometre ile nanometre arasındaki parçacıkların hareketinin anlaşılması ve çeşitli alanlara uygulanmasıyla ilgilenen bilim dalıdır. İnsanlar günlük olarak koloit sistemlerle farkında olmadan da olsa etkileşime girer ve günlük kullanılan çeşitli malzemelerde bulunabilir. Bu malzemelerin kullanım alanları yiyecek ve kozmetik ürünlerinden ev eşyalarına kadar uzanır. Koloitler, kimyasal ve biyolojik uygulama alanları da dahil olmak üzere daha ileri teknoloji malzemelerde de bulunur. Bu ürünlerle olan insan etkileşimi çok yüksek olduğundan, bu parçacıkların uygulamaları için koloitlerin davranışının tam olarak anlaşılması çok önemlidir.

Koloitlerin birbirleriyle etkileşimleri, süspansiyonların fiziksel özelliklerinin tanımlanmasında da büyük öneme sahiptir. Bu tür koloit süspansiyonlar hidrodinamik, difüzyon, yerçekimi ve elektrostatik kuvvetleri içerebilir. Bu kuvvetler, parçacıkların sıcaklık, yoğunluk, yük, boyut ve şekil olmak üzere farklı özelliklerinin fonksiyonudur. Parçacıkların yoğunluğu ayrıca ilgili yapının tanımlanmasında önemli bir rol oynar. Düşük yoğunluklarda ve düşük etkileşimlerde dağınık faz olasıdır. Bununla birlikte, sistemin entropisi ile birlikte yeterince yüksek yoğunluklarda çekici ve itici etkileşimler, düzgün faza yol açar. Son olarak, parçacıklar arası etkileşimlere sahip orta ve yüksek yoğunlukta, bir araya gelmiş ve parçacıklar arası mesafelerin azaldığı yapılara yol açabilir.

Sert küre etkileşimleri, yüksek parçacık yoğunluğunda düzensiz geçişlere neden olur. Elektrostatik ve uyarılmış dipol momentleri, sert küre potansiyelinden daha uzun ölçeklerde etki yapan itici (elektrostatik) veya çekici (van der Waals) kuvvetlerine yol açar. Çekici kuvvetler parçacıkların bir araya gelmesini sağlamaktadır. Net kuvvetlerin çekici bir yapıya sahip olduğu bu tür süspansiyonlarda koloit parçacıkların büyük kümelenmiş durumları görülebilir.

2.2. Koloit Parçacıklar Arası Kuvvetler ve DLVO Teorisi

Koloit parçacıkları arasındaki kuvvetler, reolojik ve optik olmak üzere koloit süspansiyonların birçok fiziksel özelliğini kontrol eder (Russel vd. 1989). Koloit parçacık etkileşimleri arasındaki küçük değişimler, aynı zamanda süspansiyonun fiziksel özelliklerinin değişmesine de neden olmaktadır. Koloit parçacıklar arası etkileşimler, elektrostatik, van der Waals, hidrofobik, hidrasyon ve sterik ana başlıkları altında gruplandırılabilir.



Şekil 2.1. Sıvı bir ortamda bulunan iki koloit parçacık arasındaki van der Waals, elektrostatik ve Coulomb etkileşimleri (Weber, 2017)

2.2.1. Hidrofobik kuvvetler

Sulu bir süspansiyona polar olmayan moleküller dahil edildiğinde, su moleküllerinin 3 boyutlu uzaysal dizilimlerinde bir bozulma meydana gelecektir. Sistem, polar olmayan katmanların toplanmasına neden olabilecek daha elverişli bir konfigürasyona yönelecektir (Elimelech vd, 1995). Bu davranışın en yaygın örneği, su ve yağ karışımlarıdır. Son yıllarda hidrofobik kuvvetlerin birçok etkisi üzerine çalışılmış ve incelenmiştir (Israelachvili, 1992). Claesson ve Christenson (1998), 80 nm'ye kadar olan etkileşim mesafelerinde hidrofobik kuvvetleri ölçmek için bir yüzey kuvveti aparatı (SFA, Surface Force Apparatus) kullanmış ve bu etkileşimin, van der Waals etkileşimini aştığını bulmuştur. Rabinovich ve Yoon (1994) hidrofobik kuvvetleri ölçmek için bir atomik kuvvet mikroskobu (AFM, Atomic Force Microscopy) kullanmış ve 95° 'den daha büyük temas açıları olan yüzeyler için keskin bir şekilde artan çekici bir kuvvet olduğunu gözlemlemiştir.

Hidrofobik kuvvetlerin, biyolojik sistemlerde koloit çökeltme, yiyecek işleme ve mineral yüzdürme gibi işlemlerde önemli bir rol oynadığı bilinmektedir.

2.2.2. Hidrasyon kuvvetleri

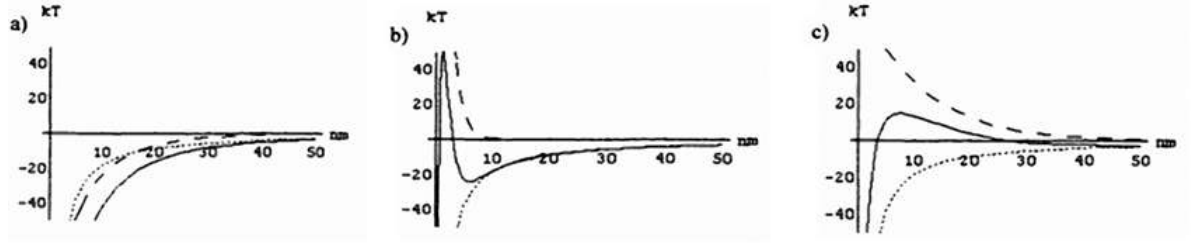
Sınırlandırılmış sulu bir çözelti içerisinde parçacıklar arası teması sağlamak için iki yüzey arasında, temas noktasında absorbe edilen tüm suyun uzaklaştırılması gerekir, böylece yüzeyleri temasa sokmak için gereken enerji miktarı artar. Bu ilave kuvvet, sudaki hidrasyon kuvvetleri olarak adlandırılır (van de Ven, 1989). Bu kuvvetlerin niceliksel bir temsili olmamakla birlikte, bu çalışmada hesaplamaya dâhil edilmemiştir.

2.2.3. Derjaguin-Landau-Verwey Overbeek (DLVO) Teorisi

Koloit parçacıklar arası etkileşimlerin en yaygın olarak kabul edilen açık formülasyonu, toplam etkileşimin parçacıklar arası itme elektrostatik kuvveti ve çekici van der Waals kuvvetinden gelen etkileşimin olduğunu düşünen Derjaguin-Landau-Verwey Overbeek (DLVO) tarafından bulunan teoridir (Adamson, 1990). Derjaguin, Landau, Verwey ve Overbeek tarafından yapılan bağımsız araştırmalar, o zamandan beri Hogg vd. de dahil birçok araştırmacı tarafından değiştirilen ve uyarlanan DLVO teorisinin temelini oluşturur (Gregory, 1981). Ayrıca, elektrostatik ve van der Waals etkileşimlerini tanımlayan ifadeleri ölçmek veya doğrulamak için birçok deneysel çalışma yapılmıştır (Adams, 1978). DLVO, sabit yüzey potansiyeli için bir küresel parçacık ile yüzey arasındaki elektrostatik etkileşimin bağıntısı

$$\varphi_C = 2\pi a_p \varepsilon (\psi_{01}^2 + \psi_{02}^2) \left[\frac{\psi_{01} \psi_{02}}{(\psi_{01}^2 + \psi_{02}^2)} \ln \left(\frac{1 + \exp(-\kappa h)}{1 - \exp(-\kappa h)} \right) + \ln(1 - \exp(-2\kappa h)) \right], \quad (2.1)$$

şeklinde tanımlanır (Hogg vd, 1966). (2.1)'de yer alan bağıntıda h küresel parçacık ve yüzey arasındaki minimum ayrılma mesafesidir, a_p ise parçacık yarıçapıdır, ε ortamın dielektrik sabitidir, Ψ_{oi} i yüzeyinin potansiyelidir, κ olarak tanımlanmış olan terim ise Debye uzunluğudur.



Şekil 2.2. a) çekici etkileşim b) olası en minimum durum c) yapışma engeli durumu (Ronald, 2001)

Şekil 2.2’de DLVO etkileşimleri için, elektrostatik etkileşimler, sabit potansiyel bir model kullanılarak hesaplanan küre yüzey etkileşimleri, kesikli (—) çizgilerle ve noktalı (....) şekilde gösterilmiştir. Kesiksiz çizgiler, elektrostatik ve van der Waals etkileşimlerini temsil eder. Şekil 2.2.a’da parçacıklar arası çekici etkileşim, Şekil 2.2.b’de çekici ve itici etkileşim toplamından meydana gelen kararlı minimum enerji durumu, Şekil 2.2.c’de çekici ve itici etkileşim toplamından dolayı parçacıklar arası yapışmayı engelleyen enerji durumu gösterilmiştir (Ronald, 2001). Debye uzunluğu

$$\kappa^2 = \frac{e^2}{\epsilon k_B T} \sum_i n_i z_i^2, \quad (2.2)$$

bağıntısı ile ifade edilebilir. (2.2)’de belirtilen ifade için ϵ ortamın dielektrik sabiti, k_B Boltzmann sabiti, T sıcaklık, n_i i çeşitteki iyon sayısı, z_i iyonun yük sayısını belirtir. Bir küresel koloit parçacık ve yüzey için van der Waals etkileşimi

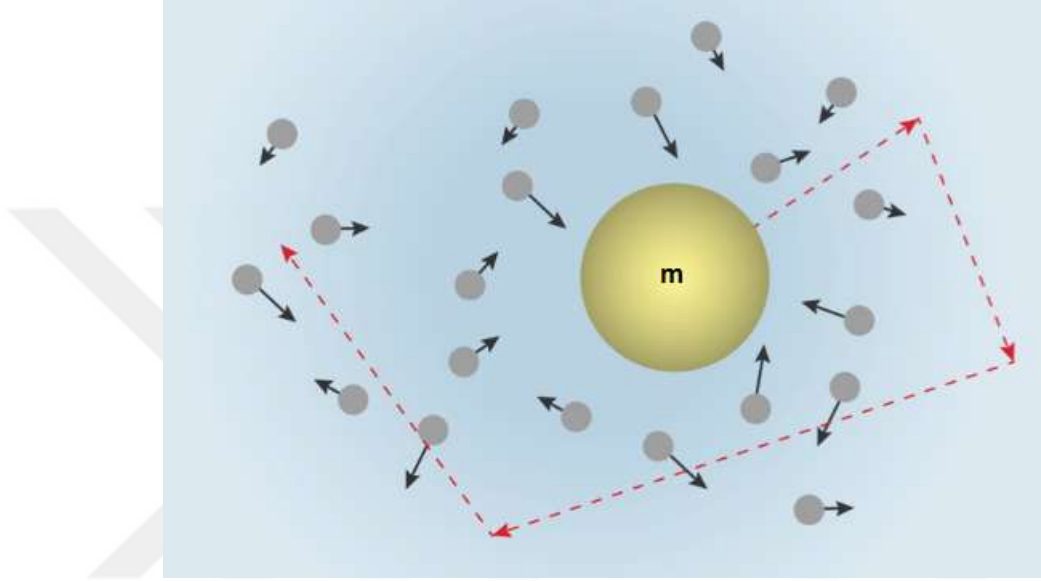
$$\varphi_V = -\frac{A_V}{6} \left[\frac{2a_p(h + a_p)}{h(h + 2a_p)} + \ln \left(\frac{h}{h + 2a_p} \right) \right], \quad (2.3)$$

şeklinde verilmiştir. (2.3)’de verilen parametreler (2.1) bağıntısındaki parametreler ile aynı olup, A_v Hamaker sabitidir (Hamaker, 1937).

2.3. Brownian Hareketi

Bir çözücü içindeki parçacıkların rastgele hareketine ilişkin ilk gözlemler 1827’de Robert Brown tarafından yapılmıştır. Parçacıkların bu rastgele hareketi Brownian hareketi

olarak tanımlanmış, o tarihten bu yana Brownian hareketi sayısız deneysel ve teorik çalışmanın konusu olmuştur. Bir sıvı veya gazı oluşturan atomlar veya moleküller sabit termal hareket halinde olup hız dağılımları sıcaklık tarafından belirlenir. Sıvı moleküllerinin hareketi, koloit parçacıklarla etkileşerek çarpışmalara yol açar. Bu çarpışmalar, parçacıklara uygulanan rastgele kuvvetlere yol açarak kararsız bir şekilde hareket etmelerine neden olur.



Şekil 2.3. m kütleli parçacığa çarparak rastgele Brownian hareketi yapan sıvı molekülleri (Sjögren 2012)

Koloit parçacıkların birbirlerinden ve herhangi bir sınırlayıcı yüzeyden uzak olduğu seyreltilmiş çözeltiler için, parçacıkların hareketi arasında korelasyon yoktur. 1905 yılında Einstein ve Sutherland teorik olarak izole edilmiş bir parçacığın viskozitesi η ve parçacık büyüklüğü a 'ya olan bağımlılığını teorik olarak türetmiştir. Einstein-Stokes-Sutherland denklemi olarak bilinen bu ilişki

$$D_S = \frac{k_B T}{6\pi\eta a}, \quad (2.4)$$

olarak bilinir. (2.4)'deki bu bağıntıda D_S a yarıçaplı parçacığın difüzyon sabitidir. Bir süspansiyondaki parçacık yoğunluğu arttığında, parçacıklar daha kısa menzillerde ayrılır ve yeterince yakın olduklarında, rastgele bulunan parçacıklar komşu parçacıklardan

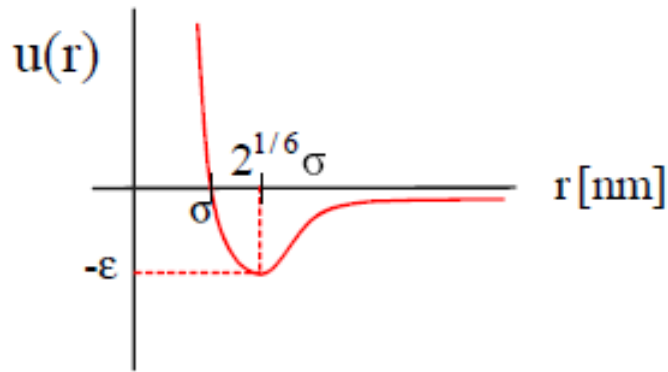
bağımsız durumda olamaz. Bu bağımlılık, çözücü içerisinde viskoz momentum taşınımı ile indüklenen parçacık hareketleri arasındaki dinamik korelasyon olan hidrodinamik etkileşimler ile tanımlanmaktadır. Bir koloit parçacığının hareketi kendisini çevreleyen akışkanı etkiler ve süspansiyonda bir hız profili oluşturur. Bu dağılım sıvının kinematik viskozitesi η/ρ ile ifade edilir. Koloit parçacık hareketinin r mesafede, bir gecikme süresi $\tau \sim r^2\rho/\eta$ değerini alır. Bu süreden sonra, bu mesafedeki başka bir parçacığının hareketi, diğer parçacığının hareketi ile bağıntılı hale gelir. Bu etkileşimler, karmaşık sıvılar, proteinler ve polimer süspansiyonları dahil birçok sistemde bulunur.

2.4. $u(r)$ Etkileşim Potansiyel Enerjisi ve Model Sistemler

Bir sıvı süspansiyonda küresel koloit parçacıkların etkileşim potansiyelini tanımlamaya uygun olarak Lennard-Jones modelinden bahsedilebilir. Lennard-Jones potansiyeli, argon, kripton ve ksenon gibi nadir gaz atomlarının çiftleri ve aynı zamanda metan gibi yarı küresel moleküller arasındaki etkileşimi

$$u(r) = 4\epsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^6 \right] \quad \text{ile} \quad r > 0, \quad (2.5)$$

şeklinde tanımlanır. Verilen (2.5) bağıntısı için $u(r)$ r uzaklıktaki etkileşim potansiyel enerjisini, r iki parçacık arası mesafeyi, σ iki parçacık arası potansiyelin sıfır olduğu uzaklık, ϵ minimum enerji değeridir. Potansiyel eğrinin bir çizimi Şekil 2.4’de verilmiştir. Buradaki iki parametre etkileşim potansiyelini karakterize eder: $u(r) = 0$ değerinde çarpışma çapı σ ve $r = 2^{1/6}\sigma$ ’da minimum potansiyel de ϵ derinliğindedir. σ ve ϵ değerleri, atomik saçılma teknikleri kullanılarak çok sayıda atom için belirlenmiştir.



Şekil 2.4. Atomik sıvılar için Lennard-Jones potansiyel çifti (Nägele 2004)

Argon için $\sigma_{Ar}=0.34$ nm ve $\epsilon_{Ar}/k_B=119.8$ K' dır. Etkileşim potansiyel enerjisinin r^{-12} ile orantılı olan kısmı kısa menzilli itme, iki atomun yaklaşık olarak elektrostatik etkileşimini temsil eder. İki atom arasındaki uzun mesafeli van der Waals çekici etkileşimi ise r^{-6} kısmı tarafından açıklanmaktadır. Teorik bir model olan sert küre modelinde ise, etkileşim enerjisi sadece iki değer taşımaktadır

$$u(r) = \begin{cases} \infty, & r < \sigma \\ 0, & r > \sigma \end{cases}, \quad (2.6)$$

şeklinde özetlenebilir. (2.6)'da belirtildiği gibi parçacık yarıçapından küçük olan mesafelerde etkileşim potansiyeli sonsuz iken, parçacık yarıçapından büyük olan mesafelerde ise etkileşim potansiyel değeri sıfırdır.

2.5. Görüntüleme Tekniği

Mikrometre çapındaki koloit parçacıkların hareketini incelemek için dijital video mikroskop yöntemi kullanımına ihtiyaç vardır. Bu teknik, parçacıkların konumlarını bulmak ve hareketlerini incelemek için optik mikroskop, dijital görüntüleme ve görüntü işleme algoritmalarını birleştirir. Bu görüntüleme tekniği, parçacıkların konumlarını belirleme alt başlıklarından oluşmaktadır.

2.5.1. Dijital video mikroskop yöntemi

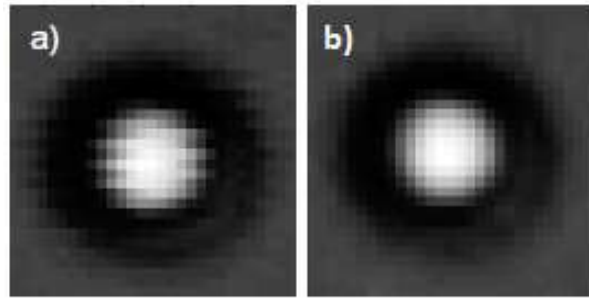
Bu tezde parçacık takibi ve görüntü analizi yapmak için Crocker, Weeks ve grubunun parçacık izleme tekniklerinden yararlanılmıştır (Weeks vd, 2000). Bu yöntem Crocker ve Grier tarafından 1994 yılında geliştirilmiştir (Crocker ve Grier 1994). Yapılan deneylerde mikroskoptan alınan görüntüler dijital kamerayla görüntülenerek kaydedilir. Her bir görüntü karesi için, parçacık konumlarının tespiti görüntü analizi ile gerçekleştirilir. Dijital video mikroskop yöntemi ile eş zamanlı olarak mikrometre çaplı her bir koloit parçacığının konumu bulunarak, sıvı süspansiyon içerisindeki tüm koloit parçacıkların hareketi incelenebilir ve rastgele hareketi takip edilebilir.

2.5.2. Parçacık ağırlık merkezlerinin tespiti

Deneyi gerçekleştirmeden önce, kamera görüş bölgesinin düzgün bir şekilde Kohler aydınlatılması sağlanır. Mikroskop elemanları buna göre hizalanır. Daha sonra her görüntü, parçacık ağırlık merkezlerini piksel altı doğruluğa kadar tespit etmek için band-pass filtreleme tekniği, parçacık tayini, parçacık konumu belirleme, sahte parçacıkları ortadan kaldırma ve yörüngeleri bağlama rutinlerine tabi tutulur (Crocker ve Grier 1996).

2.5.3. Bant-Geçiş (Band-pass) filtreleme tekniği

Parçacık merkezi izleme algoritması, parçacığının sıfır yoğunluklu bir arka plan üzerinde bir Gauss fonksiyon profiline sahip olması durumunda en iyi şekilde çalışır. Bunu sağlamak için, görüntü önce arka plan gürültüsünün orijinal görüntüden çıkarıldığı bir bant geçiş filtresine tabi tutulur. Şekil 2.5.a'da mikrometre çaplı koloit parçacığının işlenmemiş görüntüsü bulunmaktadır. Arka plan gürültüsü çıkartılarak bant geçiş filtresi uygulandıktan sonraki görüntüsü Şekil 2.5.b'de gösterilmektedir. Filtreleme yapıldıktan sonra görüntüdeki aydınlık seviye dağılımının daha homojen ve net olduğu gösterilmektedir.



Şekil 2.5. PNIPAAm küresel koloit parçacığının band-pass uygulanmadan önce a ve uygulandıktan sonra b görüntüsü (Crocker ve Grier 1996)

2.5.4. Parçacıkların belirlenmesi

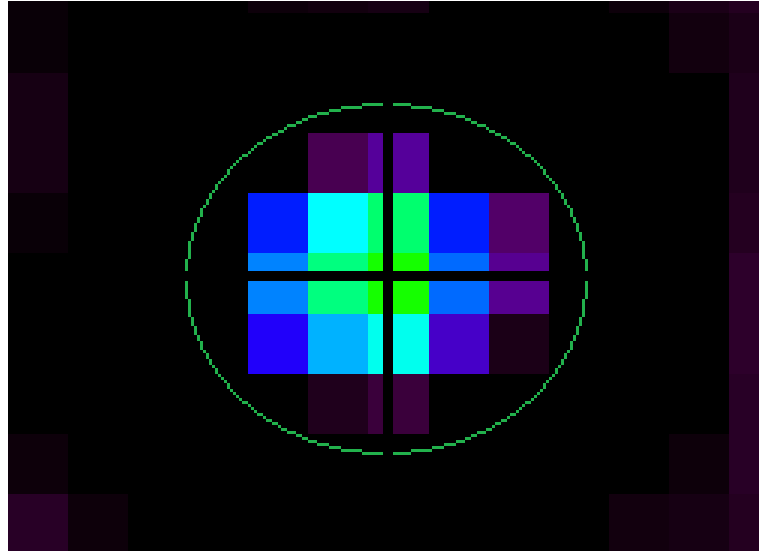
Elde edilen görüntülerde, koloit parçacıklarının büyüklükleri yaklaşık olarak 5 piksel ile 10 piksel arasındadır. Bu görüntülerde parçacık merkezlerinde aydınlık seviyeleri arka plana göre daha fazladır. Görüntü analizi adımlarında bant geçiş filtresi, bu piksel aralıklarına göre seçilir. Ancak bu piksel aralıklarına denk gelen aydınlık seviye değişimleri koloit parçacığına ait olmasa bile parçacık olarak algılanabilir. Bu sahte parçacıkların yok edilmesi ek analiz adımlarıyla gerçekleştirilmektedir.

2.5.5. Parçacık konumu belirleme

Ham (işlenmemiş görüntü) koloit parçacık konumlarını elde etmek için, parlaklık seviyesine göre ağırlık merkezi (Şekil 2.6), parçacık yoğunluğu profiline dayalı olarak alt piksel doğruluğuna kadar bulunur. Pikselaltı hassasiyetle tespit edilen tüm parçacıkların görüntü bütünü için analiz yapılır.

2.5.6. Sahte parçacıkları ortadan kaldırmak

Bant geçiş yöntemi kullanılarak görüntüde yer alan tüm parçacıkların merkezi parlaklık konum noktaları önceki bölümde bulunmuştu. Fakat görüntü analizi sırasında çeşitli nedenlerden dolayı ham görüntüdeki arka plan gürültüsü yeterince filtrelenebilir. Bu da tüm görüntü bütünü incelemesi sırasında hatalı sonuçlara veya yorumlara neden olabilir.



Şekil 2.6. Gauss maskesi geçirilmiş bir koloit parçacığının merkezi parlaklık konumunun belirlenmesi

Oluşabilecek bu hataların giderilmesi için küresel koloit parçacıklar ile çalışılmasından dolayı incelenen tüm parçacıkların eksantrisitesinin sıfır civarında olması beklenmektedir. Bu nedenle görüntü merkezinden dışa doğru olan aydınlık piksel dağılımlarının dairesel simetride olması gerekir, bu da eksantrite parametresi ile ölçülür ve bu değer sıfır civarı olması tamamen dairesel dağılım olduğunu gösterir.

2.5.7. Yörüngeleri bağlama

Son olarak, sonraki çerçevelerde tespit edilen koloit parçacıkların tümü, ayrı parçacık yörüngelerini elde etmek için bağlanır. Arka plan gürültüsünde oluşan rastgele dalgalanmalar koloit parçacık gibi algılanabilir. Merkezi parlaklıklar ardışık karelerde kısa izler oluşturur. Bu yöntemle tespit edilen bu olası durumlar düzeltilerek görüntü bütünü gürültüden temizleme işlemi yapılır.

2.6. $g(r)$ Çift Korelasyon Fonksiyonu

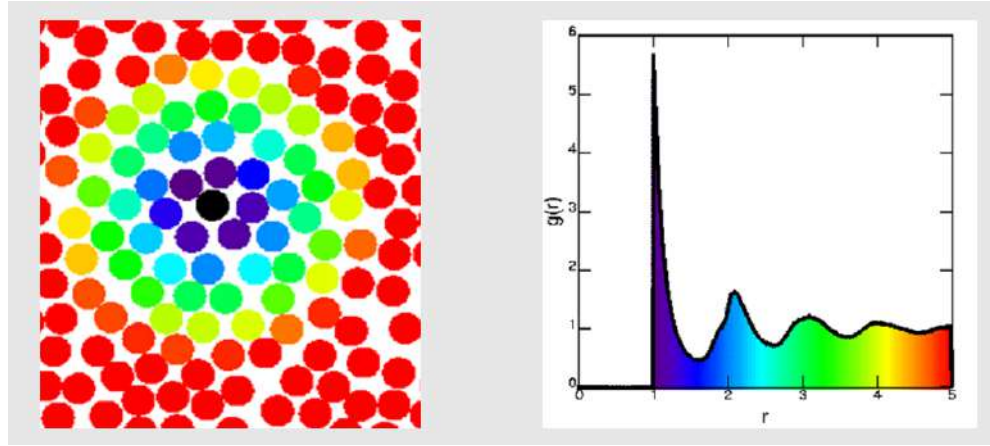
Çift korelasyon fonksiyonu, bir parçacığın başka bir parçacığın merkezinden belirli bir mesafede bulunma olasılığı ile ilgilidir. Kısa mesafeler için, parçacıkların nasıl bir araya geldiği ile ilişkilidir. Örneğin, sert küreler gibi düşünüldüğünde parçacıklar üst üste binemez, bu nedenle iki merkezin olabildiği en yakın mesafe parçacıkların çapına eşittir.

Bununla birlikte, birkaç parçacık bir parçacığa temas edebilir, böylelikle etraflarında birkaç katman oluşturabilir. Daha uzakta, bu katmanlar daha dağınık hale gelir ve bu nedenle büyük mesafeler için, belirli bir ayırım ile iki parçacık bulma olasılığı esasen sabittir. Bu durum, yoğunluk ile alakalıdır. Daha yoğun bir sistemde daha fazla parçacık vardır, bu nedenle bunlardan ikisini belirli bir mesafede bulma olasılığı daha yüksektir.

Çift korelasyon fonksiyonu, yoğunluğa göre normalleştirilerek bu faktörleri hesaba katar, büyük r değerleri 1'e gider. Şekil 2.7'de, iki boyutlu disklerin basit bir simülasyonu için hesaplanan $g(r)$ 'yi gösterir. Fonksiyon tüm parçacık çiftlerine göre hesaplanır, ancak netleştirmek için ilki resimde bir referans parçacığını (siyah) vurgulanmıştır. Çevreleyen parçacıklar siyah parçacıktan uzaklığa göre renklendirilirler ve sağdaki $g(r)$ grafiğine karşılık gelir. Bu nedenle örneğin 5 parçacık mor renktedir ve 1 çapındaki bir ayırmda belirgin tepe noktasına karşılık gelir. Birkaç parçacık koyu mavi olup, yaklaşık 1.5 çap uzakta daha az olası konuma karşılık gelir. Birkaç tane daha parçacık açık mavidir, yaklaşık 2 çapta 2. en yakın komşu zirveye karşılık gelir. Daha uzakta, yeşil parçacıklar en yakın 3. komşuyu oluşturur ve sarı parçacıklar en yakın 4. komşuyu oluşturur (Crocker 1996). Dijital video mikroskobu yöntemi ile t anında görüş alanında bulunan $N(t)$ parçacıklarının dağılımı

$$\rho(\mathbf{r}, t) = \sum_{j=1}^{N(t)} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j(t)) , \quad (2.7)$$

olarak tanımlanır. (2.7)'deki bağıntıda $\rho(\mathbf{r}, t)$ rastgele ısı kuvvetlerin oluşturduğu etkilerin altında parçacıkların zaman ve konum dağılımları, t zaman, $\mathbf{r}$ parçacık konumu, r_j komşu parçacıkları ifade eder. Korelasyon fonksiyonları, iki veya daha fazla parçacığın konum dağılımlarının meydana gelme olasılığını tanımlar. Koloit parçacıkların etkileşim potansiyeli enerjisini çift korelasyon ölçümlerinden elde etmek için sıvı yapısı teorisi kullanılır (Goodstein 1985). Parçacıkların yoğunluğu $\rho(r)$ ile homojen bir sistem için çift korelasyon fonksiyonu $g(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$



Şekil 2.7. Sağdaki resim, iki boyutlu disklerin basit bir simülasyonu için hesaplanan $g(r)$ 'yi gösterir. Fonksiyon tüm parçacık çiftlerine göre hesaplanır, ancak netleştirmek için soldaki resimde bir referans parçacığını (siyah) vurgulanmıştır (Crocker 1996)

$$g(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \left\langle \sum_{\alpha \neq \alpha'} \delta(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_\alpha) \delta(\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_{\alpha'}) \right\rangle, \quad (2.8)$$

$$\frac{1}{n^2} [\langle \rho(\mathbf{r}_1) \rho(\mathbf{r}_2) \rangle - \langle \rho(\mathbf{r}_1) \rangle \langle \rho(\mathbf{r}_2) \rangle], \quad (2.9)$$

$$\frac{1}{n^2} \langle \rho(\mathbf{r}' - \mathbf{r}, t) \rho(\mathbf{r}, t) \rangle, \quad (2.10)$$

şeklinde verilir. $g(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$, (2.8) ve (2.9)'daki bağıntıyla hesaplanır (Carbajal vd. 2002). (2.10)'daki bağıntıda $n = \langle \rho \rangle = N/A$, $N = \langle N(t) \rangle$ parçacıklarının içeren 2 boyuttaki alansal yoğunluk, braketler zaman içindeki ortalamadır. Sistem ötelenmediğinde, dağılım fonksiyonu,

$$g(\mathbf{r}) = \frac{1}{n} \left\langle \sum_{\alpha \neq 0} \rho(\mathbf{r} - \mathbf{r}_\alpha + \mathbf{r}_0) \right\rangle, \quad (2.11)$$

ifade edilir. Dağılım fonksiyonu çift korelasyon fonksiyonuna (2.11) kullanılarak indirgenebilir. $g(\mathbf{r})$ ifadesi, bir koloit parçacığın merkezinden, verilen mesafedeki diğer bir koloit parçacığın merkezinin bulunma olasılığını ifade etmektedir. Kısa mesafeler için, koloit parçacıkların nasıl bir araya geldiğini açıklar. Örnek olarak, bir kristal içerisindeki

koloit parçacıkların nasıl bir araya geldiğini açıklar. Örnek olarak, bir kristal içerisindeki sıkı paketlenmiş koloit parçacıkları düşünülürse, bu parçacıklar birbirleri içine geçemediği için en yakın iki koloit parçacık merkezi, ancak bu parçacıkların çapına eşit olacaktır. Bu bağıntılar sonsuz geniş sistemler için doğrudur; çalışmamızdaki deneyler ise mikroskop altında sınırlı görüş alanına sahip olacaktır. Aynı zamanda görüntü kenarlarındaki kesilmeler meydana geleceğinden dolayı alınan veriler gözlenen ortalama bir değer ile

$$g(r) = \frac{\langle \int \rho(\mathbf{r}' - \mathbf{r}) \rho(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' \rangle_\theta}{[\int \rho(\mathbf{r}') d\mathbf{r}']^2}, \quad (2.12)$$

normalize edilmelidir. Çift dağılım fonksiyonunu hesaplamak ve daha sonra (2.11)'deki bağıntıyı kullanmak yerine (2.12)'deki bağıntı kullanılabilir. Bu bağıntıda, θ parçacığın konumunun koordinat x eksenini ile yaptığı açıdır, $\langle \dots \rangle_\theta$ ise açıya göre alınmış ortalama ifadesi

$$g(r) = \frac{1}{n^2} \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{\int_{A(\theta)} \rho(\mathbf{r}' - \mathbf{r}) \rho(\mathbf{r}') d\mathbf{r}'}{A(\theta)} d\theta, \quad (2.13)$$

şeklinde tanımlanır. (2.13)'teki bağıntıda $\mathbf{r} + d\mathbf{r}$ 'deki çiftlerini sayar ve elde edilen histogramı $A(\theta)$ ile normalize eder.

2.7. $g(r)$ Çift Korelasyon Fonksiyonu Kullanılarak $u(r)$ Etkileşim Potansiyel Enerjisi Eldesi

Çift korelasyon fonksiyonu, aynı zamanda $w(r)$ ortalama kuvvet potansiyeli ile de ilişkilidir. Boltzmann dağılımı aracılığıyla

$$w(r) \equiv -kT \ln g(r), \quad (2.14)$$

elde edilir. (2.14) bağıntısında $w(r)$ çok düşük yoğunluk sınırında $u(r)$ 'ye indirgenir. Ölçümler sonlu yoğunluklarda yapıldığından, birçok parçacık etkileşimleri, çift korelasyon fonksiyonuna ek yapı getirebilir. Sonuçta $w(r)$ 'nin minimum değeri, çekiciliğin kanıtı değildir, ancak birçok parçacık yapısal korelasyonunu tanımlar. Yaklaşıklık yöntemleri kullanılarak sonlu yoğunluk düzeltilmelidir. Ornstein-Zernicke (OZ) denklemi,

birçok parçacık etkileşiminin gelişimini tanımlar. Bu gelişimi kesmek, $u(r)$ için ifadeler elde etmek üzere tersine çevrilebilecek yaklaşık değerler verir. Percus-Yevick (PY) kısa menzilli etkileşimler için daha doğru iken, Hypernetted Chain Yaklaşımı (HNC) yumuşak potansiyeller için doğru olduğu bilinmektedir. Etkileşim potansiyel enerjisi HNC ve PY yaklaşımı ile elde edilir. HNC ifadesi

$$u(r) = w(r) + kT nI(r) \quad (2.15)$$

şeklinde tanımlanır ve (2.15) bağıntısı kullanılır. PY denklemi için

$$u(r) = w(r) + kT \ln(1 + nI(r)) \quad (2.16)$$

ifadesi kullanılır ve (2.16)'daki bağıntı ile tanımlanır.

2.8. İntegral Yaklaşımları

Etkileşim potansiyel enerjisinden yoğun sıvılar için çift korelasyon fonksiyonlarının hesaplanmasını sağlayan teorik yöntemler mevcuttur. Tüm bu yöntemler başlangıçta Ornstein ve Zernike (1914) tarafından yapılan araştırmalarda ortaya konan Ornstein-Zernike (OZ) denklemine dayanmaktadır. OZ denklemi, çok kullanışlı bir kavram olarak direkt korelasyon fonksiyonu olan $c(r)$ 'yi ortaya çıkarır. Çift korelasyon fonksiyonunu belirleyen kapalı integral denklemleri OZ denkleminden türetilir.

2.8.1. Ornstein-Zernike (OZ) Denklemi

Homojen ve izotropik bir sistemin Ornstein – Zernike denklemi

$$h(r_{12}) = c(r_{12}) + \rho \int d\mathbf{r}_3 c(r_{13}) h(r_{23}), \quad (2.17)$$

olarak verilir. (2.17)'deki bağıntıda yeni bir fonksiyon olarak direkt korelasyon fonksiyonu $c(r)$ olarak tanımlanır, $c(r)$ 'nin toplam korelasyon fonksiyonu ise, $h(r) = g(r) - 1$ 'dir. (2.17) bağıntısı, $h(r_{12})$ eldesi için çözülürse

$$h(r_{12}) = c(r_{12}) + \rho \int d\mathbf{r}_3 c(r_{13}) h(r_{23}) + \rho^2 \int d\mathbf{r}_3 d\mathbf{r}_4 c(r_{13}) c(r_{24}) c(r_{34}) + O(c^4), \quad (2.18)$$

elde edilir. (2.18) bağıntısındaki terimlerde üçlü parçacık sistemine ek olarak dört parçacık eklendiğinde fonksiyonların nasıl yazıldığı gösterilmiştir. Ayrıca $u(r)$ ile ilişkili olarak $c(r)$ hakkında bilgi verildiğinde, Ornstein–Zernike denklemi $h(r)$ için kapalı bir integral denklem olarak da görülebilir. (2.17) ‘deki bağıntıda $c(r)$ ile ilgili olarak düşük yoğunluk sınırında $\rho \rightarrow 0$ giderken $c(r) \rightarrow h(r)$ olur ve $c(r) \rightarrow f(r)$ için $\rho \rightarrow 0$ değerine yakınsar. Böylece

$$f(r) = e^{-\beta u(r)} - 1, \quad (2.19)$$

şeklinde tanımlanır ve (2.19)’daki bu bağıntı Mayer-f fonksiyonu olarak tanımlanır.

$r \rightarrow \infty$ için

$$c(r) = -\beta u(r), \quad (2.20)$$

halini alır. Bu şekilde, (2.20)’deki uzun mesafeli asimptotik sonucun sonlu yoğunluklarda bile etkileşim potansiyel enerjisi için geçerli olduğu anlaşılmaktadır. $c(r)$ aralığı $u(r)$ ile karşılaştırılabilir ve $h(r)$ ’nin genellikle $u(r)$ ’den daha uzun menzil olmasından dolayı korelasyon etkilerine atfedilebilir. $S_c(q)$, yapı fonksiyonu (structure function) olarak tanımlanır. $c(r)$ ’yi $S_c(q)$ ile ilişkilendirmek için $r = r_{12}$, $r' = r_{23}$ ve $|r - r'| = r_{13}$ ’ü kullanarak

$$h(r) = c(r) + \rho \int d\mathbf{r}' c(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) h(r'), \quad (2.21)$$

OZ denklemi elde edilir ve (2.21)’deki bağıntı ile yazılır, Ornstein–Zernike denkleminin her iki tarafının Fourier dönüşümü alındığında

$$h(q) = c(q) + \rho c(q) h(q), \quad (2.22)$$

elde edilir. (2.22) bağıntısında $c(q)$, $c(r)$ 'nin üç boyutlu Fourier dönüşümüdür. $S_c(q) = 1 + \rho h(q)$ 'ya bağlı olarak $S_c(q)$ 'yu $c(q)$ cinsinden yazılarak

$$S_c(q) = \frac{1}{1 - \rho c(q)} \geq 0, \quad (2.23)$$

şeklinde tanımlanır. (2.23) bağıntısının türetilmesinde (2.22) bağıntısı, yani Fourier dönüşüm teorisinin konvolüsyon teoremi kullanılmıştır. Konvolüsyon, iki integrallenebilir fonksiyonun $f_1 * f_2$, $f_1(r)$ ve $f_2(r)$ şeklinde yazılarak

$$(f_1 * f_2)(\mathbf{r}) = \int d\mathbf{r}' f_1(\mathbf{r}') f_2(\mathbf{r} - \mathbf{r}') = \int d\mathbf{r}' f_2(\mathbf{r}') f_1(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \quad (2.24)$$

elde edilir ve (2.24)'de tanımlanır. Konvolüsyon teoremi ise

$$\int d\mathbf{r} e^{iq \cdot \mathbf{r}} (f_1 * f_2)(\mathbf{r}) = f_1(\mathbf{q}) f_2(\mathbf{q}), \quad (2.25)$$

şeklinde ifade edilir. (2.25)'deki bağıntıda iki fonksiyonun konvolüsyonunun Fourier dönüşümü, Fourier dönüşümlerinin çarpımına eşittir. (2.23) bağıntısı kullanılarak, $c(q)$ cinsinden

$$\frac{1}{\rho k_B T_{XT}} = 1 - \rho c(q \rightarrow 0) = 1 - 4\pi\rho \int_0^\infty dr r^2 c(r), \quad (2.26)$$

bağıntısı elde edilir ve bağıntı (2.26)'daki gibi tanımlanır.

2.8.2. Percus-Yevick (PY) Yaklaşımı

Percus-Yevick yaklaşımı en çok bilinen ve kullanılan yaklaşımlardan birisidir. PY bağıntısını tanımlamak için Ornstein–Zernike denklemi şu şekilde yeniden tanımlanırsa

$$c(r) = g(r) - \left[1 + \rho \int d\mathbf{r}' c(r') \{g(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'| - 1)\} \right] = g(r) - g_{ind}(r), \quad (2.27)$$

elde edilir. (2.27)'deki bağıntıda parantez içindeki terim, $g_{ind}(r)$, çift korelasyon fonksiyonunun dolaylı kısmını tanımlar (Percus ve Yevick, 1958). $g(r) = \exp[-\beta w(r)]$ itibaren, $g_{ind}(r)$ yaklaşık olarak

$$g_{ind}(r) \approx e^{-\beta[w(r)-u(r)]}, \quad (2.28)$$

şeklinde tanımlanır ve (2.28)'deki bağıntı, $c(r)$ 'ye eşit olarak

$$c(r) \approx g(r) [1 - e^{\beta u(r)}] = g(r) - y(r) = f(r) y(r), \quad (2.29)$$

tanımlanarak (2.29)'daki bağıntı ile kullanılır. Bu bağıntı, $c(r)$ ile PY bağıntısı arasındaki ilişkiyi belirtir ve $y(r)$ olarak verilerek

$$y(r) = e^{\beta u(r)} g(r), \quad (2.30)$$

(2.30)'daki gibi tanımlanır. Sert küreler için, $\exp[-\beta u(r)]$ faktörü içinde tamamen yer alan bir süreksizliğe sahip olan $g(r)$ 'nin tersine, $y(r)$, tüm $r = \sigma$ 'da süreklidir. $u(r) = 0$ 'ın olduğu tüm r 'de $g(r)$ ile uyumludur. PY yaklaşımında, etkileşim potansiyel enerjisi ortadan kalktığında ise $c(r)$ sıfır olarak kabul edilmekte olup

$$y(r_{12}) = \frac{V^2}{Z_N} \int d\mathbf{r}_3 \dots d\mathbf{r}_N \exp \left[-\beta \sum_{i < j} u(r_{ij}) \right], \quad (2.31)$$

ile ifade edilir. (2.31)'deki bağıntıda çift yönlü katkı kuvvetleri için, $\{i, j\} = \{1, 2\}$ çifti toplamı içermez. (2.29)'daki bağıntının OZ denkleminde dönüştürülmesi

$$y(r) = 1 + \rho \int d\mathbf{r}' \left[e^{-\beta u(|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|)} y(|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|) - 1 \right] \left[e^{-\beta u(r')} - 1 \right] y(r'), \quad (2.32)$$

şeklinde (2.32)'de tanımlanan PY integral denklemini verir.

2.8.3. Hypernetted-Chain (HNC) Yaklaşımı

Sıklıkla kullanılan bir başka integral denklem şeması ise, Hypernetted-Chain (HNC) yaklaşımıdır (van Leeuwen vd, 1959). $c(r)$ cinsinden HNC bağıntısı ile ilişkisi

$$c(r) \approx -\beta u(r) + h(r) - \ln[1 + h(r)] = h(r) - \ln y(r), \quad (2.33)$$

şeklinde tanımlanarak (2.33) bağıntısında gösterilmiştir. Bu bağıntıda yaklaşık $g(r)$ değeri

$$g(r) \approx e^{-\beta u(r) + h(r) - c(r)}, \quad (2.34)$$

ile ifade edilerek (2.34) bağıntısında, HNC yaklaşımı, herhangi bir yoğunluk değerinde $g(r)$ 'nin pozitif belirliliğinin korunmuş olduğunu göstermektedir. HNC yaklaşımı, keyfi ρ değeri için

$$c(r) \approx -\beta u(r), \quad r \rightarrow \infty, \quad (2.35)$$

şeklinde tanımlanır ve (2.35)'de verilen ifade için $c(r)$ 'nin doğrusal asimptotik davranışına yol açar. Öte yandan $PY - c(r)$, düşük yoğunluklar için uzun mesafeli hareket eldesi sağlar. OZ denklemi ile birleştirilmiş HNC bağıntısı

$$\ln[e^{\beta u(r)} g(r)] \approx h(r) - c(r) = \rho \int d\mathbf{r}' c(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) h(r'), \quad (2.36)$$

ile elde edilir ve (2.36)'daki bağıntıda tanımlanır. Bu bağıntı

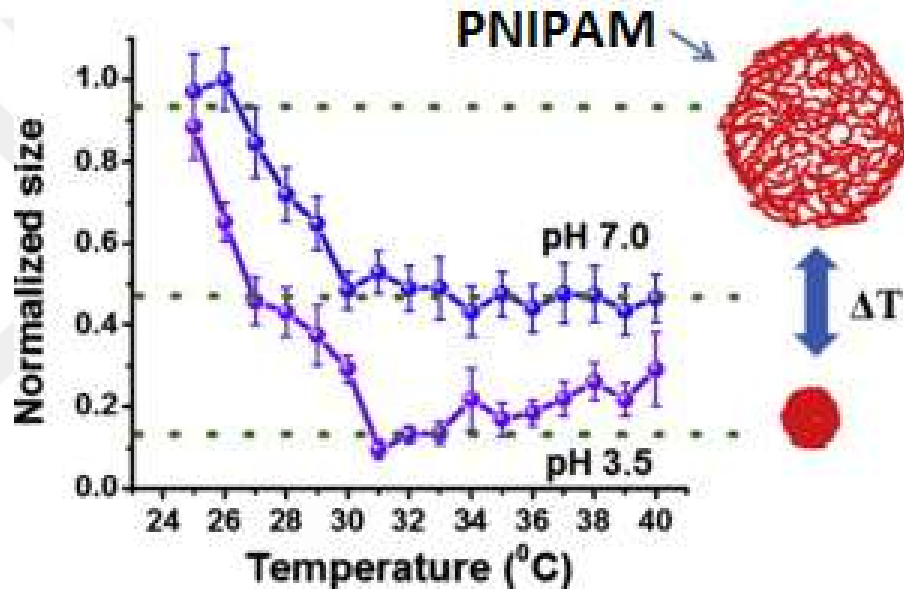
$$\ln[y(r)] = \rho \int d\mathbf{r}' h(r') [-\beta u(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) + h(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) - \ln g(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)], \quad (2.37)$$

(2.37)'deki haliyle yeniden ifade edilebilir. (2.37)'de elde edilen sonuç, $g(r)$ için kullanılan HNC integral denklemdir.

3. MATERYAL VE METOT

3.1. Isıya Duyarlı Polimer Parçacıklar

Bu tezde çalışılan Poli(N-izopropilakrilamid) PNIPAM polimerinin en önemli özelliği, diğer materyallerin aksine sıcaklık artışı veya azalmasıyla faz değişimi oluşturarak büzüşme (küresel parçacıkların içindeki su moleküllerini iterek hidrofobikleşmesi) veya şişme (küresel parçacıkların içindeki su moleküllerini çekerek hidrofilikleşmesi) olayını gerçekleştirmeleridir. Büzüşmenin gerçekleştiği bu sınır sıcaklık değerine en düşük kritik çözelti sıcaklığı (Şekil 3.8) adı verilir.

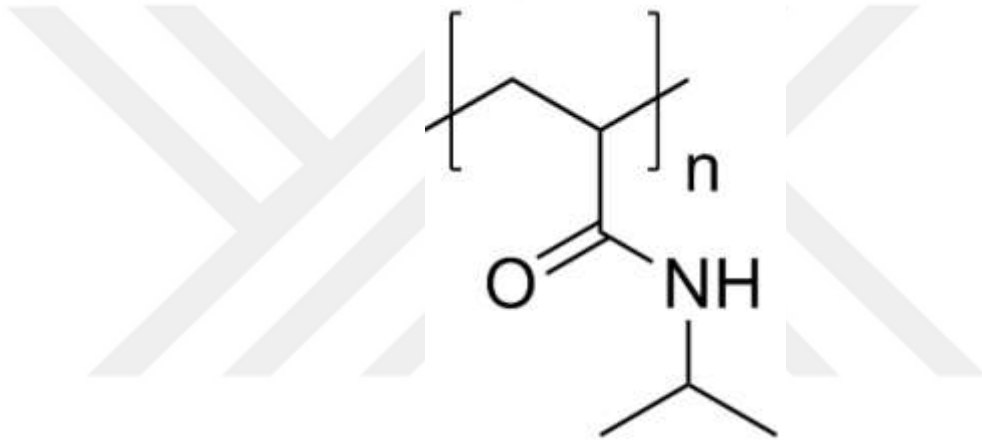


Şekil 3.8. PNIPAM polimerinin LCST grafiği (Natalia, Leonid 2015)

Bu polimerlerin sıcaklık değişimlerine karşı gösterdikleri şişme ve büzüşme tepkileri geri dönüşümlüdür. PNIPAM jeli kritik sıcaklığının üzerinde ısıtıldığında orijinal hacminin %30'una kadar büzüşebilmektedir. PNIPAM parçacıklarının büyüme süresi küçülme süresinden daha fazladır. PNIPAM parçacıkları sıcaklık değişimlerine aynı oranda hassas değildir ve 20°C - 40°C arasında aynı hızda büyür ve küçülür (Yavuz vd, 2011).

3.1.1. PNIPAM molekül yapısı

Polimer molekülleri yüksek molar kütlelere sahip ve çok sayıda birbirini tekrarlayan birimlerden meydana gelen moleküllerdir. Bu malzemeler hem doğal oluşumlu hem de suni olabilmektedir. Şekil 3.9’da görüldüğü gibi PNIPAM polimer parçacıklarında da amid ($=N-C=O$) fonksiyonel grupları bulunmaktadır. H-akseptör ve H-donör gruplarının PNIPAM’da birlikte bulunması nedeniyle moleküller arası (inter-moleküler) ve molekül içi (intramoleküler) H-bağları oluşur. PNIPAM sulu çözeltilerinde alt kritik çözelti sıcaklığı civarında, ısı tepki geçişinde gözlenen histerizin (hysteresis) sebebi bu H-bağlarıdır (Gaertner 2007).



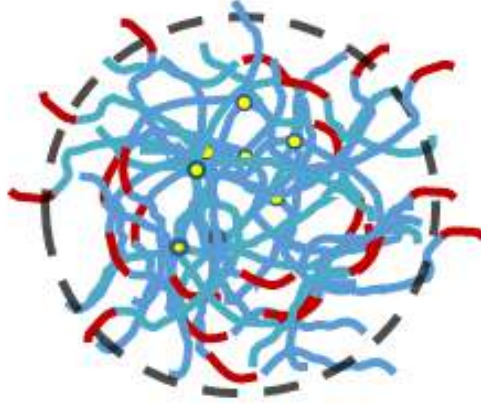
Şekil 3.9. Poli(N-Izopropilakrilamid) (PNIPAM) polimeri

3.2. Koloit Parçacık Sentezi

3.2.1. Isıya duyarlı PNIPAM parçacık sentezi

Isıya duyarlı 1 μ m çapındaki PNIPAM parçacıklarının sürfaktansız emülsiyon polimerizasyon metodu ile sentezi gerçekleştirilmiştir. Ultra saf suda çözünmüş toplamda 0.5 g akrilamid (AAM) ve (N-izopropilakrilamid) NIPAM monomerleri son kısımda belirtilen oranlarda, 0.08 g N,N'-metilenbisakrilamid (MBA) (çapraz bağlayıcı) ve 0.08 g (2,2-azobis (2-metilpropi- onamidin) hidroklorit) (AMPDH) başlatıcı kullanılarak 50mL lik ultra saf suda 100 mL'lik reaksiyon ortamına eklenmiştir. 70°C’de ısıtılmış suyun içerisine daldırılarak reaksiyon ortamı, polimerizasyon ile yaklaşık 2 saat azot ortamında karıştırılmıştır. Reaksiyon ortamı 2 saat sonunda ısıtılmış 70°C’deki sıcak su ortamından

çıkartılarak soğumaya bırakılmıştır. Bu işlemlerden sonra soğuyan PNIPAM parçacıkları santrifüj edilmiş ve yıkanarak saf hale getirilmiştir.



Şekil 3.10. PNIPAM sentezlenerek oluşturulmuş koloit parçacık

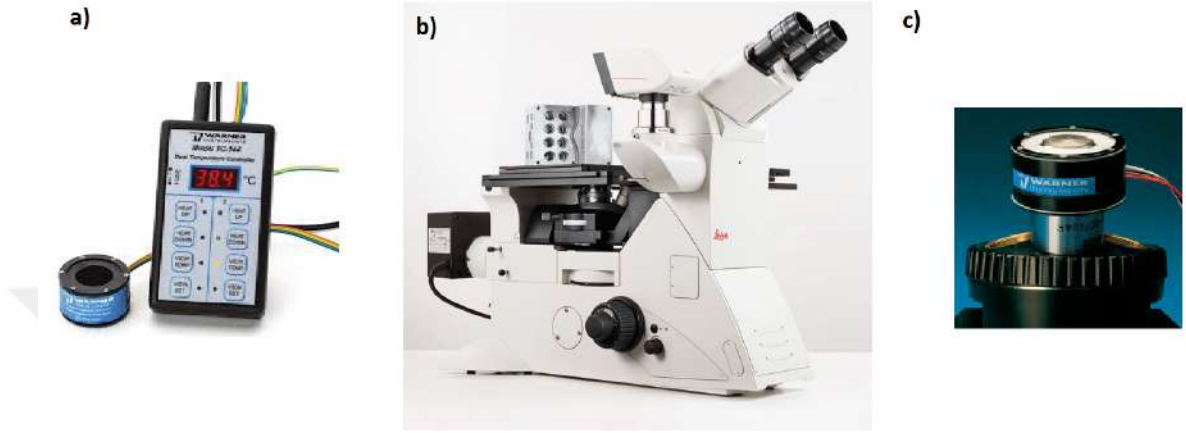
Isıya duyarlı 2 μm çapındaki PNIPAM parçacıklarının sürfaktansız emülsiyon polimerizasyon metodu ile sentezi gerçekleştirilmiştir. Ultra saf suda çözünmüş toplamda 1 g akrilamid (AAm) ve (N-izopropilakrilamid) NIPAM monomerleri son kısımda belirtilen oranlarda, 0.08 g N,N'-metilenbisakrilamid (MBA) (çapraz bağlayıcı) ve 0.08 g (2.2-azobis (2-metilpropi- onamidin) hidroklorit) (AMPDH) başlatıcı kullanılarak 50mL lik ultra saf suda 100 mL'lik reaksiyon ortamına eklenmiştir. 70°C'de ısıtılmış suyun içerisine daldırılarak reaksiyon ortamı, polimerizasyon ile yaklaşık 2 saat azot ortamında karıştırılmıştır. Reaksiyon ortamı 2 saat sonunda ısıtılmış 70°C'deki sıcak su ortamından çıkartılarak soğumaya bırakılmıştır. Bu işlemlerden sonra soğuyan PNIPAM parçacıkları santrifüj edilmiş ve yıkanarak saf hale getirilmiştir.

PNIPAM parçacıkları için karışımda kullanılan mol yüzdesi: LCST= 32°C için PNIPAM (%100) ve AAm (%0).

3.3. Sıcaklık Kontrol Mekanizması ve Işık Mikroskobu

Leica DMI8 marka ışık mikroskobu (Şekil 3.11.b) ve Leica marka N Plan PH3 1.25 NA 100x yağ kullanımlı objektif ile veriler deneysel veriler alınmıştır. Objektif sıcaklığını sabit tutabilmek için Warner Instruments TC-144 marka ve modele sahip objektif ve

tabla ısıtmalı, sıcaklık kontrol ünitesini kullanılmıştır (Şekil 3.11.a ve Şekil 3.11.c). Warner Instruments TC-144 sıcaklık kontrol ünitesinin geçiş aralıkları minimum $0.20^{\circ}C$ ve maksimum $0.50^{\circ}C$ atlamalarına sahiptir. Deneysel veriler alınırken hem objektifte hem de tablada bu sıcaklık geçişleri kullanılmıştır.



Şekil 3.11. a) Sıcaklık kontrol ünitesi (Warner Instruments TC-144) ; b) Işık mikroskobu (Leica DMI8) ; c) Objektif ısıtıcısı

Hem objektif hem de sıcaklık kontrol ünitesi tablasında ayarlanan sıcaklık değeri ile numunenin eş zamanlı olarak ölçülen sıcaklık değerleri farklılık gösterebilmektedir. Bu sorunu ortadan kaldırmak için TC-144 sıcaklık kontrol ünitesinin ayarlanan değeri ile hücre içi sıvı süspansiyonun sıcaklık değeri çeşitli yöntemlerle istenilen sıcaklığa getirilmiştir. Deneysel veriler alındığında, laboratuvar ortamının oda sıcaklığında olmasına dikkat edilmiştir. TC-144 sıcaklık kontrol ünitesiyle objektif sıcaklığı $23^{\circ}C$ 'ye ayarlanmıştır. Bu kapsamda ölçümler $23^{\circ}C$ sıcaklıkta alınmıştır.

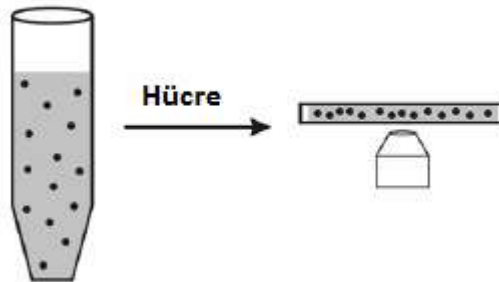
3.4. Sıcaklık Değişiminin Parçacıklar Arası Etkileşim Üzerine Etkisi

Bu tezde kullanılmış olan hidrojel parçacıklar, farklı LCST sıcaklığına sahip olacak şekilde sentezlendiğinde parçacıklar arası özel etkileşimlerinin farklı olması gerekmektedir. Bilindiği üzere, sıcaklık artırıldığında faz geçişi yaparak küçülen küresel hidrojel parçacıkların çapraz bağlayıcı ve polimer yoğunluğu miktarlarına bağlı olarak, parçacıkların ne kadar büzüştüğü belirlenir. Dolayısı ile LCST sıcaklık değerleri farklı olan par-

çacıklar, farklı hidrofobiklik seviyesinde olabilmektedirler ve bu hidrofobiklik durumu parçacıklar arası olası özel etkileşimleri tanımlamaktadır. Bu amaçla etkileşimlerin etkin olup olmadığı sonucunu test etmek için farklı LCST sıcaklıklarında ve PNIPAM hidrojel parçacıklar ile çalışılmıştır. Bu yeni farklı LCST değerlerine sahip mikron boyutta PNIPAM parçacıklarının kullanılması ile özel etkileşimlerin etkisi ölçmüştür.

3.5. Koloit Parçacıklar Sistemi ve Örnek Hücre Hazırlanışı

Seyreltilmiş koloit süspansiyondan oluşturulacak örnek hücre paralel iki cam yüzey (lamel) arasına ince bir aralıkta tek bir tabaka halinde sınırlandırılmıştır. Burada kullanılan cam yüzeyler, yüzey aktif maddelerden temizlenmiştir. Bu işlem, düşük iyonik güçteki koloit parçacıkların cam yüzeyine yapışmasını engelleme amacı taşımaktadır. Temizliğin bir kriteri olarak su, cam yüzeyinde sürekli bir film oluşturabilmelidir. Sentezlenen PNIPAM parçacıkları ile belirli oranlarda seyreltik koloit süspansiyonlar oluşturularak deneye hazır hale getirilmiştir.

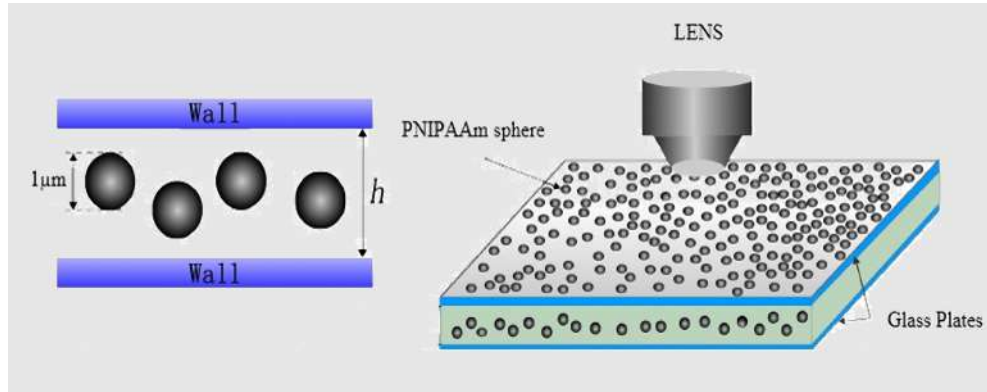


Şekil 3.12. Mikroskop gözlemi için PNIPAM koloit parçacık montaj yöntemi

Deneylerde kullanılmış olan hücrelerin kalınlığı, 1-2 μm aralığında olup, koloit parçacıklar iki cam yüzey arasına mikro pipet yardımı ile aktarılmıştır (Şekil 3.12). Bu durumda sızıntıları önlemek ve herhangi bir buharlaşmaya engel olmak için hücre, epoksi yapıştırıcılar ile hava almayacak şekilde kapatılmıştır (Şekil 3.13).

3.6. Parçacıkların Takibi ve Analizi

Bu tezde, 1 ve 2 μm çapındaki küresel koloit parçacıklarının Brownian hareketi, ışık mikroskopu (Leica DMI8) ile dijital video mikroskop tekniği kullanılarak incelenmiştir.



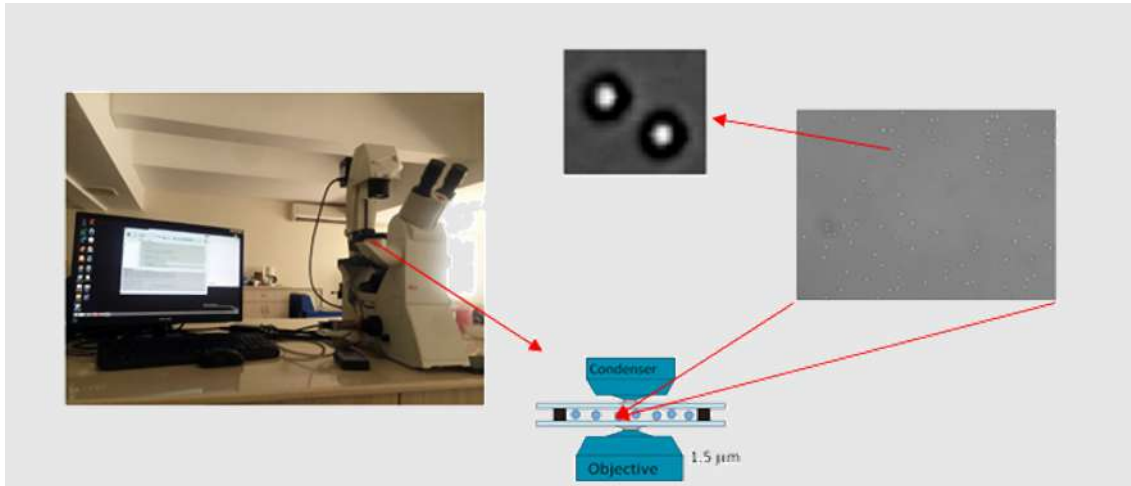
Şekil 3.13. Seyreltilmiş koloit süspansiyondan oluşturulan örnek hücre paralel iki cam yüzey (lamel) arasına ince bir aralıkta tek bir tabaka halinde sınırlandırılmıştır

Parçacıkların izlenmesinde kullanılan kamera hızı aralıklı saniyede 30 kare ve bu nedenle maksimum geçici çözünürlük 1/60 saniyedir. Her görüntü karesi, etiketi ile birlikte ayrı bir görüntü dosyasında saklanmıştır. Görüntü karelerindeki parçacıkların izlenmesi için yine Crocker ve Grier tarafından geliştirilen bir dizi programlama kodu kullanılmıştır. Koloit parçacık takibi deneylerinin temeli Brownian hareketi prensibini içerir. Dijital video mikroskop tekniği Brownian hareketini incelemek için çeşitli yöntemlerden biridir. Atomik kuvvet mikroskobu (AFM) ve lazer sapmalı parçacık izleme (LDPT) gibi metodolojiler ile de bu hareket incelenebilir (Crocker 2000).

3.6.1. Video - mikroskop yöntemi ile görüntüleme tekniği

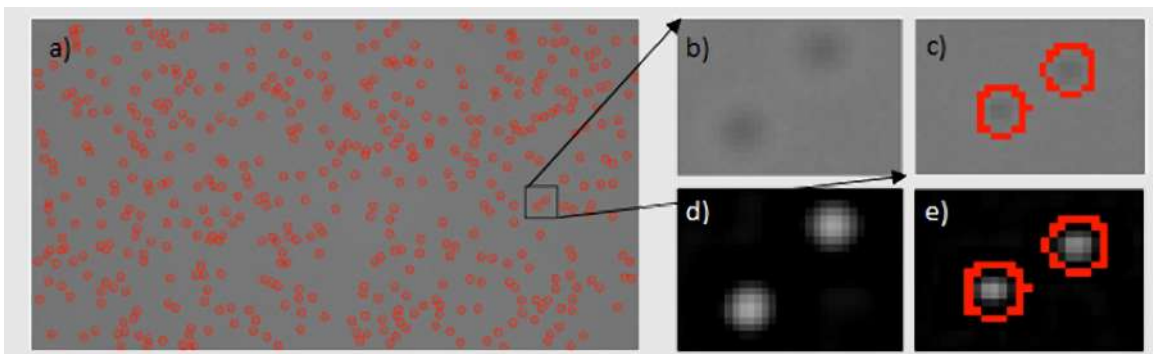
Koloit parçacıklar arası kuvvetlerin doğrudan ölçümleri, çeşitli yöntemlerle elde edilmiştir. Yüzey kuvveti aparatı (SFA), iç yansıma mikroskobu (TIRM), atomik kuvvet mikroskobu (AFM) ve optik cımbızlama (OT) örnek olarak verilebilir. Bununla birlikte, bu tekniklerin her birinin, koloit parçacıklara uygulanmasını zorlaştıran nedenler vardır.

Alternatif bir yöntem ise, sıvı yapı teorisi kullanılarak süspansiyondaki parçacık dağılımlarının ölçümlerinden koloit parçacıklar arasındaki etkileşim potansiyel enerjisini doğrudan ölçmektir. Bu teknik uygulanırken üç boyutlu gerçek parçacık konumlarının iki boyutlu bir video mikroskobu görüntüsüne iki boyutlu bir geometriyle sınırlandırılması gerekir. Bu, parçacıkları geniş bir numune alanı boyunca cam yüzeyler arasında sınırlandırma ile gerçekleştirilir.



Şekil 3.14. Cam lameller-ayraç-yapıştırıcı kullanılarak yapılan örnek hücresi ışık mikroskobu ve mikroskop lensi tarafından görüntülenene örnek hücresinin yandan görünüşü ve kamera ile alınmış görüntü (110.000 görüntü karesi alınmıştır)

Etkileşim potansiyel enerjisini ölçmek için, x100 büyütme kapasiteli yağ batırmalı ışık mikroskobu kullanılarak Brownian hareketi yapan koloit parçacıkların hareketi dijital kamera ile kaydedilmiştir. Gerekli veriler alınmadan önce hazırlanan hücre içerisinde çeşitli konumlarda yer alan koloit parçacıkların hareketi gözlemlenerek bu gözlem sonucu parçacıkların odak derinliğinden kaçmadığı örneklerden görüntüler bütünü kaydedilmiştir. Elde edilen görüntülerin analizi IDL (Interactive Data Language) bilgisayar program dili ile gerçekleştirilmiştir.

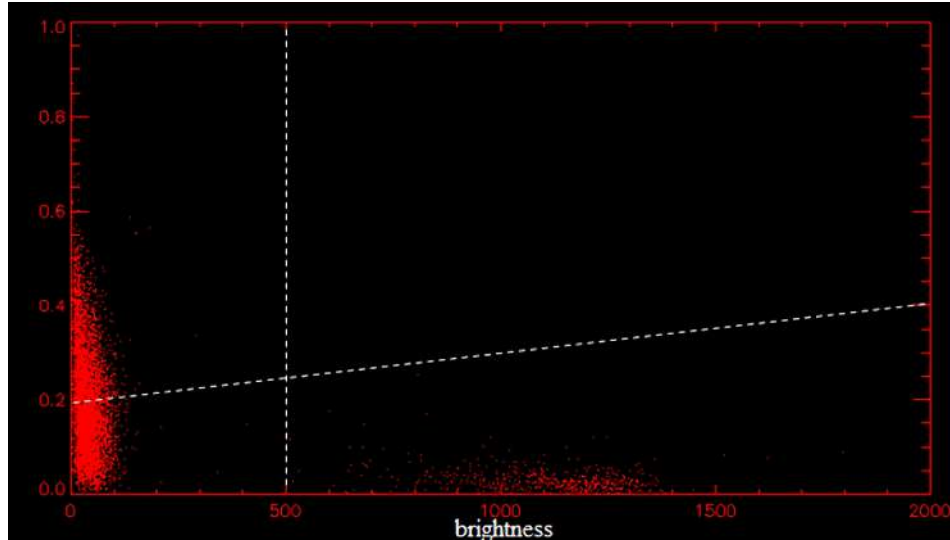


Şekil 3.15. a) Koloit parçacıkların IDL görüntü analizi b) ilk video görüntüsü c-e) parçacıkların işaretlenmesi d) filtre edilmiş görüntü

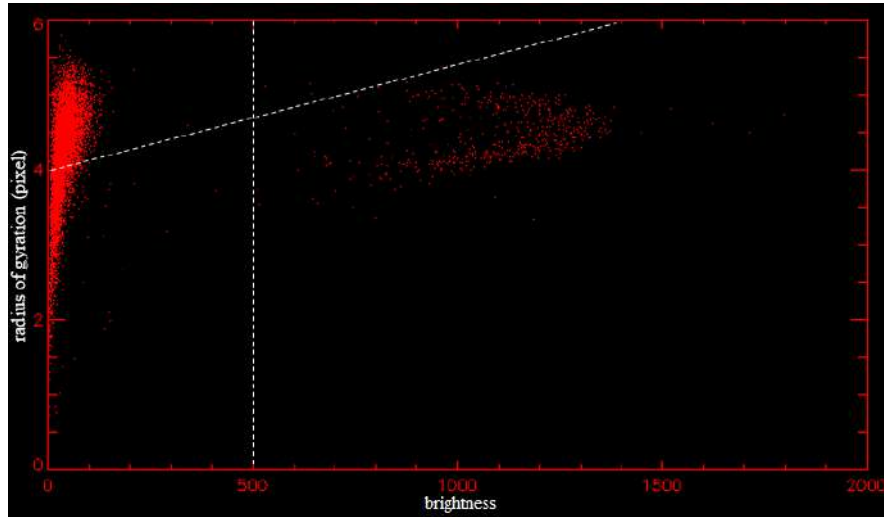
Kısıtlanmış alan altındaki koloit parçacıklarının denge konfigürasyonları Leica ışık mikroskobu ile görüntülenerek toplamda 110.000 görüntü karesi elde edilmiştir. Brownian hareketine maruz kalan koloit parçacıklarının en iyi görüntülerine ulaşmak için hem faz kontrastı hem de parlak alan mikroskopları kullanılmıştır. Yoğunluğu yüksek numuneler için, faz kontrastı ile elde edilen görüntülerin daha iyi kontrasta sahip olduğunu bilinmektedir (Warren 2009).

3.6.2. Görüntü bütünüün işlenmesi

Işık mikroskobu ile elde edilen her bir görüntü için programlama dili kullanılarak gerekli kodlar ile tüm görüntülerin hesaplaması ve analizi gerçekleştirilmiştir. Koloit parçacıkların konumları piksel altı hassasiyette görüntü bütünü için elde edilmiştir. Bu işlemler görüntü analizi uygulanarak sonuçlandırılmıştır. Şekil 3.16'da PNIPAM koloit parçacıklarının hatasız tespit edilmesi için tüm görüntü bütünü üzerinden parçacık eksantrisitesi sıfıra yakın olanlar ve parlaklık seviyesi yüksek olanlar seçilerek analiz yapılmıştır. Şekil 3.17'de ise sentezlenen koloit parçacıkların çapı ve yine parlaklık seviyesine göre analiz gerçekleştirilmiştir. Görüntü karelerinin tamamı için uygulanan bu yöntem ile PNIPAM parçacıkları seçilmiştir.



Şekil 3.16. Koloit parçacıkların parlaklık (pixel)- eksantrisite analiz görüntüsü



Şekil 3.17. Koloit parçacıkların parlaklık (pixel)- parçacık çapı analiz görüntüsü

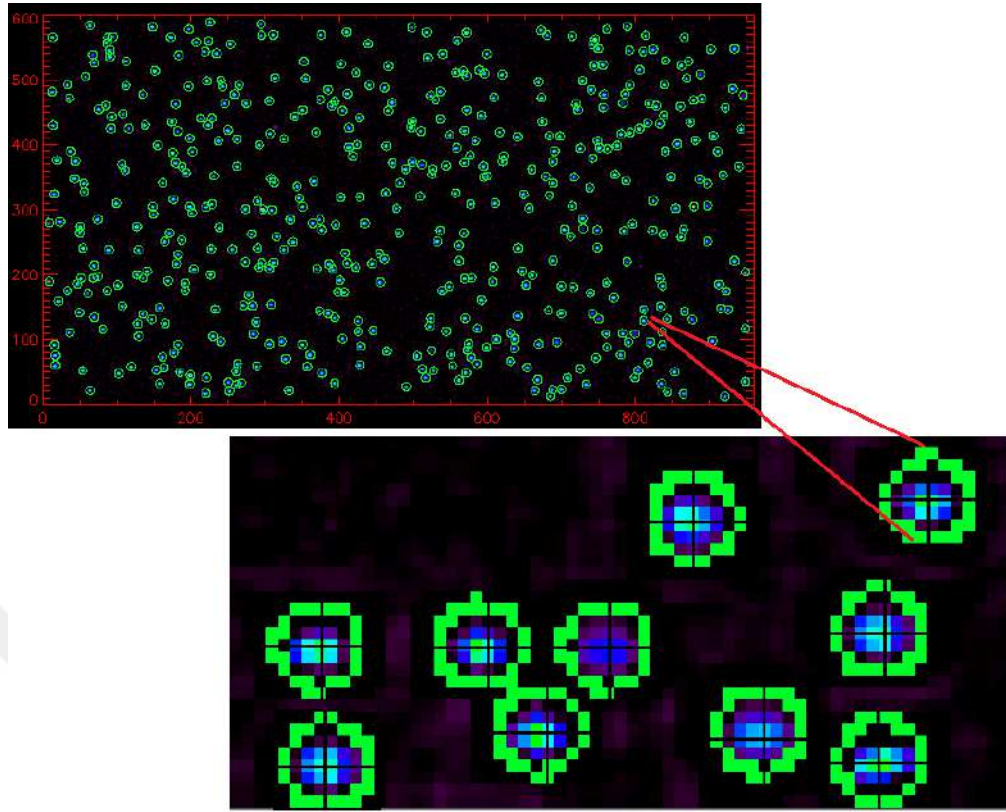
3.6.3. Parçacıkların parlaklık merkezinin bulunması

Koloit parçacıkların konumları tespit edilirken seçilmiş parçacıklara geçirilen Gauss maskesi ile her bir parçacık için parlaklık merkezleri bulunur. Bu parçacıkların konumlarını tespit ederken hatayı ortadan kaldırmak için Gauss maskesinin çapı tespit edilen parçacık çapının bir kaç piksel büyüklüğünde olmalıdır. Şekil 3.18’de seçilmiş PNIPAM parçacıklarının çapı 7 piksel iken oluşturulan Gauss maskesinin çapı 9 pikseldir. Konumları belirlenmiş parçacıklar için tüm görüntü bütünü de arka plan gürültüsü büyük ölçüde azaltılarak koloit parçacıklar parlak piksel değerlerinde gösterilmiştir.

Şekil 3.18’de üstteki görüntü filtrelenmiş PNIPAM parçacıklarını göstermektedir. Görüntü işleme kısmında belirtilen eksantrisite, parlaklık ve parçacık çapı analizi ile birlikte parçacık parlaklık merkezlerinin bulunması hatayı en düşük seviyeye indirerek, analizi yapılan görüntü bütünü üzerinden $g(r)$ çift korelasyon fonksiyonu hesaplanır.

3.6.4. Görüntü filtreleme

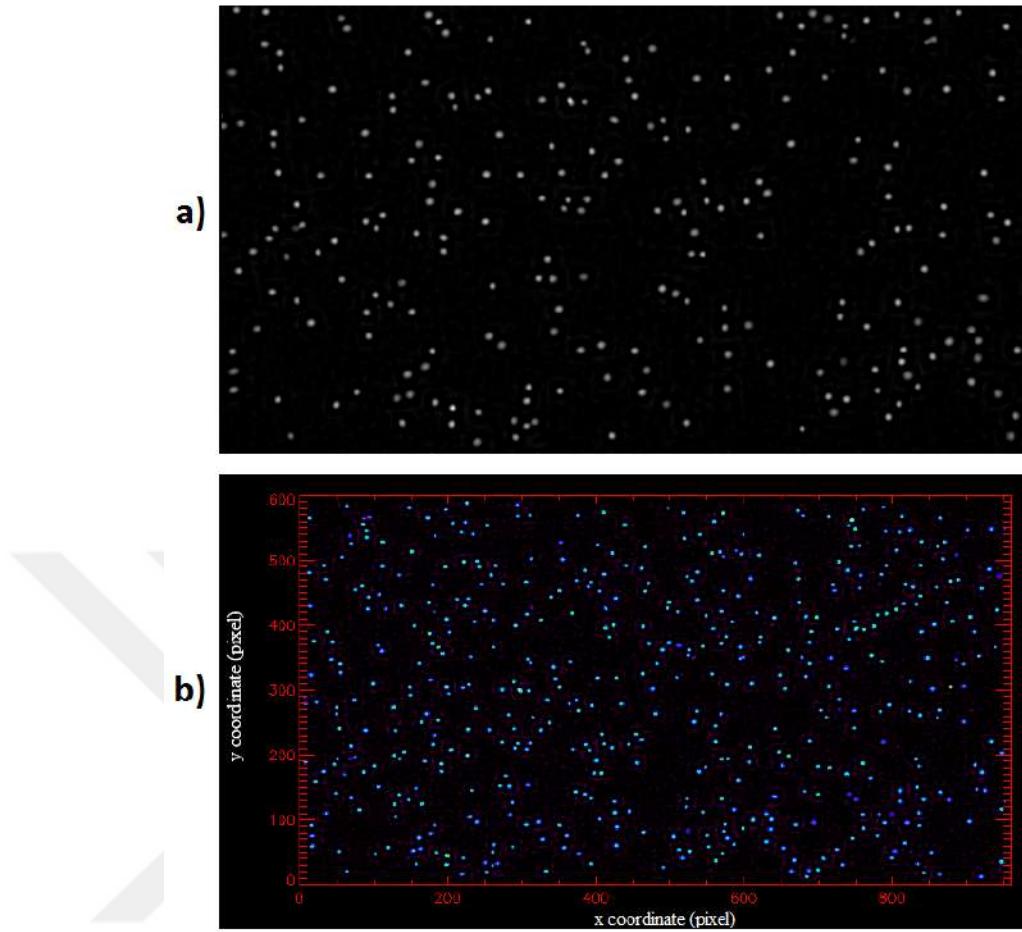
Sıvı süspansiyon içerisinde bulunan 1 μm çaplı PNIPAM küresel koloitlerin görüntüsü Leica DMI8 ışık mikroskobu ile video mikroskop tekniği ile kaydedilmiştir. Parçacık analizi kısmında elde edilen görüntü verileri ”tiff” formatında kaydedilerek, tek bir kayıt aşamasında 10.000 görüntü karesi alınarak toplamda 110.000 görüntü kaydedilmiştir. An-



Şekil 3.18. Konumları belirlenmiş koloit parçacıkların parlaklık merkezlerinin gösterimi.

cak alınan bu görüntüler, dijital ortama aktarılan piksel hatalarından dolayı bir dizi arka plan gürültüsü içerir. IDL aracılığı ile "tiff" formatında alınan bu veriler de arka plan gürültüsünü temizlemek için filtreleme tekniği uygulanır (Crocker 1996). Bu tekniği uygulamak, düşük yoğunluklu bir arka plan elde ederek koloit parçacıkların incelemesinde hata oranını azaltır.

$23^{\circ}C$ hücre içi sıcaklığında incelenen PNIPAM koloit parçacıklarının çapları 5-7 piksel aralığında gözlemlenmiştir. Şekil 3.19'un a kısmında işlenmemiş parçacık görüntüsü (renksiz), b kısmında filtrelenmiş görüntüden alınan veriler (renklendirilmiş), c kısmında ise arka plan yoğunluğu düşürülmüş Gauss maskesi ile (9 piksel) merkez parlaklıkları arttırılmış parçacıklar gösterilmiştir.



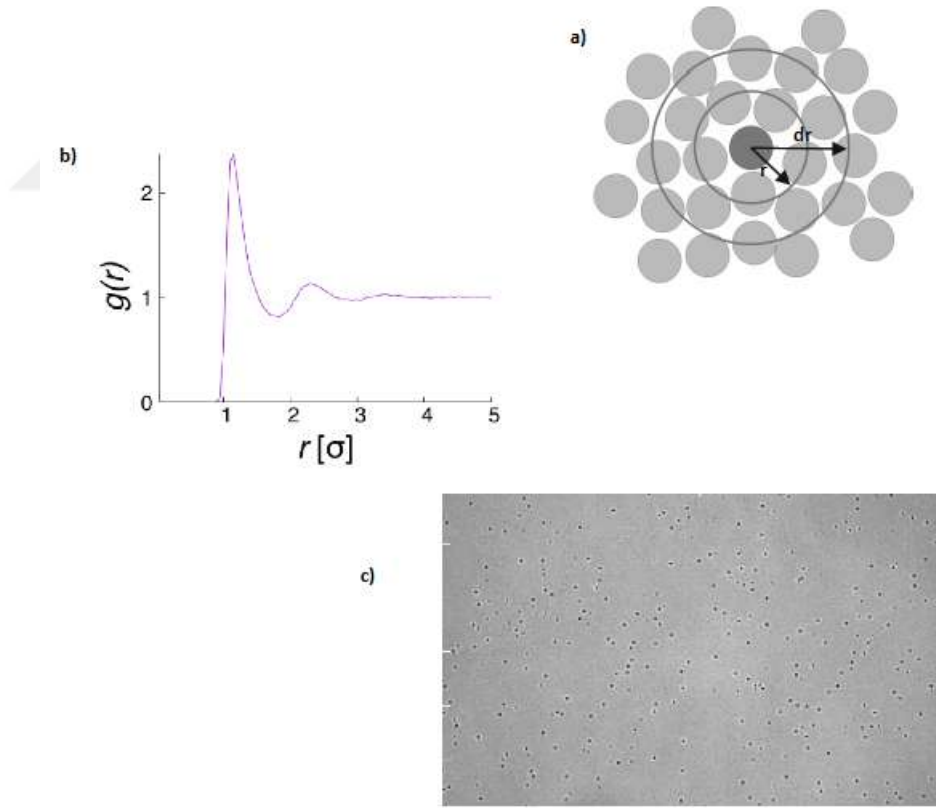
Şekil 3.19. 1 μm çapındaki sıvı süspansiyon içinde bulunan PNIPAM koloit parçacıklarının görüntüsü. a) Dijitalleştirilmiş kusurlu görüntünün renksiz hali. b) Dijitalleştirilmiş kusurlu görüntünün renkli hali

Filtreleme işlemi kullanılarak tek bir parçacık için yapılan bu işlemler tüm görüntü üzerine uygulanarak arka plan gürültüsünün minimuma indirildiği düşük yoğunluklu arka plan üzerinde parçacıklar için daha parlak pikseller elde edilmiştir. Filtreleme tekniği, parçacık konumlarını piksel altı hassasiyetle bulmak için de önemli bir nokta teşkil eder.

4. BULGULAR VE TARTIŞMA

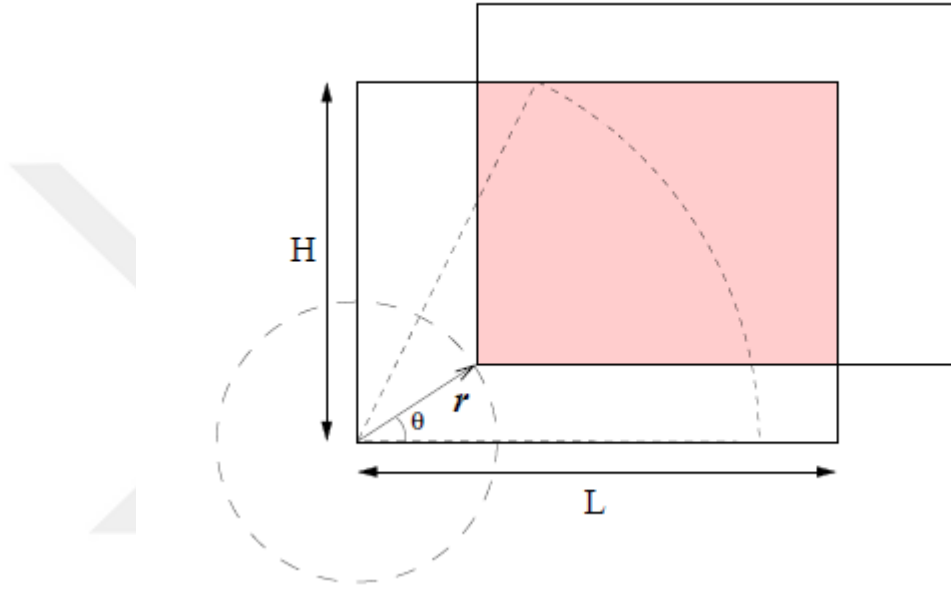
4.1. Çift Korelasyon Fonksiyonu Hesaplama

Sıvı süspansiyon ortamındaki koloit parçacıklar arasındaki etkileşim potansiyel enerjisi, parçacık süspansiyonlarının denge yapısından belirlenebilir. Merkezi koloit parçacığından belirli mesafelerde komşu parçacıkları bulma olasılığını gösteren iki boyutlu radial dağılım fonksiyonu çift korelasyon fonksiyonu olarak da adlandırılır. Şekil 4.20.a'da merkezde bulunan bir parçacıktan r kadar mesafede komşu parçacıklar gösterilmektedir. r mesafede dr kalınlığındaki halka içinde bulunan parçacıkların sayısı belirlenir ve bu işlem bütün r mesafeleri ve parçacıklar için gerçekleştirilir. Sonunda ortalama bir değer alınarak şekil 4.20.b'deki $g(r)$ 'nin r 'ye bağlı olan dağılımı elde edilir. Bu hesaplama yöntemi Şekil 4.20.c'deki elde edilen görüntüde uygulanmıştır.



Şekil 4.20. a)Koloit parçacıkların dağılımı b) $g(r)$ fonksiyonunun r 'ye göre değişimi c)PNIPAM parçacıklarının mikroskop altındaki görüntüsü

Başlangıç noktası olarak merkezi parçacığa sahip sıvı bir yapıdaki parçacıklar ve koordinasyon küresini orijinden biraz uzakta, r 'yi temsil eden eşmerkezli dairelerle birlikte, $g(r)$ 'nin gösterilmiştir. Deney düzeneğimizde görüntü alanı içerisinde yaklaşık olarak 300 parçacık bulunmuştur. Tek bir görüntüden elde edilen $g(r)$ dağılımı istatistiksel olarak yeterli değildir. Dolayısıyla bu verilerin güvenilirliğini arttırmak için yaklaşık olarak 110.000 görüntü karesi alınmış ve analiz edilmiştir.

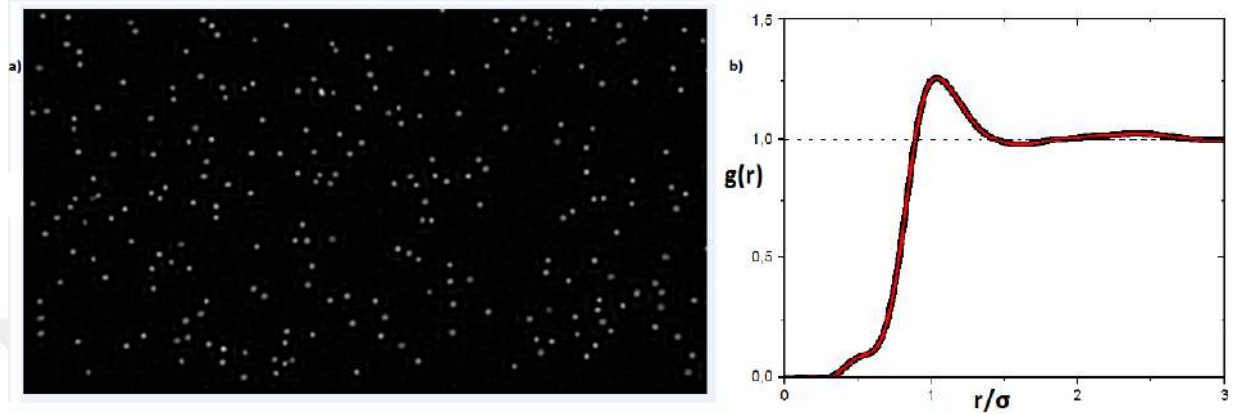


Şekil 4.21. H yüksekliği ve L genişliğindeki bulunan görüntü için taralı bölge, $g(r)$ 'nin hesaplanmasında kullanılmıştır (Han 2003)

Şekil 4.21'deki gibi H yüksekliği ve L genişliğindeki görüntü karesinin kenarlarında bulunan parçacıklardan elde edilen $g(r)$ çift korelasyon fonksiyonu verileri, görüntünün tam ortasında yer alan parçacıklara nazaran çift korelasyon fonksiyonuna olan etkisi daha azdır. Bundan dolayı taralı bölgede bulunan alandaki parçacıkların hesaba katılması gerekmektedir (Han 2003).

Teorik olarak, çift korelasyon fonksiyonu $g(r)$, parçacık sayısının sıfıra yaklaştığı limitte etkileşim potansiyel enerjisi ile Boltzmann dağılımı aracılığı ile ilişkilendirilebilir, $\lim_{n \rightarrow 0} g(r) = \exp[-u(r)/k_B T]$. Deneysel şartlar altında, etkileşim potansiyel enerjisini doğru bir şekilde hesaplamak için, çoklu parçacık etkileşimini hesaba kat-

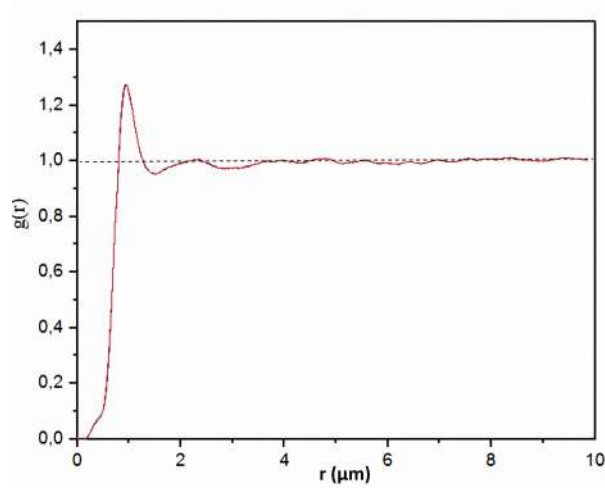
mak gerekmektedir ve etkileşim potansiyel enerjisi yerine kuvvet potansiyeli, $w(r)$ yazılır: $u(r) : g(r) \sim \exp[-w(r)/k_B T]$. Ornstein-Zernike integral teoremini kullanarak kuvvet potansiyelinden, $u(r)$ etkileşim potansiyeli enerjisini çıkarımı 2.bölümde anlatıldığı gibi gerçekleştirilmiştir.



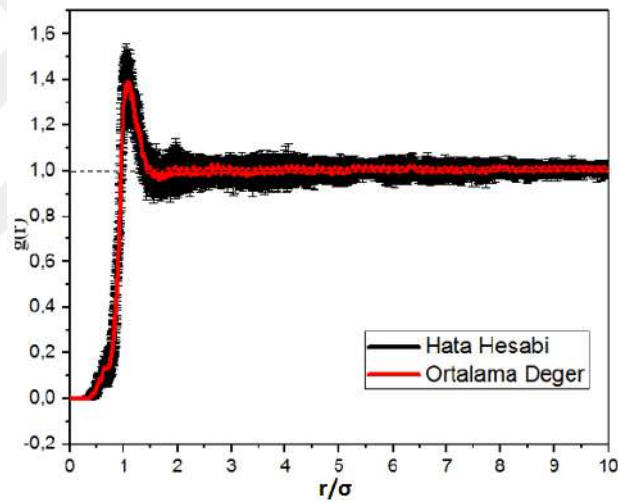
Şekil 4.22. a) Bant geçiş filtresi uygulanmış tek bir görüntü b)PNIPAM parçacıklarından oluşan koloit süspansiyonda ölçülen çift dağılım fonksiyonu grafiği

Bant geçiş filtresi uygulanmış görüntülerden bir kare Şekil 4.22.a'da gösterilmiştir. Bunun gibi 110.000 görüntü karesinden elde edilmiş çift korelasyon fonksiyonu ölçüm sonucu Şekil 4.22.b'de gösterilmiştir. Bu grafikte x eksenini parçacıklar arası mesafenin, parçacık büyüklüğüne bölünmesiyle normalize edilmiştir. Yaklaşık olarak x eksenini değeri 1 olduğunda $g(r)$ değeri maksimuma ulaşmaktadır. x değeri yaklaşık 1.5 iken, $g(r)$ değerinin 1'den biraz daha az olduğu gösterilmiştir. x ekseninin 3'den büyük olduğu değerlerde $g(r)$ değeri 1'dir.

Şekil 4.23'de 110.000 görüntü karesi ile ölçülen $g(r)$, çift korelasyon fonksiyonunun, r değerlerine bağlı grafiği gösterilmektedir. $g(r)$ değerinin maksimuma ulaştığı değer x ekseninde yaklaşık olarak $1.5 \mu\text{m}$ 'ye denk gelmektedir. x eksenin $10 \mu\text{m}$ 'den büyük olduğu yerlerde $g(r)$ değeri 1'e yaklaşır.



Şekil 4.23. 110.000 görüntü karesi üzerinden hesaplanan PNIPAM parçacıklarından oluşan koloit süspansiyonun çift dağılım fonksiyonu $g(r)$

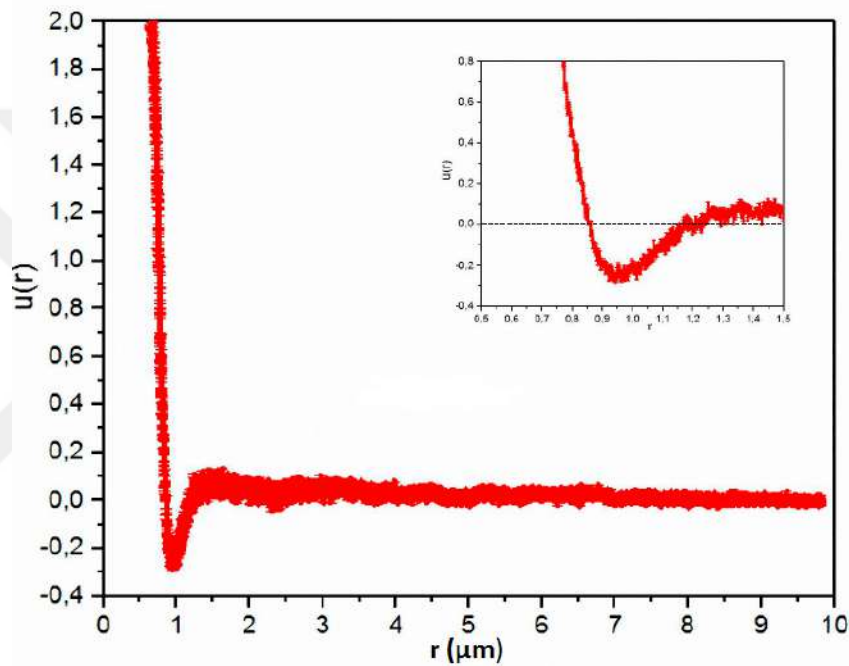


Şekil 4.24. 0.89 μm çapındaki PNIPAM koloit parçacıklarının radyal dağılım fonksiyonu ve hata hesabı gösterilmiştir

Şekil 4.24’de yaklaşık 1 μm çapındaki küresel koloit parçacıkların, çift korelasyon fonksiyonunun ortalama değer ve hata hesabı verilmiştir. PNIPAM parçacıklarının yoğunluğu $n\sigma^2 : 0.071$ ’dir. Buradaki n , görüntüdeki ortalama parçacık sayısı, σ ’da parçacık yarıçapıdır. 0.071 değeri ise toplam parçacık alanının toplam görüntü alanına oranıdır. x eksenini 1.2 olduğunda çift korelasyon fonksiyonu en yüksek değeri almaktadır.

4.2. Etkileşim Potansiyeli $u(r)$ Ölçümü

Etkileşim potansiyel enerjisi $u(r)$ için sonuçlar Şekil 4.25 'de görülmektedir. PNIPAM koloit parçacıklarının yumuşak itici etkileşimlere sahip olmasına rağmen, deneylerimiz AAc'nin polimer ağına dahil edilmesinin yalnızca malzemenin kimyasını değil, aynı zamanda mikrojellerin fiziksel davranışını da değiştirdiğini doğrulamaktadır. Şekil 4.25'de yaklaşık $-0.3 k_B T$ değerinde parçacıklar arası çekim kuvveti görülmüştür. Etkileşim potansiyel enerjisinin sıfıra yaklaştığı durumda parçacıklar arası mesafe artmaktadır.



Şekil 4.25. $H=2 \mu\text{m}$ hücre kalınlığı, $0.89 \mu\text{m}$ çapındaki PNIPAM koloit parçacıklarının etkileşim potansiyel enerjisi ve büyütülmüş hali

Bu tezde, PNIPAM koloit parçacıklarının yüzey yükleri ihmal edilebilir düzeydedir. Çekici etkileşim durumlarına asıl katkının AAc grupları arasındaki hidrojen bağından geldiği sonucu kuvvetlidir. Çekici etkileşimlerin görünüşte uzun menzilli olması, kullanılan koloit parçacık hidrodinamik yarıçapı ve mikrojellerin yüzeyinden sarkan polimer zincirlerinin varlığı ile açıklanabilir. İtici davranış ise, PNIPAM koloit parçacıkları arasında elektrosterik itme sağlayan, yüzeyden çıkıntı yapan yüklü, sarkan zincirlerin varlığında beklenir.

Şekil 4.25’de $0,85 \mu\text{m} - 1,2 \mu\text{m}$ mesafelerinde parçacıklar arası çekim kuvveti görülmüştür. Parçacıklar arası mesafenin $0,95 \mu\text{m}$ olduğu durumda etkileşim potansiyel enerjisi yaklaşık $-0,3 k_B T$ değerindedir. Etkileşim potansiyel enerjisinin sıfıra yakınsadığı durumlarda parçacıklar arası mesafe yüksektir. Bu kapsamda, video mikroskop yöntemini kullanarak PNIPAM koloit parçacıkları arasındaki etkileşim potansiyel enerjisi, $u(r)$ doğrudan ölçülmüştür. 110.000 görüntü karesi için çift korelasyon fonksiyonu hesaplanarak, görüntü kareleri bütünü üzerinden çift korelasyon fonksiyonu, $g(r)$, kullanılarak etkileşim potansiyel enerjisi $u(r)$ hesaplanmıştır.



5. SONUÇLAR

Bu tezde, sentezlenmiş $1\ \mu\text{m}$ çapındaki PNIPAM parçacıklarının çift korelasyon fonksiyonu ve etkileşim potansiyeli deneysel video mikroskop yöntemi ile ölçülmüştür. Birbirine ve yüzeye yapışmayan parçacıkların cam lamel arasında iki boyutlu hareketinden oluşan görüntü karelerinden toplamda 110.000 tane kaydedilmiştir. Her bir görüntü karesinde koloit parçacıkların konumları görüntü analizi yöntemleri ile piksel altı hassasiyette elde edilmiştir. Elde edilen parçacık konum verilerinden çift korelasyon fonksiyonu hesaplanmıştır.

Teorik yaklaşımlarda parçacık sayısının sıfıra doğru yakınlığı durumlarda çift korelasyon fonksiyonu $g(r)$, etkileşim potansiyeli $u(r)$ ile doğrudan ilişkilendirilebilir. Ancak deneysel verilerde görüntü karesi içinde yaklaşık olarak 200 tane parçacık bulunmaktadır. Yoğun çözeltilerde iki parçacık arası etkileşim potansiyeli, etrafındaki parçacıklardan etkilenmektedir. Çoklu parçacık etkisini hesaba katan Ornstein-Zernicke bağintıları, Hypernetted-Chain ve Percus-Yevick integral yaklaşımlarıyla bu etkiler en aza indirilmiş ve sonuç olarak $u(r)$ etkileşim potansiyeli hesaplanmıştır.

Elde edilen $u(r)$ etkileşim potansiyelinde, parçacıklar arası mesafeler $0.85\ \mu\text{m}$ ile $1.2\ \mu\text{m}$ aralığında olduğunda, parçacıklar arası çekim kuvveti görülmüştür. Parçacıklar arası mesafenin $0.95\ \mu\text{m}$ olduğu durumda etkileşim enerjisi yaklaşık $-0.3\ k_B T$ değerindedir. Parçacık arası mesafe arttıkça etkileşim enerjisi sıfıra doğru yakınsamaktadır. PNIPAM parçacıkları arasında bulunan bu çekici etkileşimler van der Waals ve elektrostatik etkileşim ile uyum halindedir. PNIPAM hidrojelinde bulunan amid grupları arasındaki hidrojen bağları, izopropil grupları arasındaki hidrofobik etkileşimler elde edilen etkileşim potansiyelini sonuç vermiş olabilir.

Tezde kullanılan görüntü analiz yöntemleri, koloit parçacıklarının aydınlık seviyelerini Gauss fonksiyonuna fit ederek piksel altı hassasiyette bulmaktadırlar. Parçacıklar yan yana geldiklerinde ışığın girişiminden dolayı aydınlık seviye dağılımları değişebilmektedir. Dolayısı ile yan yana gelen parçacıkların konumlarında bir sapma olabilmektedir. Her ne kadar parçacıkların yan yana gelme durumları daha az sıklıkta meydana

gelse de bu durumların düzeltilmesi gerekebilir. Bu düzeltme ile parçacık arası etkileşimler etkilenebilir ve literatürdeki çalışmalarda etkileşim potansiyellerinde görülen çekim durumlarının azaldığı görülmüştür. Tezde yapılan çalışmalarda bu sapmanın azaltılması ve düzeltilmesi için ek analizler yapılabilir ve hali hazırdaki sonuçlar ile karşılaştırılabilir.

Etkileşim potansiyeli parçacıklar arası kararlı mesafeleri belirleyerek, koloit süspansiyonlarının faz durumlarını doğrudan etkilemektedir. Bundan dolayı etkileşim potansiyellerini daha iyi hesaplamak, daha hassas ve belirleyici ölçümler yapmak önem arz etmektedir. Etkileşim potansiyel araştırmaları, atomik kuvvet mikroskobu ile yapılan tek molekül çalışmalarında da yapılmaktadır. Tezde koloit parçacıklar arasında ölçülen etkileşim potansiyeli çalışmaları, diğer alanlarda farklı ölçüm yöntemleri ile yapılan benzer araştırmaları da desteklemektedir.

6. KAYNAKLAR

- Ackerson, Paulin, S.E., Johnson, B. J, Megen, W. ve Underwood, S. 1999. *Crystallization by settling in suspensions of hard spheres. Physical Review E. 59(6): p. 6903-6913.*
- Acuna, Carbaja, M. D. , Tinoco, J. L. Arauz, L., ve Medina N. 1998. *Phys. Rev. Lett. 80, 5802.*
- Allen ve Tildesley, D. J. 1990. *Computer Simulation of Liquids. Clarendon Press, Oxford.*
- Banchio, Nägele, G., ve Bergholtz, J. 2000. *J. Chem. Phys. 113,3381.*
- Behrens, Plewa, J. ve Grier, D. G. 2003. *Measuring a colloidal particle's interaction with a surface under nonequilibrium conditions, Euro. Phys.*
- Biben, Bladon, P. ve Frenkel, D. 1996. *J. Phys.: Condens. Matter, 8:10799.*
- Brown, R. 1828. *The philosophical magazine ve annals of philosophy. (4): 161-73.*
- Butler, B. D., Ayton, G. O. , Jepps, G. ve D. J. 1998. *Configurational temperature profile in confined fluids. I. Atomic fluid. The Journal of Chemical. Physics, 109: 6519. Cambridge.*
- Chandrasekhar 1961. *Hydrodynamic ve Hydromagnetic Stability Clarendon Press, Oxford.*
- Chaikin ve Lubensky, T. C. 1995. *Principles of Condensed Matter Physics, Cambridge University Press, Cambridge.*
- Chialvo, Simonson, J. M. , Cummings, P. T. ve Kusalik, P. G. 2001. *J. Chem. Phys. 114, 6514.*
- Crocker 1996. *J. C. Phd. thesis. Probing colloidal interactions with digital video microscopy and blinking optical tweezers. The University of Chicago, page 158.*
- Crocker, J. C., Grier, D. G. 1994. *Microscopic measurement of the pair interaction potential of charge-stabilized colloid. Phys. Rev. Lett, 73, 352-355.*

- Dhont 1996. *An Introduction to Dynamics of Colloids* Elsevier, Amsterdam.
- Doi ve Edwards, S.F. 1986. *The Theory of Polymer Dynamics* Clarendon Press, Oxford.
- Epstein ve Hirschfelder, J. O. 1961. *J. Chem. Phys.* 123, 1495.
- Durian, D. J., Weitz, D. A., Pine, D. J. 1991. *Multiple light-scattering probes of foam structure and dynamics. Science*, 252: 686-88.
- Fermigier ve Gast, A. P. 1992. *J. Colloid Interface Sci.* 154, 522.
- Finlayson, S. D., Bartlett, P. 2016. *Non-additivity of pair interactions in charged colloids. Journal of Chemical Physics*, 145.
- Fisher 1964. *Statistical Theory of Liquids* University of Chicago Press, Chicago.
- Fuchs, Schweizer, M., K. S. 2002. *J. Phys : Condens. Matter*.
- Gaertner, Luxen, R. , Blechert, B., Jordan, R. ve Essler, M. 2007. *Synthesis, biodistribution and excretion of radiolabeled poly(2-alkyl-2- oxazoline), J.Control. Release.*, 119:291.
- Gençaslan, A. 2017. *Peptit jellerin viskoelastik özelliklerinin pasif mikröreoloji yöntemi ile incelenmesi. Yüksek Lisans Tezi, Akdeniz Üniversitesi, Antalya.*
- Gennes 1979. *Scaling Concepts in Polymer Physics* Cornell University Press, Ithaca.
- Glendinning ve Russel, W.B. 1982. *J. Colloid Interface Sci.* 89, 124.
- Goodstein, D. L.1985. *States of matter. Dover Publications, Mineola, New York*, 500.
- Gray ve Powles, J. G. 1984. *Theory of Molecular Fluid* Oxford University Press, Oxford.
- Han, Y. ve Grier, D. G. 2003. *Confinement-induced colloidal attractions in equilibrium. Phys. Rev. Lett.* 91: 038302.
- Han, Y. 2003. *Colloidal electrodynamics, electrohydrodynamics and thermodynamics in confined geometries. The University of Chicago*, page 154.
- Happel ve Brenner, H. 1991. *Low Reynolds Number Hydrodynamics. Kluwer, Dordrecht.*

- Jeffrey ve Onishi, Y. 1984. *J. Fluid. Mech.* 139, 261.
- Jennings ve Stankiewicz, M. 1990. *Proc. Roy. Soc. London* 427, 321.
- Keller, G.B. 2019. *Mikrojellerde Katı-Sıvı Faz Geçiş Dinamiklerinin Video Mikroskop Yöntemiyle İncelenmesi. Yüksek Lisans Tezi, Akdeniz Üniversitesi, Antalya.*
- Kepler, G. M., Fraden, S. 1994. *Attractive potential between confined colloids at low ionic strength.*
- Korda 2002. *Ph.d. thesis, The University of Chicago.*
- Kose, A., Ozaki, M., Takano, K., Kobayashi, Y., Hachisu, S. 1973. *Electrical phenomena at interfaces, Fundamentals, measurements and applications. J. Colloid Int. Sci*, 44: 330-8.
- Langevin, P. 1908. *On the theory of Brownian Motion. C. R. Acad Sci*, 146: 530-533.
- Larsen, A. E. ve Grier, D. G. 1997. *Like-charge attractions in metastable colloidal crystallites. Nature International of Science*, 385, 230-233.
- Leahy, B.D ve Cohen, I. 2018. *Quantitative light microscopy of dense suspensions. Colloid science at the next decimal place*, 34, 32-46.
- Lide ve Frederikse, H. P. R. 1994. *CRC Handboob of Chemistry and Physics, CRC Press, Boca Raton, FL.*
- Lowen, Madden, P. A. ve Hansen, J.-P. 1992. *Phys. Rev. Lett.*, 68:1081.
- Mahanty ve Ninham, B.W. 1976. *Dispersion Forces, Academic Press, New York.*
- McQuarrie, D. A. 2000. *Statistical Mechanics. University Science Books, Mill Valley.*
- Nagele 1996. *Phys. Rep.* 272, 215-372.
- Natalia, Stoychev, G. , Puretskiy, N. , Leonid, I. 2015. *Porous thermo-responsive pNI-PAM microgels.Pages* 650-656.
- Overbeck, Sinn, Ch. ve Watzlawek, M. 1999. *Phys. Rev. E* 60, 1936.

- Perrin, J. 1913. *Les Atomes. Paris: Librarie Felix Alcan. Phys. Rev. Lett*, 73: 356-59.
- Pieranski, P. 1983. *Contemporary Physics*, 24: 25-73.
- Popov, J. 2002. *Colloid Interface Sci.* 252, 320.
- Prausnitz, J. M. Lichtenthaler, R. N. de Azevedo, E. G. 1996. *Molecular Thermodynamics of Fluid-Phase Equilibria*, 3rd ed.; Prentice-Hall PTR: Upper Saddle River, New Jersey.
- Pusey, Poon, W.C.K., Ilett, S.M. ve Bartlett, P. 1994. *Phase-Behavior and Structure of Colloidal Suspensions. Journal of Physics-Condensed Matter*:6: p. A29-A36.
- Ramakrishnan, S. , Fuchs, M., Schweizer, K. S., Zukoski , C. F. 2002. *J. Chem. Phys.*
- Russel, W. B., Saville, D. A. ve Schowalter, W. R. 1989. *Colloidal dispersions, cambridge monographs on mechanics and applied mathematics. Cambridge University Press*.54: 2
- Ruths, M., Yoshizawa, H., Fetters, L. J., Israelachvili, J. N. 1996. *Macromolecules*.
- Sader ve Chan, D. Y. C. 1999. *J. Colloid Interface Sci.* 213, 268.
- Spielman, Friedlander, L. A. 1974. *Role of the Electrical Double Layer in Particle Deposition by Convective Diffusion. Journal of Colloid and Interface Science*.
- Stiles, Regan, P.J. 1998. *J. Colloid Interface Sci.* 202, 562.
- Squires ve Brenner, M. P. 2000. *Phys. Rev. Lett.* 85, 4976.
- Tej, M. K., Meredith, J. C. 2002. *J. Chem. Phys.*
- Thomas, H., Morfill, G. E., Demmel, V., Goree, J., Feuerbacker, B., Moehlmann, D. 1994. *Complex (dusty) plasmas-kinetic studies of strong coupling phenomena. Phys. Rev. Lett*, 73: 652-55.
- Van de Ven, T. G. M. 1989. *Colloidal hydrodynamics. Academic Press, London and New York*, pp 582.

- Vondermassen, K., Bongers, J., Mueller, A. ve Versmold, H. 1994. *Brownian motion: A tool to determine the pair potential between colloid particles. Phys. Rev. Lett, 10: 1351-1353.*
- Yavuz, M. S., Buyukserin, F., Zengin, Z., Camli, S. T. 2011. *Thermoresponsive oligo (ethylene glycol) methacrylate colloids with antifouling surface properties. J Polym Sci Part A: Polym Chem, 49: 4800–4808.*
- Zahn, G., Maret, R. C. ve von Grunberg, H. H. 2003. *Phys. Rev. Lett. 91, 115502.*
- Watzlawek ve Nagele, G. 1999. *J. Colloid Interface Sci. 214, 170.*
- Weesie, Philipse, A.P., Nägele, G., Mandl, B. ve Klein, R. 1995. *J. Colloid Interface Sci. 176, 43.*

ÖZGEÇMİŞ

NAİM TUNA TOKSÖZ

ÖĞRENİM BİLGİLERİ

Yüksek Lisans	Akdeniz Üniversitesi
2017-2021	Fen Bilimleri Enstitüsü, Fizik Bölümü, Antalya
Lisans	Akdeniz Üniversitesi
2011-2016	Fen Fakültesi, Fizik Bölümü, Antalya