ELEKTRİK EĞİRME YÖNTEMİNİ KULLANARAK NANOFİBERLERİN ELEKTRİK ALAN İLE YÖNLENDİRME OLASILIĞININ ARAŞTIRILMASI

INVESTIGATING THE POSSIBILITY OF REDIRECTING NANOFIBERS BY USING ELECTRICAL FIELD WITH ELECTROSPINNING TECHNIQUE

Gökay KARAYEĞEN

Başkent Üniversitesi Lisansüstü Eğitim Öğretim ve Sınav Yönetmeliğinin BİYOMEDİKAL Mühendisliği Anabilim Dalı İçin Öngördüğü YÜKSEK LİSANS TEZİ olarak hazırlanmıştır.

2016

"Elektrostatik Eğirme Yöntemini Kullanarak Nanofiberlerin Elektrik Alan İle Yönlendirme Olasılığının Araştırılması" başlıklı bu çalışma, jürimiz tarafından, 13/01/2016 tarihinde, **BİYOMEDİKAL MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI 'nda YÜKSEK LİSANS TEZİ** olarak kabul edilmiştir.

Başkan(Danışman) : Doç. Dr. İ. Cengiz Koçum

Üye

: Doç. Dr. Mustafa Doğan

Üye

: Yrd. Doç. Dr. Cevat Erişken

ONAY

..../..../......

Prof. Dr. Emin AKATA Fen Bilimleri Enstitüsü Müdürü

TEŞEKKÜR

Sayın Doç. Dr. Cengiz Koçum'a, çalışmanın sonuca ulaştırılmasında ve karşılaşılan güçlüklerin aşılmasında her zaman yardımcı ve yol gösterici olduğu için teşekkürü bir borç bilirim. Eş danışmanım sayın Doç. Dr. Dilek Çökeliler'e her zaman bana yardımcı olup yol gösterdiği için teşekkür ederim. Ayrıca değerli katkılarından dolayı sayın Doç. Dr. Mustafa Doğan'a ve Öğr. Gör. Mehmet Yüksekkaya'ya teşekkürlerimi sunuyorum. Ek olarak, fikirleriyle bana yol gösteren ve tezimin tamamlanmasına katkı sağlayan Yrd. Doç. Dr. Cevat Erişken'e teşekkür ederim.

Tez çalışmalarım ve tez yazma sürecim boyunca beni sürekli motive eden ve destekleyen arkadaşlarım Berk Bora Çakır ve Tansel Uyar' a çok teşekkür ederim.

Son olarak, eğitim hayatım boyunca maddi ve manevi her türlü destekleriyle bugünlere gelmemde büyük emeği olan rahmetli babam Tuncay Karayeğen'e, annem Bilge Karayeğen'e ve ablam Gökçe Karayeğen'e her zaman yanımda oldukları ve bana inandıkları için teşekkürlerimi sunarım.

ELEKTRİK EĞİRME YÖNTEMİNİ KULLANARAK NANOFİBERLERİN ELEKTRİK ALAN İLE YÖNLENDİRME OLASILIĞININ ARAŞTIRILMASI

Gökay KARAYEĞEN Başkent Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Biyomedikal Mühendisliği Ana Bilim Dalı

Elektrostatik eğirme ile nanofiber üretimi, polimer çözeltisine uygulanan yüksek voltajın etkisiyle gerçekleşmektedir. Bu işlem ile oluşturulan nanofiberler, genellikle polimer jetinin kaotik hareketinden dolayı rastgele bir dizilim sergilemektedir.

Bu çalışmada, polimer jetinin kaotik uçuşunun bastırılması ve düzenli nanofiberlerin elde edilebilmesi için, boş silindirik iletken elektrotlar ve iletken paralel plakalar kullanılarak ikincil elektrik alanlar oluşturulmuştur. Çalışmanın ilk aşamasında herhangi bir elektrot ya da paralel plaka kullanılmadan klasik elektrostatik eğirme işlemi gerçekleştirilmiştir. Daha sonra, toplayıcı plakadaki fiber saçılım genişliğinin düşürülmesi için sisteme silindirik iletken elektrotlar eklenmiştir. Son aşamada ise, iletken paralel plakalar dâhil edilerek, toplayıcı plakadaki nanofiber diziliminin, örgü geometrisinde yönlendirilebilme olasılığı araştırılmıştır. Çalışma sonucunda, silindirik elektrotlar üzerindeki alanlar sayesinde, fiber saçılım genişliğinin azaltılması sağlanmıştır. Paralel plakalar aracılığıyla yaratılan elektrik alan sayesinde nanofiberlerin örgü geometrisinde düzenlenmesi için deneyler yapılmıştır. SEM (Taramalı Elektron Mikroskobu) fotoğraflarında fiber çaplarının 800 nm ile 3 µm arasında değiştiği görülmüştür. Son olarak görüntü üzerinden fiberler sayılıp, bulundukları doğrultudan sapma açıları hesaplanarak, herhangi bir açı yapmadan %37,5 oranında düzenlenme görülmüştür.

ANAHTAR SÖZCÜKLER: Elektrostatik eğirme, düzenli nanofiberler, saçılım

DANIŞMAN : Doç. Dr. İ. Cengiz Koçum, Başkent Üniversitesi, Biyomedikal Mühendisliği Bölümü.

EŞ DANIŞMAN : Doç. Dr. Dilek Çökeliler, Başkent Üniversitesi, Biyomedikal Mühendisliği Bölümü

ÖΖ

i

ABSTRACT

INVESTIGATING THE POSSIBILITY OF REDIRECTING NANOFIBERS BY USING ELECTRICAL FIELD WITH ELECTROSPINNING TECHNIQUE

Gökay KARAYEĞEN Başkent University Insitute of Science Depertmant of Biomedical Engineering

In order to produce nano-scaled fibers with electrospinning technique, high voltage applied to a polymer solution. Because of the chaotic movement of the polymer jet, nanofibers occur randomly on the collector.

In this study, a secondary electrostatic field is created by measurable length hollow cylinder electrodes to reduce the whipping instability of the polymer jet. In addition to this, conductive parallel plates are placed through the jet trajectory in order to investigate the possibility of redirecting nanofibers into the lattice structure. In the first stage of this study, a classic electrospinning approach without any electrodes is carried out. Secondly, in order to reduce the radius of fiber dispersion on the collector, conductive clylinder electrodes are added to the system. Finally, for investigating the possibility of redirecting nanofibers into a lattice formation, conductive parallel plates are incorporated into the system.

As a result, due to the electrical field on cylinder electrodes, radius of the fiber dispersion on the collector was successfully reduced. Furthermore, with the electrical field created by paralle plates, aligned nanofibers were produced. Diameters of the fibers varied between 800 nm and 3 μ m. Ratio of the aligned fibers is determined as %37.5.

KEYWORDS : Electrospinning, whipping instability, aligned nanofibers **ADVISOR :** Assoc. Prof. Dr. İ. Cengiz Koçum, Başkent University, Depertman of Biomedical Engineering

CO-ADVISOR : Assoc. Prof. Dr. Dilek Çökeliler, Başkent University, Depertmant of Biomedical Engineering

İÇİNDEKİLER LİSTESİ

	<u>S</u>	<u>ayfa</u>
Ö)Z	i
A	BSTRACT	ii
İÇ	ÇİNDEKİLER LİSTESİ	iii
ŞI	EKİLLER LİSTESİ	vi
Ç	ZELGELER LISTESI	viii
S	İMGELER VE KISALTMALAR LİSTESİ	ix
1	GİRİŞ	1
	1.1 Çalışmanın Amacı ve Kapsamı	1
2	GENEL BILGILER	2
	2.1 Nanofiberler	2
	2.1.1 Düzenlenmiş fiberlerin kullanım alanları	2
	2.2 Doku İskelesi	3
	2.2.1 Doku iskelesi yaklaşımları	3
	2.2.1.1 <u>Hücre ekimi için önceden hazırlanmış gözenekli doku</u>	
	<u>iskeleleri</u>	4
	2.2.1.2 <u>Hücre ekimi için allojenik ya da ksenogenik dokulardan</u>	
	hücresizleştirilen ECM(Hücre Dışı Matris)	5
	2.2.1.3 Kendiliğinden salgılanan ECM ile hücre kaplamaları	5
	2.2.1.4 Kendiliğinden oluşan hidrojel matkriks içinde hücre	
	<u>kapsüllenmesi</u>	5
	2.3 Elektrostatik Eğirme	6
	2.3.1 Elektrostatik eğirme yöntemiyle nanofiber düzenleme çalışmaları	7
	2.3.1.1 İletken plakalar kullanılarak nanofiberlerin düzenlenmesi	8
	2.3.1.2 Yardımcı silindirik elektrot ve paralel plakalı elektrotlar ile	
	nanofiberlerin düzenlenmesi	9
	2.3.1.3 Değiştirilmiş paralel elektrot(MPEM) metodu ile nanofiberl	<u>erin</u>
	düzenlenmesi	10
	2.3.1.4 İkincil alan kontrolü ile nanofiberlerin düzenlenmesi	12
	2.3.1.5 Haraketli toplayıcı plaka tasarımı ile nanofiberlerin	
	<u>düzenlenmesi</u>	13
	2.4 Elektro Eğirme Parametreleri	15
	2.4.1 Çözelti parametreleri	15

ı

4.1.3.4 Paralel plakalara uygulanan sinyallerin frekansı ve polimer			
<u>jetinin uçurulma süresi sabitken iğne ucuna uygulanan voltaj</u>			
	etkisi	48	
5 SONUÇ		54	
KAYNAKLAR LİSTE	SI	57	
EKLER LİSTESİ		59	

ŞEKİLLER LİSTESİ

	<u>Sayfa</u>
Şekil 2.1	Doku mühendisliğinde farklı doku iskelesi yaklaşımları3
Şekil 2.2	Basit bir elektrostatik eğirme düzeneği7
Şekil 2.3	A) İki adet iletken plakalı elektrostatik eğirme sistemi, B) Nanofiber gö-
	rüntüsü9
Şekil 2.4	A) Elektrostatik eğirme düzeneği, B) Nanofiber görüntüs10
Şekil 2.5	A) Elektrostatik eğirme düzeneği, B) Nanofiber görüntüsü11
Şekil 2.6	A) Saptırma plakalı elektrostatik eğirme düzeneği, B) Nanofiber SEM fotoğrafı
Şekil 2.7	A) Hareketli toplayıcı plaka elektrostatik eğirme sistemi, B) Fiber görüntüsü
Şekil 2.8	Programlanmış kare dalga şablonunun şematik gösterimi14
Şekil 2.9	Farklı tipteki toplayıcı plaklarda farklı formlarda nanofiber
	oluşumları
Şekil 3.1	Önerilen sistemin şematik çizimi23
Şekil 3.2	Deney metodu akış diyagramı24
Şekil 3.3	Yükselteç devre şeması25
Şekil 3.4	Yükselteç baskı devresi26
Şekil 3.5	Güç kaynağı bölümünün devre şeması27
Şekil 3.6	Elektrostatik eğirme düzeneği a) Çift silindirik elektrotlu düzenek b) Çift
	silindirik elektrot ve paralel plakalı düzenek
Şekil3.7	Silindirik elektrot kullanmadan oluşan nanofiber yayılım çapları29
Şekil 3.8	Tek silindir elektrotun fiber yayılım çaplarına etkisi
Şekil 3.9	Çift silindirik elektrotlu düzenekte voltajın fiber dağılım çapına etkisi31
Şekil 4.1	Yükselteç devresinin çıkışında görülen üçgen sinyal(1)33
Şekil 4.2	Yükselteç devresinin çıkışında görülen üçgen sinyal(2)33
Şekil 4.3	Silindirik elektrot ve paralel plakalar kullanılmadan yapılan deney a)1000x
	büyütme b) 5000x büyütme c) 10000x büyütme34
Şekil 4.4	Elektrot kullanılmadan elde edilen fiber çap dağılımları

	Şekil 4.5 Voltaj azalışının etkisi SEM görüntüleri
ın azalmasıyla	Şekil 4.6 Çift silindirik elektrot kullanılarak yapılan dene
37	elde edilen fiber çapı dağılımları
38	Şekil 4.7 Voltajın ortalama çapa etkisi
	Şekil 4.8 Polimer konsantrasyonunun etkisi
ı ile yapılan	Şekil 4.9 Yönlendirme deneylerinde farklı polimer konsa
40	deneyler sonucu elde edilen fiberlerin çap dağ
41	Şekil 4.10 Polimer konsantrasyonunun ortalama çaplara
42	Şekil 4.11 Voltaj sabit(4.9 kV) süre sabit(10 sn) frekans
n fiber dağılım	Şekil 4.12 Yönlendirme çalışmalarında farklı frekanslarc
43	çapları
a çapa	Şekil 4.13 Paralel plakalara uygulanan sinyal frekansla
44	etkisi
45	Şekil 4.14 Voltaj sabit(4.9 kV) frekans sabit(5 kHz) süre
ар	Şekil 4.15 İşlem süresinin düzenlenme deneylerinde ol
46	dağılımları
47	Şekil 4.16 İşlem süresinin ortalama çaplar üzerindeki e
48	Şekil 4.17 Süre sabit(10 sn) frekans sabit(5 kHz) voltajı
49	Şekil 4.18 Yönlendirme deneylerinde voltajın fiber çapla
49	Şekil 4.19 İğne ucuna uygulana voltajın ortalama çapla
50	Şekil 4.20 Paralel plakaların etkisi SEM görüntüleri
lde edilen fiber	Şekil 4.21 Çift silindirik elektrot ve paralel plakalı deney
51	çap dağılımları
52	Şekil 4.22 Düzenek tipinin ortalama çaplara etkisi
53	Şekil 4.23 Fiberlerin düzenlenme yüzdeleri

ÇİZELGELER LİSTESİ

		<u>Sayfa</u>
Çizelge 2.1	Nanofiber düzenleme çalışmalarının karşılaştırılması	8
Çizelge 2.2	Elektrostatik eğirme parametreleri	15

SİMGELER VE KISALTMALAR LİSTESİ

PVA	Polivinilalkol
PÜ	Poliüretan
PA	Poliamid
ICPs	İletken Polimerler
SEM	Taramalı Elektron Mikroskobu
ECM	Hücre Dışı Matriks
PVP	Polivinilpirolidon
°C	Santigrad
kV	Kilovolt
mm	milimetre
μm	mikrometre
KH2PO4	Monopotasyum fosfat
NaCl	Sodyum klorür
PLA	Polilaktit
PCL	Polikaprolakton
PGA	Poliglikolik asit
MSCs	Mezenkimal kök hücreler
cm	santimetre
V	Volt
sn	saniye
kHz	Kilohertz
ms	milisaniye
g	gram
Vpp	Genlik
Hz	Hertz
nm	nanometre

1.GİRİŞ

Nanofiber teknolojisi, yanık ve yara bakımı, organ onarımı ve çeşitli hastalıkların tedavisi gibi biyomedikal alanındaki mevcut zorlukların aşılması için potansiyel bir çözüm olarak birçok araştırmacının ilgisini çeken heyecan verici bir alandır[1]. Günümüzde nanofiber üretimi için, çekme yöntemi, kalıp sentez yöntemi, faz ayrımı yöntemi ve elektrostatik eğirme (Electrospinning) yöntemi gibi birçok farklı teknik kullanılmaktadır [2]. Bu teknikler arasında nanofiber üretiminde en etkin yöntem elektrostatik eğirmedir. Bu yaklaşım ile üretilen nanofiberler, elektronikten tekstile kadar geniş uygulama alanlarına sahiptir [3].

Elektrostatik eğirmenin, nanofiber üretiminde kullanılması ilk olarak 1930'lu yıllarda Anton Formhals tarafından gerçekleştirilmiştir. Daha sonra bu alanda, Reneker et al.[4] tarafından yapılan çalışmalarda, farklı polimer türlerinden fiberlerin üretilmesi başarılı bir şekilde gerçekleştirilmiştir. Uygulanan elektrik alandan kaynaklanan kuvvetler aracılığıyla sentetik ya da biyopolimerlerden küçük çaplara sahip fiberlerin üretilebildiği görülmüştür. Kesitsel şekillerde ve farklı uzunluklardaki fiberlerin oluşturulması sağlanmıştır. Üretilen fiberlerin tarım, medikal, kompozit ve diğer alanlardaki uygulamaları araştırılmıştır [4].

1.1 Çalışmanın Amacı ve Kapsamı

Elektrostatik eğirme tekniğiyle nanofiber üretimi, bir polimer çözeltisinin yüksek gerilim altında toplayıcı bir plakaya doğru hareketiyle gerçekleşmektedir. Ancak, üretilen nanofiberlerin dizilimi genellikle rastgele oluşmaktadır. Yapılan çalışmanın amacı, elektrostatik eğirme düzeneği ile düzgün dağılımlı nanofiberlerin sentezlenmesi ve bu yapıların medikal olarak sağlık teknolojisinde kullanılabilmesi amacıyla nanofiberlerin dizilimlerini geometrik bir şekilde oluşturabilmesidir. Düzenli yapıda nanofiberlerin elde edilebilmesi için işaret üreteci tarafından üretilen sinyaller aracılığıyla elektrik alan yaratılmıştır. Çalışmanın kapsamında, i) klasik elektrostatik eğirme sistemiyle herhangi bir elektrotlar eklenerek, toplayıcı plakada oluşan fiberlerin saçılım genişliklerinin düşürülmesi sağlanmış, son aşamada ise, iii) polimer jetinin uçuş yörüngesinde yerleştirilen paralel plakalar ile fiberlerin yönlendirme çalışmaları yapılmıştır.

1

2.GENEL BİLGİLER

2.1 Nanofiberler

Birçok nanomalzeme ile kıyaslandığında, nanofiberler sıradışı özelliklere sahiptirler. Çünkü doğal biyolojik dokulara benzerlik göstererek, birçok uygulamada faydalı olabilecek fiber yapılarının içinde kullanılabilirler. Biyomedikal uygulamalarda nanofiberler birçok sebepten ötürü ilgi çekmektedir. Hücreler, proteinler ve ilaçlarla gelişmiş yapışma imkanı sağlayan yüksek yüzey alanı ve enerjisine sahiptirler. Ayrıca, esneklik gibi nanofiber yapılarının özellikleri çok geniş kapsamda uyarlanabilir. Çok sayıda polimer türü farklı uygulamalarda kullanılmak üzere elektrostatik eğirme ile nanofiberlere dönüştürülebilir [1].

Nanofiberlerin yüksek mekanik özelliklere sahip olması, bu yapıların birçok uygulamada tercih edilme sebebidir. Ancak, elektrostatik eğirme ile üretilen nanofiberlerin sıralı ya da düzenli bir yapıda oluşturulması, klasik nanofiberlere mekanik özellikler açışından avantaj sağlamaktadır. Düzenlenmiş nanofiberler kasdoku mühendisliği, polimerik doku iskeleleri, yara kapatma malzemeleri, biyotıp ve yüksek seviye filtrasyon sistemleri gibi alanlarda kullanılmaktadır [5].

2.1.1 Düzenlenmiş nanofiberlerin kullanım alanları

Düzenli nanofiber yapılar, dikişler ve ilaç salınımı uygulamaları dahil olmak üzere biyomedikal alanında birçok uygulamada kullanılabilir. Ancak, bu düzenlenmiş yapılar için en umut verici kullanımlardan biri doku mühendisliği ve doku oluşturma uygulamalarıdır. Sinir, kan damarları, iskelet kası ve kemik gibi dokular yüksek dercede sıralanmış fibriller ya da diğer sıralı protein nanofiberleri içermektedir. Kusursuz olarak düzenlenmiş bu yapılar, dokular için gerekli özelliklerin sağlanması açısından çok önemlidir. Bu dokular hasar görür ya da bozulursa, fonksiyonlarının iyileştirilmesi için müdahale edilmesi gerekmektedir. Düzenlenmiş nanofiber doku mühendisliği yaklaşımı kullanılarak sıralı dokuların yenilenmesi birçok doku tipinde uygulanabilir. Bunlar sinirsel, damar, iskelet kası, kemik, kıkırdak, bağ doku ve tendon olarak sayılabilir. Yüksek derecede düzenlenmiş doğal ya da sentetik polimerik nanofiberler, yerel doku ile aynı olan sıralı yapılar ile yenilenmesi amacıyla, hücreler için matris yapısını oluşturmak için üretilir [6].

2.2 Doku İskelesi

İnsan vücudu hiyerarşik bicimde düzenlenmiş kompleks bir yapıdadır. İnsan vücudu sistemlerden, sistemler organlardan, organlar dokulardan, dokular ise hücreler ve hücre dışı matristen (ECM) oluşmaktadır. Hücre dışı matris, hücreler için üç-boyutlu bir mikro çevre oluşturmaktadır. Hücre dışı matris (ECM) hücrelere fiziksel bir destek sağlamasının yanı sıra hücre-hücre ve hücre-materyal etkileşimlerini organize etmekte ve hücrelerin yapışması, göçü, çoğalması, farklılaşması ve matris birikimi için çeşitli biyokimyasal ve biyofiziksel uyarıları yapmaktadır. [7].

Doku mühendisliğinin temel bileşenlerinden biri olan doku iskeleleri, hücreler için uygun yapışma yüzeyi oluşturmalarının yanı sıra, mekanik dayanım sağlamakta, fizyolojik ve biyolojik değişikliklere cevap vermek için çevre doku ile etkileşiminin kurulmasına yardımcı olmakta; ayrıca gerçek hücre dışı matrisin yeniden oluşumuna katkıda bulunmaktadır [7].

2.2.1 Doku iskelesi yaklaşımları

Polimerik biyomalzemelerden elde edilen doku iskeleleri, hücre bağlanmaları ve bir sonraki doku gelişimi için yapısal destek sağlarlar. Son 20 yıllık süreçte, doku mühendisliği için dört farklı doku iskelesi yaklaşımı gelişmiştir [8].



Şekil 2.1 Doku mühendisliğinde farklı doku iskelesi yaklaşımları [8]

2.2.1.1 Hücre ekimi için önceden hazırlanmış gözenekli doku iskeleleri

Parçalanabilir biyomalzemelerden oluşan önceden hazırlanmış gözenekli doku iskelelerinde iyileştirici hücrelerin ekimi, en çok kullanılan ve belirleyici olan bir doku iskelesi yaklaşımı olmuştur. Bu yaklaşım, doku mühendisliğinde biyomalzeme araştırmalarının büyük bir kısmını temsil etmektedir ve farklı türde biyomalzemlerin ve üretim teknolojilerinin gelişiminde çok önemli çalışmalara ışık tutar [8].

Genel olarak, doku mühendisliği için hazırlanan doku iskelelerinde kullanılan biyomalzemeler, kaynaklarına göre doğal ve sentetik olmak üzere 2 kategoride sınıflandırılabilirler. Doğal olarak meydana gelen biyomalzemeler, kendi doğal kaynaklarından elde edilebilir ve gözenekli doku iskeleleri oluşturmak için işlenebilir. Doğal biyomalzemeler genellikle yüksek biyouyumluluğa sahiptir ve bu sayede hücreler mükemmel yaşama yeteneğiyle bağlanabilir ve gelişebilir [8].

Sentetik biyomalzemeler genel olarak inorganik ve organik olarak sınıflandırılabilir. Sentetik biyomalzemelerin daha iyi kontrollü fiziksel ve mekanik özellikleri olduğu düşünülür ve hem yumuşak hem de sert dokular için uyarlanarak kullanılabilir [8].

Önceden hazırlanmış gözenekli doku iskelesi yaklaşımının bir takım avantajları vardır. Öncelikle bu yaklaşım biyomalzemeler için çeşitliliği en fazla olan tercihtir. Seramikten hidrojellere kadar tüm biyomalzemeler uygun üretim teknolojilerine sahiptir. Ek olarak, doku iskelelerinin yapı olarak nispeten kusursuz tasarımları ve mikro yapıları bu yaklaşım ile birleştirilebilir. Böylece, gözenekli doku iskelelerinin fiziko-kimyasal özellikleri kolaylıkla tasarlanabilir. Ancak bu yaklaşımın aynı zamanda dezavantajları da vardır. Özellikle, gözenekli doku iskelelerine üretim sonrası hücre ekimi zaman alıcıdır ve doku iskelelerinin içine hücrelerin nüfuz etme kabiliyetinin sınırlı olmasından dolayı etkisizdir [8].

2.2.1.2 <u>Hücre ekimi için allojenik ya da ksenogenik dokulardan</u> <u>hücresizleştirilen ECM(Hücre Dışı Matris)</u>

Allojenik (aynı türün genetik bakımdan farklı bireyleri) ya da ksenojenik (farklı bir türden elde edilen) dokulardan işlenmiş ECM, temsili olarak en doğal doku iskelesidir ve kalp kapakçıkları, damarlar, sinirler, tendon ve bağ dokular dâhil olmak üzere doku mühendisliğinde kullanılan yapılardır. Bu yaklaşım, dokulardan allojenik ve ksenojenik hücresel antijenleri kaldırır ve ECM bileşenlerini korur. Bu bileşenler türler arası korunur ve böylece immünolojik açıdan tolere edilebilirler. Özelleşmiş hücresizleştirme teknikleri, hücresel bileşenleri yok etmek için geliştirilmiştir ve bu durum genellikle fiziksel, kimyasal ve enzimsel metotların kombinasyonu ile yapılır [8].

2.2.1.3 Kendiliğinden salgılanan ECM ile hücre kaplamaları

Hücre kaplama mühendisliği, hücrelerin birleşme noktası üzerinde kendi ECM'lerini salgıladığı bir yaklaşımı temsil eder ve enzimsel metotlar kullanılmadan toplanır. Bu, sıcaklığa duyarlı bir polimer üzerinde hücrelerin kültüre edilmesi ile gerçekleştirilir. Birleşen hücre kaplaması daha sonra enzimsel işlem olmadan polimer tabakalarının hidrofobikliğinin ısısal açıdan düzenlenmesi ile ayrılır [8].

2.2.1.4 Kendiliğinden oluşan hidrojel matkriks içinde hücre kapsüllenmesi

Kapsülleme, yarı geçirgen bir membranın sınırları içerisinde ya da homojen katı bir kütle içerisindeki canlı hücrelerin yakalanması sürecidir. Kapsülleme için kullanılan biyomalzemeler genellikle hidrojellerdir ve suda çözünen polimerlerin kovalent ya da iyonik çapraz bağlanmalarıyla oluşmaktadır. Doğal ve sentetik hidrojeller de dahil olmak üzere biyomalzemelerin bir çok tipi, kapsülleme için kullanılabilir ve hidrojel dizilimini ya da canlı hücrelerle uyumlu polimerizasyonu tetiklemek için gerekli koşulları sağlar [8].

2.3 Elektrostatik Eğirme

Elektrostatik eğirme tekniğinin kökeni 20.yüzyılın başlarına dayanmasına rağmen, son 20 yıllık süreçte hücre-matriks etkileşimindeki yapısal özelliklerin öneminin kavranması, bu tekniğe olan ilgiyi yenilemiştir [9]. Polimer esaslı nanofiberlerin üretimi için en etkin yöntemlerden birisi elektrostatik eğirme yöntemidir. Elektrostatik eğirme, akışkanlar dinamiği, polimer kimyası, temel fizik, elektrik fiziği, makine ve tekstil mühendisliği disiplinlerini barındıran disiplinler arası bir yöntemdir.

Elektrostatik eğirme tekniği, yüksek elektrik alandan faydalanarak çapları nanometre ile mikrometre arasında değişen çok ince polimerik fiberlerin üretilmesini sağlar. Elektrostatik eğirmenin mekanizması, polimer çözeltisi ve elektrostatik kuvvet arasındaki kompleks bir elektro-fiziksel aktiviteye dayanır. Bu prosedürde, yüksek voltaj elektrik alanı, güç kaynağı ve elektrotlar kullanılarak enjeksiyon iğnesi ile toplama plakası arasında ayarlanır. Polimer çözeltisi şırıngadan yavaşça geçerken, yarı küresel polimer çözeltisi damlacığı iğnenin uç kısmında oluşur. Artan voltaj ile birlikte, yüklenmiş polimer damlacığı Taylor konisi olarak bilinen konik formu oluşturmak için uzar ve polimer damlacığındaki yüzey yükü zamanla artar. Yüzey yükü polimer damlacığının yüzey geriliminden kurtulduğu zaman, polimer uçuşu gerçekleşir [10].

Elektrostatik üretim için gerekli deney düzeneği temel olarak üç önemli ana parçadan oluşmaktadır (Şekil 2.2). Yüksek voltaj güç kaynağı, besleme ünitesi(şırınga, metal iğne vb.) ve toplayıcı(iletken plaka, silindir vb.) bu düzeneğin en önemli bileşenleridir.

Elektrostatik eğirme ile elde edilen liflerin morfolojisi, 4 temel ayarlanabilir parametreden büyük ölçüde etkilenir: a) polimer çözeltisinin şırıngaya akış hızı, b) polimer çözeltisinin derişimi, c) iğne ucuna uygulanan voltaj ve d) toplayıcı plaka ile iğne ucu arasındaki çalışma mesafesi [11].



Şekil 2.2 Basit bir elektro eğirme düzeneği [12]

Son zamanlarda, özel enjektör sistemleri, yardımcı ekipman, yönlendirici elektrotlar ve fonksiyonel hedef elektrotları da dahil olmak üzere, yeni elektro eğirme tekniklerinin gelişimi için esnek olan ve fırsatlar sunan fiber malzemelerine giderek büyüyen bir gereksinim vardır [11].

2.3.1 Elektrostatik eğirme yöntemiyle nanofiber düzenleme çalışmaları

Doku mühendisliği, ilaç salınımı, güçlendirme çalışmaları, membranların filtrelenmesi, opto-elektronik cihazlar ve benzeri gibi elektrostatik eğirme uygulama alanlarının genişletilmesi için düzenli dağılımlı nanofiberlerin üretilmesi önemlidir [6]. Literatürde yer alan önemli nanofiber düzenleme çalışmalarından bazıları Tablo 2.1' de karşılaştırılmıştır. Bu yaklaşımlar, düzenleme mekanizması ve düzenleme türü açısından farklılık göstermektedirler.

Yazar ve Yıl	Düzenleme Mekanizması	Kullanılan Polimer ve Cözücü	Değerlendirme	Düzenleme Türü
Li et al 2004 [13]	İletken plakalar ile nanofiber düzenlenmesi	PVP(polivinilprolidon) , Etanol	Fiber çapları:200 nm Aralık: 5-30 µm	Çok katmanlı düzenleme
Kim et al 2005 [14]	Yardımcı silindirik elektrot ve paralel elektrotlar ile nanofiber düzenlenmesi	PCL(polikaprolakton), MC(Metilen klorid) ve DMF(Dimetil formamid)	Fiber çapları:400 nm- 3 µm	Tek yönlü düzenleme
Zhao et 2015 al[15]	Değiştirilmiş paralel elektrot metodu ile nanofiber düzenlenmesi	PAN(poliakrilonitril), DMF(Dimetil formamid)	Fiber çapları: 100-200 nm	Tek yönlü düzenleme
Walser et 2015 al[16]	Saptırma plakaları kullanılarak ikincil alan kontrollü nanofiber düzenlenmesi	PCL(polikaprolakton), MeOH(Metanol) ve CHCl3(Kloroform) karışımı (1:6)	Fiber çapları: 1.92 ile 2.07 µm	Açılı düzenleme
Hochleitn er 2016 et al[17]	Silindirik elektrot ve hareketli toplayıcı plaka ile nanofiber düzenlenmesi	poli(2-etil-2- oksazolin),	Fiber çapları: 8- 138 µm Aralık : 50-150 µm	Örgü yapılı düzenleme
Brown 2011 et al [18]	Hareketli toplayıcı plaka ile nanofiber düzenlenmesi	PCL(polikaprolakton),	Fiber çapları: 5- 20 µm Aralık: 25 µm	Örgü yapılı düzenleme

Çizelge 2.1 Nanofiber düzenleme çalışmalarının karşılaştırılması

Tablo 2.1' de karşılaştırılan düzenleme çalışmaları ışığında, bu çalışmada elektrostatik eğirme yöntemi kullanılarak harici elektrik alan ile fiberler düzenlenerek bir örgü yapısı oluşturulmaya çalışılmıştır.

2.3.1.1 İletken plakalar kullanılarak nanofiberlerin düzenlenmesi

Düzenlenmiş nanofiberlerin elde edilmesi için geleneksel elektrostatik eğrime yaklaşımı değiştirilmiştir. Nanofiberlerin yönlendirilmesi için, aralarında yalıtım boşluğu bulunan iki iletken çubuk toplayıcı plaka olarak kullanılmıştır. Bu çalışmada,

yüksek yalıtkanlığa sahip malzemeden yapılmış bir boşluk ve herhangi bir malzeme kullanılmadan ayarlanan boşluk olmak üzere 2 farklı yaklaşım gerçekleştirilmiştir. Şekil 2.3A' da , boşlukla ayrılmış iki parça iletken çubuk içeren toplayıcı plakanın bulunduğu elektrostatik eğirme düzeneğini göstermektedir. İletken çubuklar arasındaki mesafe 100 mikrometre mertebelerinden birkaç cm'ye kadar değişkenlik göstermektedir [13].



Şekil 2.3 A) İki adet iletken plakalı elektrostatik eğirme sistemi, B) Nanofiber görüntüsü [13]

Çalışmada polimer olarak PVP(polivinilprolidon) kullanılmıştır. Elde edilen nanofiber çapları yaklaşık 200 nm değerlerinde olmuştur. Sonuç olarak, klasik toplayıcı plakanın 2 parçaya bölündüğü ve aralarına mesafe eklendiği bu sistemde nanofiberlerin düzenlemesi sağlanmıştır (Şekil 2.3B) [13].

2.3.1.2 Yardımcı silindirik elektrot ve paralel plakalı elektrotlar ile

nanofiberlerin düzenlenmesi

Tek taraflı yönlendirilmiş nanofiberlerin üretilmesi için, iğne ucuna bağlı yardımcı silindirik elektrot ve polimer jetinin toplanması için alternatif akımlı elektrik alan üreten, paralel plakalı toplayıcı elektrotlar kullanılmıştır. Bu çalışmada, düzenli dağılımlı nanofiberlerin elde edilebilmesi için elektrostatik eğirme metodu sunulmuştur. Sistem, iğne ucuna bağlı yardımcı bir elektrot ve alternatif akımlı

elektrik alan üreten alan kontrollü hedef elektrot olmak üzere 2 bölümden oluşmaktadır (Şekil 2.4A) [14].

Geon ve Kim'in kullandığı yaklaşımda, polimer olarak, 30 g metil klorit içinde 2.4 g PCL (polikaprolakton) hazırlanmıştır. Nanofiberler, PET (polietilenterftarat)' ten yapılmış ince bir film üzerinde toplanır. İğne ucunun etrafını çevreleyen ekstra silindirik elektrot, polimer çözeltisine sabit voltaj sağlar. Nanofiberlerin yönlendirilmesi ve toplanası için, paralel plaklara yüksek voltaj alternatif akımlı elektrik alanı uygulanır. İğne ucuna uygulanan voltaj ise 14 kV değerinde doğrusal akım uygulanır. İğne ucu ile toplayıcı plakalar arası mesafe 15 cm olarak sabitlenmiştir [14].



Şekil 2.4 A) Elektrostatik eğirme düzeneği, B) Nanofiber görüntüsü [14]

Elde edilen fiberlerin çapları 400 nm ile 3 µm arasında değişkenlik göstermiştir (Şekil 2.4B) [14].

2.3.1.3 <u>Değiştirilmiş paralel elektrot (MPEM) metodu ile nanofiberlerin</u> <u>düzenlenmesi</u>

Bu sistemde, yüksek derecede düzenlenmiş nanofiberlerin üretilebilmesi için, iğne ucu ile paralel elektrotlu toplayıcı plaka arasına, nanofiberlerin çap dağılımlarını ve dizilim açılarını geliştirmek için pozitif yüklenmiş bir halka yerleştirilmiştir [15]. Deneylerde, polimer olarak molekül ağırlığı 150.000 g/mol olan poliakrilonitril (PAN) %10 konsantrasyon ile dimetil formamitte çözülmüştür. Şırınga, iğne ucu, paralel elektrotlu toplayıcı plaka, akış ölçer ve 2 adet yüksek voltaj kaynağı sistemin temel bileşenleridir. İğne ucu birinci güç kaynağının pozitif terminaline, paralel elektrotlar aynı güç kaynağının negatif terminaline bağlanmıştır. İkinci yüksek voltaj kaynağının pozitif terminali ise çapı 18 cm olan bakır halkaya bağlanmıştır. İğne ucuna uygulanan voltaj 15 kV olarak ayarlanmıştır. Bakır halka ile paralel elektrotlar arası 5 cm ve paralel elektrotlar arası da 4 cm'dir [15].



Şekil 2.5 A) Elektrostatik eğirme düzeneği, B) Nanofiber görüntüsü [15]

Deneylerde ilk olarak, iğne ucu ile paralel elektrotlar arası 18 cm olarak ayarlanmıştır. Halkaya uygulanan voltaj 0 ile 7 kV arasında değiştirilmiştir. Nanofiber çapları halkaya uygulanan voltajın artması ile artış göstermiştir. Buna bağlı olarak en uygun halka voltajı 5 kV'ye getirilmiştir. Daha sonra, iğne ucu ile paralel elektrotlar arası 20 cm yapılmıştır. Halkaya uygulanan voltaj ise 5 kV değerinde sabitlenmiştir. Deneylerin sonuçlarında elde edilen nanofiberlerin çapları 100 ile 200 nm arasında değişmiştir. Halkaya uygulanan farklı voltaj değerlerinde meydana gelen nanofiberlerin SEM görüntüleri Şekil 2.5B' de görülmektedir. Sonuç olarak bu yöntem ile yüksek derecede sıralı nanofiberlerin üretilmesinin mümkün olduğu görülmüştür [15].

2.3.1.4 İkincil alan kontrolü ile nanofiberlerin düzenlenmesi

Walser ve Ferguson tarafından yapılan bu çalışmada, fiber yörüngesini direkt olarak kontrol edebilmek için, jetin uçuş yörüngesine, dikey bir şekilde dinamik, alternatif elektrik alan, saptırıcı plakalara uygulanmıştır. Farklı alan sinyal türleri, saptırıcı plaka voltajları ve saptırma frekans aralıkları araştırılmıştır. Polimer olarak PCL (polikaprolakton) kullanılmıştır. Nanofiberlerin en iyi düzenlenmesi düşük saptırma frekanslarında (2 Hz ile 10 Hz arasında) gözlenmiştir. Şekil 2.6A' da silindirik elektrotlar ve saptırma plakalarını içeren düzenek görülmektedir [16].

Deneyde kullanılan parametreler : İğne ucuna uygulanan voltaj (Uo) 26.5 kV, birinci silindirik elektrot voltajı 22.1 kV, ikinci silindirik elektrot voltajı 17.7 kV, iğne ucu ile toplayıcı plaka arası 17 cm, silindirik elektrotlar arası 2 cm, silindirik elektrotlar arasındaki dirençler (R1) 7 G Ω , paralel plakaların uzunluğu (Idefl) 7 cm, plakalar arası mesafe (ddefl) 12 cm, paralel plakalara uygulanan voltaj (Ud) 2 ile 6 kV arasında iken genlik (Vpp) 12 kV, paralel plakalara uygulanan voltaj 2 ile 8 kV arasında iken genlik 16 kV ve saptırma plakalarının frekans aralıkları 1-160 Hz, 0.5-10 Hz şeklindedir [16].



Şekil 2.6 A) Saptırma plakalı elektrostatik eğirme düzeneği, B) Nanofiber SEM fotoğrafı [16]

Yapılan deneylerin sonuçlarında, fiber çaplarının 1.92 ile 2.07 µm arasında olduğu ve çap arttıkça düzenlemenin daha iyi olduğu görülmüştür [16]. Şekil 2.6B'de elde edilen fiberlerin SEM görüntüleri mevcuttur.

2.3.1.5 Hareketli toplayıcı plaka tasarımı ile nanofiberlerin düzenlenmesi

Bu çalışmada, düzenli nanofibelerin elde edilebilmesi için, elektro-hidrodinamik çalışma prensibine dayanarak, mikormetre mertebelerindeki fiberler, bilgisayar destekli toplayıcı plaka tasarımına sahip bir elektrostatik eğirme düzeneğiyle üretilmiştir [17]. Şekil 2.11A'da elektrostatik eğirme düzeneğinin şematik çizimi görülmektedir.



Şekil 2.7 A) Hareketli toplayıcı plaka elektrostatik eğirme sistemi, B) Fiber görüntüsü [17]

Şekil 2.7A'da görülen elektrostatik eğirme sistemi; nitrojen gazı basınç destekli besleme sistemi (1), elektriksel ısıtma sistemi (2), yüksek voltaj kaynağı (3), bilgisayar destekli hareketli toplayıcı plaka(4) ve erimiş polimerin bulunduğu şırınga ve elektrotlu iğne ucu (5) olmak üzere 5 temel bileşenden oluşmaktadır. Şekil 2.6'da görülen sistemde önemli parametreler araştırılarak düzenli nanofiber üretimi için denenmiştir. Bu parametreler; ısıtıcı sıcaklığı (200-220 °C), besleme basıncı (1.0-3.0 bar), artan voltaj (3.0-7.0 kV) ve farklı boyutlardaki iğne uçlarına(23 G, 25 G, 27 G, 30 G) göre toplayıcı plaka mesafesidir (3.0-7.0 mm). Çalışmada yüksek erime sıcaklığına sahip hidrofilik bir polimer olan poli (2-etil-2-oksazolin) kullanılmıştır. Bu çalışmayla elde edilen fiberlerin çapları 8 µm ile 138 µm arasında değişkenlik gösterdiği görülmüştür ve Şekil 2.7B'de örnek bir mikroskop görüntüsü yer

almaktadır. Uygulanan parametreler: Isıtıcı sıcaklığı 210 °C, besleme basıncı 2.0 bar, uygulanan voltaj 4.0 kV şeklindedir [17].

Elektrostatik eğirme yöntemiyle nanofiber düzenleme çalışmalarından her biri, makul bir şekilde düzenli yapılar oluşturabilirken, fiberlerdeki yük toplamının etkileri, katman miktarında sınırlamalara sebep olabilir. Brown ve arkadaşları [18] yaptıkları çalışmada, fiberlerin çeşitli türlerinin tahmin edilebilir birikim pozisyonlarını, kontrol edilebilir yapılara ve düzenlere sahip doku iskeleleri tasarımına ve üretimine imkan sağlayan doğrudan yazılım oluşturmak için yan doğrultuda hareket eden toplama sistemi ile birleştirmişlerdir. Paralel çizgili fiberlerin üretilmesi için kare dalga şablonu kullanılmıştır. Şekil 2.8' de, polimer jetinin başarılı paralel çizgiler arasında ileri geri takip ederek dönmesini sağlayan kare dalga yaklaşımının her bir aşaması görülmektedir. Bu yaklaşım merkez karede, yaklaşık 1 mm kalınlığında boyutları 10 mm x 10 mm olan periyodik bir örgünün üretilmesini sağlar [18].



Şekil 2.8 Programlanmış kare dalga şablonunun şematik gösterimi (x-y yörüngesinde hareket eder) (Sc = Sürekli düz çizgi hızı, St = Dönme hızı) [18]

Sonuç olarak, Brown ve arkadaşları [18], otomatik bir platform kullanarak kompleks gözenekli yapılar oluşturmak için fiberler toplamıştır. Toplayıcı plakanın hızı ile polimer jetinin hızının eşleştirilmesi, anahtar faktördür. Çünkü, sürekli bir çizginin yazılabilmesi için fiber birikiminin konumu üzerinde kontrol imkanı sağlar [18].

2.4 Elektrostatik Eğirme Parametreleri

Elektrostatik eğirme işlemi bir takım değişken tarafından etkilenebilir. Bu parametreler; çözelti özellikleri, kontrol edilebilen değişkenler ve ortam parametreleri olarak sınıflandırılabilirler. Viskozite, iletkenlik, yüzey gerilimi, polimerlerin molekül ağırlığı gibi çözelti özellikleri arasında yer almaktadır. Çözelti özelliklerinin etkisinin yok sayılması oldukça zordur. Çünkü bir parametrenin değişmesi genel olarak diğer çözelti özelliklerini de etkilemektedir. Kontrol edilen değişkenler ise akış hızı, elektrik alan gücü, iğne ucu ile toplayıcı plaka arasındaki mesafe, iğne ucu tasarımı ve toplayıcı plakanın düzenlenmesi ile geometri olarak sayılabilir. Ortam parametreleri ise sıcaklık, nem ve hava hızıdır [19].

Çözelti Parametreleri	İşlen Parametreleri	Ortam Parametreleri
Konsantrasyon	 Voltaj 	Sıcaklık
 Molekül ağırlığı 	Akış hızı	• Nem
Viskozite	Toplayıcı plaka	Hava hızı
Yüzey gerilimi	 Şırınga ucu ile 	
 İletkenlik ve yüzey 	toplayıcı plaka	
yük yoğunluğu	arasındaki mesafe	

Çizelge 2.2 Elektrostatik eğirme parametreleri

2.4.1 Çözelti parametreleri

2.4.1.1 Konsantrasyon

Polimer çözeltisinin konsantrasyonu, elektrostatik eğirme işlemi boyunca fiber oluşumunda büyük bir rol oynar. Düşükten yükseğe olmak üzere 4 kritik konsantrasyon dikkate alınmalıdır [19,20].

- Konsantrasyon çok düşük iken polimerik nano parçacıklar elde edilecektir. Bu sırada, çözeltinin düşük viskozitesi ve yüksek yüzey gerilimlerinden dolayı elektro eğirme yerine elektro-sprey oluşur.
- Konsantrasyon biraz daha yükseldiğinde, boncuk yapı ve fiberlerin karışımı elde edilecektir.
- 3. Konsantrasyon uygun olduğunda, pürüzsüz nanofiberler elde edilebilir.

4. Konsantrasyon çok yüksek ise, nano-ölçekli fiberler yerine, sarmal şekilli mikro şeritler gözlemlenebilir.

2.4.1.2 <u>Molekül ağırlığı</u>

Polimerin molekül ağırlığı da elektrostatik eğirme ile elde edilen fiber morfolojilerinde önemli bir etkiye sahiptir. Prensipte, molekül ağırlığı çözeltilerdeki polimer zincirlerinin karışıklığını yansıtır. Moleküler ağırlık artırılarak pürüzsüz fiberler elde edilebilir. Molekül ağırlığı biraz daha artırıldığında mikro şeritler gözlemlenebilir. Ancak moleküller arası etkileşimler oligomerler tarafından desteklenebilirse elektrostatik eğirme için molekül ağırlığı her zaman etkili değildir [20].

2.4.1.3 Viskozite

Çözelti viskozitesi fiber morfolojisinin hesaplanmasında önemli bir unsurdur. Sürekli ve pürüzsüz fiberlerin çok düşük viskozitede elde edilemeyeceği kanıtlanmıştır ve çok yüksek viskozite ise çözeltiden jetlerin püskürtülmesinde zorluklara neden olmaktadır. Bu yüzden elektrostatik eğirme için uygun viskozitenin olması bir gerekliliktir. Genel olarak, çözelti viskozitesi, çözeltinin polimer konsantrasyonu değiştirilerek ayarlanabilir. Viskozite, polimer konsantrasyonu ve polimerik molekül ağırlığı birbiriyle ilişkili parametrelerdir [19,20].

2.4.1.4 Yüzey gerilimi

Yüzey gerilimi, çözeltinin çözücü karışımlarının fonksiyonu olarak elektro eğirme yönteminde oldukça önemli bir unsurdur. Yapılan araştırmalara göre, farklı çözücülerin farklı yüzey gerilimlerini ortaya çıkardığı görülmüştür. Konsantrasyonun düzeltilmesiyle, çözeltinin yüzey geriliminin azaltılması damlacık fiberlerin pürüzsüz fiberlere çevrilmesini sağlayabilir. Temel olarak, yüzey gerilimi, diğer koşulların hepsi ideal hale getirildiğinde elektro eğirmenin üst ve alt sınırlarını belirler [20].

2.4.1.5 İletkenlik/Yüzey yük yoğunluğu

Çözelti iletkenliğinin ya da yük yoğunluğunun artırılması daha az kürecikli daha düzgün fiberlerin üretilmesi için kullanılabilir. Genellikle, doğal polimerler genel olarak poli-elektrolitiktir ve iyonlar polimer jetinin yük taşıma kabiliyetini artırır ve bu

da elektrik alan altında yüksek gerilime sebep olur. Ek olarak çözeltinin elektriksel iletkenliği, KH2PO4 (Monopotasyum fosfat), NaCl (Sodyum klorür) ve benzerleri gibi iyonik tuzların eklenmesiyle ayarlanabilir. İyonik tuzların yardımı ile küçük çaplı nanofiberler elde edilebilir. Bazen yüksek çözelti iletkenliği, organik asitlerin çözücü olarak kullanımı ile elde edilebilir [19,20].

2.4.2 İşlem Parametreleri

2.4.2.1 <u>Voltaj</u>

Kontrol edilebilen değişkenler arsında en çok çalışılan parametrelerden biri uygulanan voltajdır. Yalnızca uygulanan voltaj eşik voltajından yüksek olduğunda, yüklü jetler Taylor konisinden uçuşa geçmeye başlar. Düşük voltajlarda damla iğne ucunda asılı kalır ve Taylor konisinden oluşacak olan jet küreciksiz bir eğirme üretir. Voltaj yükseldikçe, iğne ucundaki damlanın hacmi düşer ve Taylor konisinin geri çekilmesine sebep olur. Voltaj biraz daha arttırıldığında, jet iğne ucunun kenarında görünebilir bir Taylor konisi olmadan dolaşmaya başlar. Bu koşullar altında birçok tanecik yapısı gözlemlenebilir. Sonuç olarak voltajın oluşan fiberlerin çaplarına olan etkisinden söz edilebilir [20].

2.4.2.2 <u>Akış hızı</u>

Şırınganın içerisindeki polimer çözeltisinin akış hızı bir başka önemli işlem parametresidir. Genel olarak, polimer çözeltisinin polarizasyona yeterli zamanda ulaşması için düşük akış hızı tavsiye edilmektedir. Akış hızı çok yüksek olduğunda, ince çaplı pürüzsüz fiberler yerine kalın çaplı tanecikli fiberler oluşacaktır. Bu durum, toplayıcı plakaya ulaşmadan önce kısa kuruma süresi ve düşük germe kuvvetinden kaynaklanmaktadır [19,20].

2.4.2.3 <u>Toplayıcı plaka</u>

Elektrostatik eğirme işlemi sırasında toplayıcı plakalar genellikle yüklü fiberleri toplamak için iletken bir alt yapı görevi görür. Fiberlerin aktarılması ihtiyacı ile birlikte, çeşitli plakalar gelişim göstermiştir. Bu plakalar; a) tel örgü, b) pin, c) ızgara, d)paralel ya da ızgaralı çubuk, .e) dönen çubuklar ya da silindir, f) sıvı banyosu ve benzerleri (Şekil 2.9) [20].





2.4.2.4 Sırınga ucu ile toplayıcı plaka arasındaki mesafe

Toplayıcı plaka ile şırınga arasındaki mesafenin, fiber çapı ve morfolojisini etkilediği bilinmektedir. Kısaca mesafe kısa olduğunda, fiberler toplayıcı plakaya ulaşmadan önce katılaşmak için yeterli zamana sahip olmayacaklardır. Mesafe çok fazla olduğunda ise tanecikli fiberler elde edilebilir. Elektrostatik eğirme ile elde edilen fiberlerin önemli fiziksel özelliklerinden biri çözücüden gelen kuruluktur. Bu yüzden optimal mesafenin ayarlanması önemlidir [19,20].

2.4.3 Ortam Parametreleri

Nem, sıcaklık gibi ortam parametreleri de fiber çaplarını ve morfolojisini etkileyebilir. Sıcaklığı yükseltmek fiberlerin düşük çaplı oluşmasına sebep olur. Çapta gerçekleşen bu düşüş yüksek sıcaklıktaki polimer çözeltisinin viskozitesindeki azalmaya dayanmaktadır [20]. Düşük nem çözücünün tamamen kurumasına sebep olabilir ve çözücünün buharlaşma hızını arttırır. Nemin arttırılması, fiberlerin yüzeyinde küçük dairesel gözeneklerin oluşmasıyla sonuçlanır. Daha fazla nem artışı ise gözeneklerin birleşmesine neden olur [19,20].

2.5 Elektrostatik Eğirmenin Biyomedikal Uygulamaları

Elektrostatik eğirme, nanoteknoloji ve sıra dışı malzeme özelliklerine olan büyüyen ilgi yüzünden biyomedikal uygulamalar için daha çok kullanılan bir yöntem haline gelmiştir [21].

Bugüne kadar, yaklaşık olarak 100'den fazla doğal ve sentetik polimerler elektro eğirme yöntemiyle nanofiberlere çevrilmiştir. Kollajen, elastin, fibrinojen, alginatlar, polyester, poliüretan ve bunların karışımları en çok kullanılan malzemeler arasında yer almaktadır [21].

Biyolojik açıdan bakıldığında, neredeyse bütün insan dokuları ve organları nanofiber form ya da yapıdan depolanmıştır [22]. Kemik, kollajen, kıkırdak ve deri örnekler arasında yer almaktadır. Bunların hepsi, nanometre ölçekli, tekrar gruplaşan iyi organize olmuş hiyerarşik fiber yapılar tarafından sınıflandırılabilir. Bunun gibi, elektro eğirme ile üretilen polimer nanofiberlerle ilgili güncel araştırmalar, yoğun bir şekilde biyomedikal ürünlere odaklanmıştır. Doku mühendisliği, dokuların yeniden yapılandırılması ve yenilenmesinde otogref ve allogreflerin kullanılmasıyla belli bir süredir ümit verici bir alternatif olarak kabul edilmiştir. Bu yaklaşım, hastalanmış ya da zarar görmüş dokuların onarımı için hücreler, doku iskelesi biyomalzemeleri ve işaretlenmiş moleküllerden faydalanır. Ancak; yara kaplaması ve protezler gibi diğer uygulamalarda da öngörülmüştür [22].

Doku mühendisliği alanında elektro eğirme sisteminin kullanımı genel olarak şu esaslara odaklanır [23]:

 Doku iskelesi tipine, tekrar üretilecek olan doku tiplerine ve üretim sürelerine bağlı olan mekanik özellikler ve bozunum süresi açısından uygun biyomalzeme seçimi gerekmektedir. Bu durum, polilaktit (PLA), polikaprolakton (PCL), poliglikolik asit (PGA) gibi bilinen ve ticari olarak ulaşılabilir olan sentetik ve doğal biyomalzemler ile organizasyon, büyüme ve işlevsel dokuların oluşumu sürecinde hücrelerin farklılaşmasını yönlendirmek için tasarlanan özellikle sentezlenmiş yeni biyomalzemeleri kapsamaktadır.

 Hücre dışı matris yapısının taklit edilmesi için elektro eğirmenin değiştirilmesi, hücrelerin farklılaşmasını ve çoğalmasını sağlamaktadır.

Elektrostatik eğirme işlemi sırasında; voltaj, elektrotlar arasındaki mesafe, çözeltinin akış hızı gibi bir takım parametreler ve vizkosite, iletkenlik gibi polimer çözeltisinin özelliklerinin ayarlanması ile termo-plastik malzemelerin bir çoğu elektro eğirme işlemine dahil edilebilir. Mezenkimal kök hücreler (MSCs), nötr kök hücreler, keratinositler, kardiyomiyositler, kıkırdak hücreleri, endotel hücreleri gibi geniş hücre spektrumu, elektro eğirme ile elde edilen doku iskelelerine ekilebilir ve deri, kemik, kıkırdak nötr dokusu, kalp, kan damarları ve akciğer dokusu gibi hedef dokuların oluşturulması sağlanabilir [24].

Elektrostatik eğirme ile üretilen fiberlerin doku mühendisliğinde kullanımı, genellikle malzeme seçimi, fiber yönlendirmesi, gözeneklilik, yüzey değişimi ve doku uygulamaları da dâhil olmak üzere birkaç faktör içermektedir. Malzemelerdeki tercihler doğal ve sentetik olabilir ve ayrıca ikisinin hibrit karışımı mekanik ve biyolojik açıdan taklit edilebilir özelliklerinin en uygun kombinasyonunu sunabilir. Çözelti parametreleri değiştirilerek elde edilen doku iskelesinin fiber yönlendirmesi ve gözeneklilik boyutu, her bir uygulama için kontrol edilip en uygun hale getirilebilir. Nispeten yüksek doku iskelesi yüzey alanından dolayı, üretimden sonra doku iskelesinin yüzeyi, yüksek yoğunluklu biyo-aktif moleküller ile değiştirilebilir. Doku iskelesi özelliklerini kontrol edebilme yeteneği kadar malzeme seçimindeki esneklik sayesinde; doku iskeleleri, damar, kemik, sinir ve tendon/bağ dokusu dâhil olmak üzere farklı doku uygulamalarına uygulanabilir [25].

2.6 Mevcut Sorunlar ve Geleceğe Bakış

Elektrostatik eğirme yöntemiyle elde edilen nanofiber yapılarının sıra dışı özellikleri ve üretim kolaylığı, bu yöntemi doku iskeleleri üretimi için kullanışlı bir hale getirmektedir. Ancak, biyomedikal uygulamalar için bu yöntemden tamamen faydalanmak için üretim ve kalite kontrolü ile ilgili bir takım zorlukların üstesinden gelinmesi gerekmektedir. Elektrostatik eğirme mekanizmasının kapsamlı bir şekilde

anlaşılması önemlidir. Böylece araştırmacılar için nanofiber yapılarının düzgün çaplara ve morfolojiyle tekrar üretilebilir olmasına imkân sağlanabilir. Ayrıca çeşitli doku mühendisliği uygulamaları için gözenek büyüklüğü kontrolü de sağlanabilir. Biyomedikal uygulamalar için endüstriyel ortamda üretilen nanofiberler için, örnekten örneğe meydana gelebilecek değişkenliğin azaltılması, sterilliğin ve biyouyumluluğun korunması ve ürün güvenliğinin sağlanması adına iyi bir üretim pratiğiyle toplu bir şekilde üretilmeleri önem arz etmektedir [26].

3. MATERYAL VE METOT

Elektrostatik eğirme ile üretilen fiberler, kompozit malzemeler, doku iskeleleri ve membranların üretilmesi için geniş uygulama alanlarına sahiptir. Ancak elektro eğirme fiber üretim sistemlerinin, polimer jetinin karmaşık dağılımlarından dolayı meydana gelen kıvrılma kararsızlığı gibi birçok problemi vardır. Bu çalışmada, paralel plakalar ve boş silindirik iletken elektrotlar, polimer fiberlerinin kontrol edilebilir bir düzende oluşturulabilme olasılığının araştırılması için polimer jetin yörüngesine doğru yerleştirilmiştir. Uygun sürücü kaynak ile paralel elektrotlar, analog adreslemeye dayalı olarak toplayıcı plakada nanofiber düzeni için yönlendirme alanı üretebilir. Polimer jetin toplayıcı plakaya doğru olan yörüngesinin başlangıcından sıvı jeti etkileyen ikincil bir elektrik alan ile yüklenmiş moleküllerin kontrolü fikri alternatif bir metot olarak görülebilir. Harici bir elektrik alan tarafından yapılan yönlendirme, moleküllerin daha hızlı ve çok boyutlu ayarlanmasına izin verebilir. Bu çalışmada, nanofiber diziliminin kontrol edilebilmesi için uyarılmış polimer moleküllerinin elektrik alan yönlendirmesine dayalı orijinal bir elektrostatik eğirme metodu tanıtılmıştır [27].

Önerilen sistem iki bölümden oluşmaktadır:

- 1. Sarmal düzeni bastırmak için elektro eğirme sisteminin jet yörüngesine doğru yarı mesafede ölçülebilir uzunlukta boş bir silindirik elektrot yerleştirilir.
- 2. Toplayıcı plakadaki fiber düzenini yönlendirmek için paralel plakalı elektrotlar eklenir. Bu paralel elektrotlar zamanla değişen yönlendirme alanı oluşturmak için harici doğrusal olarak kontrol edilebilen bir yüksek gerilim kaynağı ile sürülür. Daha sonra bu yükselteç devrelerine gönderilecek olan sinyaller, işaret üreticiler aracılığıyla uygulanır.

Bu çalışma, sıralı nanofiberlerin üretilebilmesi için değiştirilmiş bir elektrostatik eğirme yöntemini sunmaktadır. Sistem temel olarak, şırınga, ölçülebilir uzunlukta silindirik bir elektrot ve polimer jetinin doğrultusunu yönlendiren alan kontrollü paralele plakalardan oluşmaktadır [27]. Önerilen elektro eğirme düzeneğinin şematik çizimi Şekil 3.1'de verilmiştir.



Şekil 3.1 Önerilen sistemin şematik çizimi

Yaklaşık 30 kV voltaj değerlerine kadar destekleyen yüksek voltaj kaynağı tarafından sağlanan yüksek voltaj şırınga ucuna uygulanır. Ayrıca genişliği 1 cm ve uzunluğu 10 cm olan paralel plakalar, silindirik elektrot ile toplayıcı plaka arasına yerleştirilmiştir. Silindirik elektrotların çapların Karatay [27]'nın yaptığı çalışmalar referans alınarak optimize edilmiştir.

Şekil 3.1'de görüldüğü gibi elektrostatik eğirme deneysel düzeneğinde 2 adet yükselteç, 2 adet sinyal jeneratörü ve yüksek voltaj kaynağı dahil olmak üzere bir çok ekipman kullanılmaktadır.

Deneyler sırasıyla, herhangi bir silindirik elektrot ya da iletken paralel plakalara kullanılmadan klasik elektrostatik eğirme düzeneğiyle, daha sonra sisteme silindirik iletken elektrotlar eklenerek ve son olarak silindirik elektrotlu düzeneğe paralel plakalar dahil edilerek fiberlerin düzenleme çalışmaları yapılmıştır. Farklı parametrelerin etkisinin araştırıldığı deney metodunu gösteren akış diyagramı Şekil 3.2' de görülmektedir.


Şekil 3.2 Deney metodu akış diyagramı

3.1 Deneyde Kullanılan Ekipmanlar

3.1.1 Yükselteçler

Bu çalışmada önerilen elektrostatik eğirme sisteminde yer alan paralel plakalara bağlı olan 2 adet yükselteç devresi temel olarak, harici bir elektrik alan yaratarak nanofiberlerin yönlendirilmesi ve 2 boyutlu bir şekilde gözlemlenmesi için kullanılmaktadır. Bu yükselteç devreleri, çıkışında yaklaşık olarak +250 V ve -250 V görülen güç kaynağı devreleri ile beslenmektedir. Şekil 3.3' de bahsedilen yükselteç devresinin şeması görülmektedir.



Şekil 3.3 Yükselteç devre şeması

Yükselteç çalıştığında, çalışma akımından dolayı dikkate değer bir ısı meydana gelir. Bu sebepten dolayı bütün transistörler soğutucu bir plakaya tutturulmuştur. Devrede bulunan LF356 op-amp'ı geleneksel fakat yüksek kazanç-bant genişliğine sahip bir üründür ve bu devrenin kalbi olarak düşünülebilir. LF356'nın çıkışı R15 üzerinden toprağa bağlanmıştır. Bu da kararlılık ve bant genişliği için oldukça önemlidir. C1 ve C4 kapasitörleri oluşabilecek gürültünün azaltılması için kullanılmıştır. R11, R18 ve R13, R17 oranları yükseltecin çalışma akımını hesaplar. R1 ve R14, kazanç hesaplamasının yapılmasını sağlayan temel negatif geri besleme bileşenleridir. Diğer taraftan, yükseltecin kazancı R2, R3 ile Q1, Q2'nin yardımıyla da değiştirilebilir. Bu devre için giriş voltajının kazançla çarpımının; çıkış transistörlerinin güvenli çalışma alanı, yük durumları ve çalışma frekansı düşünüldüğünde 360 Vpp değerini geçmemesi unutulmaması gereken önemli bir unsurdur [28]. Ek olarak yükseltecin giriş bölümü statik yüklere ve gürültüye karşı korunmalıdır. Yükselteç devresinin baskı devre yolları Şekil 3.4' görülmektedir.



Şekil 3.4 Yükselteç baskı devresi

Şekil 3.4'de görülen baskı devrenin +250 V ve -250 V besleme noktalarıyla transistörler arasına yerleştirilen 22 ohm değerindeki R20 ve R21 dirençlerİ kısa devre koruması görevi görmektedir.

Şekil 3.5, yukarıda detayları verilen yükselteç devresini besleyen sıradan zener diyotlu devreye dayalı yüksek voltajlı pozitif ve negatif regülatörleri tanımlamaktadır. Zener diyotlar istenilen değer için çıkış voltajının ayarlanması amacıyla seri olarak bağlanabilir. Bu devrede çıkış voltajı 100 V değerindeki seri bağlanmış zener diyotların yardımıyla 200 V değerine ayarlanmıştır.



Şekil 3.5 Güç kaynağı bölümünün devre şeması [25]

İşaret üreteci tarafından üretilen sinyalleri yükselteç devrelerinin çıkışında gördükten sonra elektrostatik eğirme düzeneği, nanofiberlerin yönlendirilmesi için hazır hale gelmiştir. Karşılaştırma yapmak amacıyla paralel plakalar dahil edilmeden önce silindirik elektrotlar yardımıyla da deneyler yapılmıştır ve nanofiber oluşumlarının kaotik yapıları Olympus marka optik mikroskopta görüntülenmiştir. Silindirik elektrotlu deneylerde, iğne ucuna uygulanan voltaj etkisi ve polimer jetinin uçuş süresi etkisi denenmişti. Daha sonra paralel pakalar aktif hale getirilerek yapılan deneyler sonucu nanofiberlerin yönlenmeleri yine optik mikroskop aracılığıyla takip edilmiştir. Bu deneylerde de süre ve voltaj değerleri sabitken frekans etkisi ve voltaj ve frekans sabitken polimer jetinin uçuş süresinin etkisine bakılmıştır.

Üretilen fiberlerin sayısal olarak ifade edilebilmesi için, SEM görüntüsü üzerinde düzenli gözüken fiberler ile örtüşen çizgiler çizilmiştir. Fiberlerin doğrultularından saptıkları bölgede, bu çizgiler ile arasındaki açılar hesaplanarak, fiberlerin sapma açıları ortaya çıkmıştır. Herhangi bir sapma yapmayan (0 derece), fiberlerin sayısı tüm fiber sayısına oranlanarak, düzenlenmiş fiberlerin miktarı hesaplanmıştır.

3.2 Deneyin Yapılışı

3.2.1 Polimerin hazırlanması

Elektrostatik eğirme deneyine başlamadan polimer çözeltisinin hazırlanması gerekmektedir. Bu deneyde polimer çözeltisinde kullanılmak üzere polimer olarak polivinilpirolidon (PVP, Aldrich Chemistry, Kat # 437190-500G) kullanılmıştır. Polimer çözeltisi olarak, %6, %8, %10 ve %12'lik PVP konsantrasyona sahip polimerler ve çözücü madde olarak etanol kullanılmıştır. Örneğin; %8'lik PVP'ye sahip 20 gramlık bir polimer çözeltisi hazırlanmak istenirse 1.6 g PVP'nin üzerine 20 grama ulaşana kadar etanol eklenir. Bu işlemler yapıldıktan sonra polimer çözeltisinin oluşabilmesi için çözeltinin içine manyetik balık atılarak 3-4 saat arasında karıştırılır. Polimer çözeltisi oluştuktan sonra, şırınga ucuna takılmış bir hat yardımıyla çekilir ve bu hat daha sonra bir iğne ucuna bağlanarak düzenekteki yerine yerleştirilir.

3.2.2 Polimerin eğirilmesi

Polimer çözeltisi hazırlandıktan sonra elektrostatik eğirme düzeneğinde uçurulmak üzere ayarlanır. Uçurma işlemi farklı şartlar ve parametreler ile gerçekleştirilebilir. Bu çalışmada baştan itibaren sırasıyla, boş düzenekte, silindirik elektrotlar ile birlikte ve silindirik elektrotlar ile birlikte paralel plaklar ile uçurma işlemi gerçekleştirilmiştir. Düzeneğin sadece çift silindirik elektrotlu ve çift silindirik elektrotlar ile birlikte paralel plakların dahil edildiği hali Şekil 3.6' da görülmektedir.



Şekil 3.6 Elektrostatik eğirme düzeneği A) Çift silindirik elektrotlu düzenek B) Çift silindirik elektrot ve paralel plakalı düzenek

Deneylere başlamadan önce polimer jetinin rastgele uçuşu gözlemlenmiştir. Silindirik elektrotlar yardımıyla yapılan odaklama çalışmalarıyla bu rastgele uçuş önlenmiş ve daha sonra oluşan nanofiber yapılarının çapları olabildiğince düşürülmüştür. Şekil 3.7' de boş düzenekte yani silindirik elektrot kullanılmadan uçurulan polimer çözeltisinden meydana gelen nanofiber yapısı görülmektedir.



Şekil 3.7 Silindirik elektrot kullanmadan oluşan nanofiber yayılım çapları

- A) Çap=38 mm, Toplayıcı plaka ile iğne ucu arası mesafe=16 cm
- B) Çap=29 mm, Toplayıcı plaka ile iğne ucu arası mesafe=15 cm

Silindirik elektrot olmadan çalışılan Şekil 3.17' de görülen örnekte nanofiberlerin etrafa saçılmadan düzgün bir şekilde toplandığı görülmektedir. Ancak bu nanofiberlerin kapladığı alan düşünüldüğünde dağılım çapı açısından istenilen seviyede değildir. Bu çapı daha da azaltabilmek için silindirik elektrot düzeneğe bağlanarak istenilen çap aralığına yakın nanofiberler elde edilebilmiştir. Şekil 3.8, tek bir silindirik elektrot kullanılarak elde edilen nanofiber yapısını göstermektedir.



 Şekil 3.8 Tek silindir elektrotun fiber yayılım çaplarına etkisi A) Çap=29 mm, Toplayıcı plaka ile iğne ucu arası mesafe=16 cm B) Çap=28 mm, Toplayıcı plaka ile iğne ucu arası mesafe=15 cm C) Çap=24.5 mm, Toplayıcı plaka ile iğne ucu arası mesafe=14 cm D) Çap=20.6 mm, Toplayıcı plaka ile iğne ucu arası mesafe=13 cm



Şekil 3.9 Çift silindirik elektrotlu düzenekte voltajın fiber dağılım çapına etkisiA) Voltaj= 6.2 kV B) Voltaj =5.6 kV

Fiber dağılım çapı kontrol edilerek voltaj 6.2 kV'den 5.6 kV'ye düşürülerek dağılım çapları 14 mm'den 10 mm'ye düşürülmüştür. Çift silindirin etkisiyle fiber dağılımının daha küçüldüğü gözlemlendi ve çift silindirli durumda da uygulanan voltajın düşmesiyle fiber dağılımı düşürüldü.(Şekil 3.9)

4. SONUÇLAR VE TARTIŞMA

Düzenli nanofiber üretimi için polimer jetinin uçuş yönüne paralel plakalar yerleştirilerek harici elektrik alan ile yönlendirme imkanı sağlayan, bu orijinal elektrostatik eğirme yöntemiyle birçok farklı parametre ve şartlar altında çeşitli deneyler gerceklestirilmistir. Mevcut elektrostatik eğirme düzeneğinde bu deneylere başlamadan önce, kurulumda kullanılan önemli ekipmanlar üzerinde de çeşitli düzenlemeler yapılmıştır. Yapılan düzenlemelerin ilki, nanofiberlerin yönlendirilmesinde önemli rol oynayan harici elektrik alanın oluşturulmasını sağlayan yükselteç devrelerinin ve bu yükselteç devrelerini besleyen güç kaynağı devreleri üzerinde gerçekleştirilen işlemlerdir. Ek olarak, sinyal üreteçleri ile yükselteç devre bağlantıları gerçekleştirilerek, yükselteç devreleri çıkışında bu sinyaller takip edilmiştir. Son olarak, her bir yükselteç devresi çıkışına paralel plaka bağlantıları gerçekleştirilmiştir. Böylece elektrostatik eğirme sisteminin, harici elektrik alan ile düzenli nanofiber oluşumunu sağlayan bölüm tamamlanmıştır. Bu işlemler yapıldıktan sonra, yönlendirme deneylerine başlamadan önce, elektrostatik eğirme sisteminin standardize edilmesi gerekmiştir. Bu bağlamda, yapılan ilk denemelerde polimer jetinin rastgele uçuşu ve nanofiberlerin toplayıcı plakada toplanamadığı gözlemlenmiştir. Bu sorunun giderilmesi adına sistemin önemli parametrelerinden olan iğne ucu değiştirilmiş ve silindirik elektrotlar kullanılarak odaklama çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Nanofiberlerin belirli bir noktada toplandığı görüldükten sonra çift silindirik elektrot yardımıyla, toplayıcı plakada oluşan nanofiberlerin yayılım çapları mümkün olduğunca düşürülmüştür. Toplayıcı plaka ile iğne ucu arası mesafe ve yine silindirik elektrotlar arası mesafe yayılım çaplarının düşürülmesinde önemli rol oynamıştır. Sistem ideal çalışma koşullarına getirildikten sonra çift silindirik elektrotlar ve nanofiberlerin yönlendirilmesi için paralel plakalar ile farklı parametreler altında birçok deney gerçekleştirilmiştir. Bu tez çalışmasında, yükselteçlerin istenilen frekans ve genlik değerlerinde çalışması için bir takım düzenlemeler yapılmıştır. Önceki bölümlerde bahsedildiği gibi bazı devre elemanları değiştirilerek, transistörlerin yüksek güven aralığında çalışması için kısa devre korumaları eklenmiştir. Daha sonra sinyal üreticiler yardımıyla bu devrelere uygulanan sinyaller Tektronix marka osiloskop ile izlenmiştir (Şekil 4.1).

32



Şekil 4.1 Yükselteç devresinin çıkışında görülen üçgen sinyal(1)

Güç kaynağıyla birlikte yükselteç bölümünün tamamını oluşturan devrenin girişine sinyal jeneratörü yardımıyla üçgen dalga uygulanmış ve devrenin çıkışı osiloskoba bağlanarak bu dalganın formu çeşitli frekans değerlerinde gözlemlenmiş ve yine bu dalganın tepeden tepeye Vpp değerleri gözlemlenmiştir. Şekil 4.1' de devrenin girişine 50 kHz değerinde üçgen dalga uygulanmış ve Vpp değerinin sinyalin formu bozulmadan yaklaşık 290 V değerine ulaştığı görülmüştür. Dalganın ulaştığı Vpp değerleri frekansın düşürülmesiyle, kazanç-bant genişliği sabit olduğu için daha yüksek olmuştur (Şekil 4.2).



Şekil 4.2 Yükselteç devresinin çıkışında görülen üçgen sinyal(2)

Şekil 4.2' de görüldüğü gibi yükseltecin girişine uygulanan sinyalin frekansı 50 kHz'den 10 kHz'e indirildiğinde sinyalin Vpp değeri 290 V'den yaklaşık 314 V'ye çıkmıştır. Frekansın daha da düşürülmesiyle sinyalin formu bozulmadan Vpp'nin ulaştığı değer yükselecektir.

Yükselteç devrelerinin istenilen aralıkta çalıştığı görüldükten sonra, elektrostatik eğirme düzeneğinde çift silindirik elektrotlar ve paralel plakalara kullanılarak çeşitli koşullar altında birçok deney yapılmıştır. Yapılan deneyler taramalı elektron mikroskobunda görüntülenmiştir.

4.1 SEM Görüntüleri

4.1.1 Elektrot kullanılmadan yapılan deneyler

İlk yapılan deneylerde silindirik elektrotlar ve paralel plakalar kullanılmamıştır. Herhangi bir elektrot ve plaka olmadan yapılan deneylerin sonucu SEM'de görüntülenmiştir. Polimer çözeltisindeki PVP konsantrasyonu %8' dir. Toplayıcı plaka ile iğne ucu arasındaki mesafe 16 cm olarak ayarlanmıştır. Şekil 4.3' de yardımcı elektrotlar olmadan yapılan deneyin SEM görüntüleri yer almaktadır.



Şekil 4.3 Silindirik elektrot ve paralel plakalar kullanılmadan yapılan deney A)1000x büyütme B) 5000x büyütme C) 10000x büyütme

Görüldüğü üzere, 1000x büyütme oranında oluşan fiber yapıları oldukça kaotik ve kıvrımlıdır. Bu kaotik yapı yine 5000x büyütme oranında da görülmektedir. 10000x büyütme oranında ise fiber çapları görülmektedir. Fiber çap dağılımlarını gösteren grafik Şekil 4.4' de yer almaktadır.



Şekil 4.4 Elektrot kullanılmadan elde edilen fiber çap dağılımları

Şekil 4.4' te görüldüğü gibi, herhangi bir elektrotun kullanılmadığı sistemde, 1.6 µm, en yoğun görülen fiber çap değeridir.

4.1.2 Çift Silindirik Elektrot Kullanılarak Yapılan Deneyler

4.1.2.1 Polimer jetinin uçurma süresi sabitken iğne ucuna uygulanan voltajın

<u>etkisi</u>

Çift silindirik elektrotun kullanıldığı deneylerde %8'lik PVP derişimine sahip polimer çözeltisi kullanılmıştır. Elektrotlar arası mesafe 3.5 cm olarak ayarlanmıştır. Elde edilen nanofiberler taramalı elektron mikroskobu altında gözlenmiştir. Burada yüksek voltaj değerinden düşük voltaj değerine doğru 5 saniyelik süre ile polimer jetinin uçurulması gerçekleştirilmiştir. Voltaj etkisinin farklı büyütme oranlarındaki görüntüleri Şekil 4.5'de görülmektedir.



Şekil 4.5 Voltaj azalışının etkisi TEM görüntüleri 1000x büyütmede A) 7.9 kV B) 7
kV C) 6 kV D) 4.6 kV 5000x büyütmede E) 7.9 kV F) 7 kV G) 6 kV H)
4.6 kV 10000x büyütmede I) 7.9 kV J) 7 kV K) 6 kV L) 4.6 kV

Voltajın azalmasıyla birlikte yoğun fiber oluşumlarının da azaldığı ve fiber çaplarının arttığı gözlenmiştir. Aynı zamanda, 5000x büyütme oranındaki görüntülere bakıldığında azalan voltaj nanofiber düzenlemelerinde de artış olduğu söylenebilir. Çift silindirik elektrot ile yapılan deneyler sonucu üretilen fiberlerin çap dağılımları Şekil 4.6' da görülmektedir. Buna göre, 7.9 ve 7 kV için en çok görülen fiber değerleri 700 nm' ye yakındır. 6 kV için bu değer 1.2 µm, 4.6 kV için 1.7 µm' dir. Çap dağılım histogramlarından da anlaşılabileceği gibi azalan voltaj ile fiber çaplarında artış görülmüştür. Yüksek voltaj değerlerinde nm mertebelerinde fiberler elde edilebilmiştir. Ayrıca iğne ucuna uygulanan 4 farklı voltaja ait ortalama çap ve standart sapma grafiği Şekil 4.7' de yer almaktadır.



Şekil 4.6 Çift silindirik elektrot kullanılarak yapılan deneylerde voltajın azalmasıyla elde edilen fiber çapı dağılımları A) 7.9 kV B) 7 kV C) 6 kV D) 4.6 kV



Şekil 4.7 Voltajın ortalama çapa etkisi (t-testi, 4.6 kV – 6 kV için p = 6,59, 4.6 kV – 7 kV için p=8,95, 4.6 kV – 7.9 kV için p=1,93, 6 kV – 7 kV için p = 1,28, 6 kV – 7.9 kV için p = 3,3, 7 kV – 7.9 kV için p = 0,75, p< 0,008)</p>

Grafikte görüldüğü gibi voltajın artmasıyla elde edilen fiberlerin ortalama çaplarında düşüş meydana gelmiştir. Ancak yapılan t-testi sonucu, p değerlerinin 0,008'den büyük olması nedeniyle, artan voltajın ortalama fiber çapları üzerinde etkisi olmamıştır.

4.1.3 Silindirik elektrotlar ve paralel plakalar kullanılarak yapılan deneyler

4.1.3.1 Polimer çözeltisindeki PVP konsantrasyonunun etkisi

Polimer çözeltisinde yer alan PVP polimerinin konsantrasyon etkisinin anlaşılabilmesi için 4 farklı konsantrasyon değerinde deneyler gerçekleştirilmiştir. PVP polimeri için sırasıyla %6, %8, %10 ve %12' lik konsantrasyonlarda yönlendirme deneyleri yapılmıştır. Bu deneylerin koşulları, iğne ucuna uygulanan voltaj 4.4 kV, polimer jeti uçurma süresi 5 sn ve paralel plakalara uygulanan sinyallerin frekansı 100 kHz-100 Hz şeklindedir. Şekil 4.8'de bu deneylerin SEM görüntüleri mevcuttur.



Şekil 4.8 Polimer konsantrasyonunun etkisi 1000x büyütmede A) %6 PVP B) %8
 PVP C) % 10 PVP D) %12 PVP 5000x büyütmede E) %6 PVP F) %8 PVP
 G) % 10 PVP H) %12 PVP, 10000x büyütmede I) %6 PVP J) %8 PVP K)
 % 10 PVP L) %12 PVP

Konsantrasyonun fiber düzenlemesine etkisine bakıldığında, 4 farklı konsantrasyon değerinden en iyi sonucu %8 PVP konsantrasyonuna sahip polimer çözeltisi vermiştir. Diğer konsantrasyon değerlerinde belirgin bir düzenlenme görülmezken, %8'lik PVP'nin düzenlenmeye etkisi açık bir şekilde görülmektedir. Ayrıca fiber çaplarına bakılırsa, %6, %8 ve %10 konsantrasyona sahip polimer çözeltilerinin oluşturduğu fiber çapları birbirine yakınken, %12 konsantrasyona sahip çözeltinin oluşturduğu fiber çapları belirli bölgelerde belirgin şekilde çok büyüktür. Daha sonra yapılan deneylerde en iyi sonucu verdiği için %8 PVP konsantrasyona sahip polimer çözeltisi seçilmiştir. Farklı konsantrasyonlarda yapılan düzenleme deneyleri sonucunda elde edilen fiberlerin çap dağılımları Şekil 4.9'da yer almaktadır. Buna göre, fiber dağılımda % 6 PVP için 1.3 µm, % 8 için 2.3 µm,%10 için 1.6 µm ve %12 için 2.2 µm değerleri görülmüştür.



Şekil4.9 Yönlendirme deneylerinde farklı polimer konsantrasyonları ile yapılan deneyler sonucu elde edilen fiberlerin çap dağılımları A) %6 PVP B) %8 PVP C) % 10 PVP D) %12 PVP Polimer çözeltisindeki PVP polimerinin konsantrasyonunun ortalama çaplar üzerindeki etkisi ve standart sapma değerlerini gösteren grafik Şekil 4.10' da görülmektedir.



Şekil 4.10 Polimer konsantrasyonunun ortalama çaplara etkisi(t-testi, %6 PVP – %8 PVP için p = 0.16, %6 PVP - %10 PVP için p = 0.0007 *, %6 PVP – %12 PVP için p = 8.55, %8 PVP - %10 PVP için p = 1.31, %8 PVP – %12 PVP için p = 0.0004 *, %10 PVP - %12 PVP için p = 2.58, *, p<0.008)</p>

Şekil 4.10' da görüldüğü gibi, yapılan t-testleri sonucu, %6 ve %10 PVP derişimine sahip çözeltilerde, p değerinin 0.008' den küçük çıkması, bu konsantrasyonlardaki PVP' lerin ortalama çaplara etkisinin olduğu ve birbirinden farklı oldukları söylenebilir. Yine % 8 ve % 12' lik konsantrasyonlardaki PVP polimerleri için p değeri 0.008' den küçük olduğu için, bu iki farklı konsantrasyona sahip PVP' nin ortalama çap üzerinde etkisi olduğu ve birbirinden farklı olduğu görülmektedir.

4.1.3.2 İğne ucuna uygulanan voltaj ve polimer jetinin uçurulma süresi

sabitken paralel plakalara uygulanan sinyallerin frekans etkisi

Çift silindirik elektrotlar kullanılarak yapılan deneylerden sonra düzeneğe paralel plakalar eklenmiştir. Yapılan deneylerin taramalı elektron mikroskobu görüntüleri Şekil 4.11' de görülmektedir.



Şekil 4.11 Voltaj sabit (4.9 kV) süre sabit (10 sn) frekans etkisi, 1000x büyütme oranında A) 10 kHz-100 Hz B) 5 kHz-100 Hz, 5000x büyütme oranında C) 10 kHz-100 Hz D) 5kHz-100 Hz 10000x büyütme oranında E) 10 kHz-100 Hz F) 5 kHz-100 Hz

Frekans düştükçe nanofiber çaplarında azalma görüldü. Sonuç olarak frekansın artması kısmen daha düzenli bir yapı oluştururken çapı da düşürdü. Ancak yine de düzenlenmeye dair belirgin bir farkın olup olmadığına karar verilemedi. Frekansın etkisinin araştırıldığı fiber düzenleme çalışmaları sonucu elde edilen fiberlerin çap dağılımları Şekil 4.12' deki gibi olmuştur. 10 kHz için en çok görülen fiber çap değeri 1.9 µm iken 5 kHz' de bu değer 1.5 µm olmuştur.



Şekil 4.12 Yönlendirme çalışmalarında farklı frekanslarda elde edilen fiber dağılım çapları A) 10 kHz-100 Hz B) 5 kHz-100 Hz

Fiber yönlendirme çalışmalarında, frekansın etkisinin araştırıldığı deneylerde üretilen fiberlerin ortalama çap ve standart sapmalarına ait grafik Şekil 4.13' de yer almaktadır.





Görüldüğü gibi, iki farklı frekans değerinde de ortalama fiber çapları birbirine yakındır. Ancak frekansı azalması ile ortalama çap değerinin az da olsa düştüğü görünse de, yapılan t-testi, paralel plakalara uygulanan sinyallerin frekansının ortalama çaplar üzerinde etkisinin olmadığını göstermiştir.

4.1.3.3 İğne ucuna uygulanan voltaj ve paralel plakalara uygulanan sinyallerin

frekansları sabitken işlem süresinin etkisi



Şekil 4.14 Voltaj sabit (4.9 kV) frekans sabit (5 kHz) sürenin etkisi, 1000x büyütme oranında A) 10 sn B) 20 sn, 5000x büyütme oranında C) 10 sn D) 20 sn, 10000x büyütme oranında E) 10 sn F) 20 sn

Süre arttıkça toplanan nanofiber miktarı da artmıştır. Çaplarda belirgin bir değişiklik olmamıştır. Süre arttıkça daha fazla nanofiber oluştuğu için düzenlemenin görüntüsü daha belirgin olduğu düşünülmektedir. Ama düzenlenmede belirgin bir fark olduğu söylenememiştir. Süre artışıyla daha çok nanofiber oluşmasına rağmen

düzenlenme yapısında kaotik yapıya rastlanmadığı da söylenebilir. Nanofiber düzenlenme çalışmalarında, 10 ve 20 saniyelik sürelerde elde edilen fiberlerin çap dağılımları Şekil 4.15'de karşılaştırılmıştır. İşlem süresi 10 sn iken fiber çap dağılımında 1.5 µm, işlem süresi 20 sn iken 1.8 µm en çok görülen değer olmuştur.



Şekil 4.15 İşlem süresinin düzenlenme deneylerinde oluşturduğu çap dağılımları

A) 10 sn B) 20 sn

İşlem süresinin artmasıyla elde edilen fiberlerin çaplarında da artış görülmüştür. 10 saniye için en yoğun fiber çapı 1.5 µm iken, 20 saniyelik işlem süresinde en çok 1.8 µm'ye rastlamıştır. Şekil 4.16' da ise işlem süresinin araştırıldığı yönlendirme deneyleri sonucu elde edilen fiberlere ait ortalama çap ve standart sapma grafiği mevcuttur.





İşlem süresinin fiber düzenlenmesine etkisinin araştırıldığı deneylerde, işlem süresi arttıkça ortalama çapta da artış görüldüğü söylenebilir. Ancak yapılan t-testi sonucu p değeri 0.05'ten büyük olduğu için, işlem süresinin ortalama fiber çapları üzerinde etkisi olduğu söylenemez.

4.1.3.4 Paralel plakalara uygulanan sinyallerin frekansı ve işlem süresi

sabitken iğne ucuna uygulanan voltajın etkisi



Şekil 4.17 Süre sabit (10 sn) frekans sabit (5 kHz) voltajın etkisi 1000x büyütme oranında A) 4.4 kV B) 4.9 kV, 5000x büyütme oranında C) 4.4 kV D) 4.9 kV, 10000x büyütme oranında E) 4.4 kV F) 4.9 kV

Voltaj azaldıkça nanofiber düzenlenmesinin daha belirgin olduğu anlaşılmıştır. Voltajın düzenlemeye olan etkisinin araştırıldığı deneylerde elde edilen fiberlerin çap dağılımına ait grafik Şekil 4.18' de yer almaktadır.



Şekil 4.18 Yönlendirme deneylerinde voltajın fiber çaplarına etkisi A) 4.4 kV B) 4.9 kV

Çap dağılımlarına bakıldığında, düşük voltaj ile yapılan düzenleme deneyleri sonucu üretilen fiberlerin çaplarının daha büyük olduğu görülmektedir. 4.4 kV için 1.6 µm, 4.9 kV için 1.5 µm değerleri en çok bulunan çap değerleri olmuştur. Ayrıca uygulanan voltajın düzenlenmeye etkisinin araştırıldığı deneylerde oluşturulan fiberlere ait ortalama çap ve standart sapma grafiği Şekil 4.19' da görülmüştür. Buna göre p 0.05'ten büyük olduğu için düzenleme deneylerinde voltajın ortalama çap üzerinde etkisi olmamıştır.





Sonuç olarak, voltajın düşmesiyle daha belirgin bir düzenlenme görülmesi nedeniyle gerilim 4.4 kV ve frekans değeri artışı ile daha belirgin bir düzenlenme görüldüğü için 10kHz seçilmiştir. Sürenin belirgin bir etkisi olmaması nedeniyle 5 sn için polimer jetinin paralel plakalar kullanarak ve sadece çift silindirik elektrotlar(paralel plakların kullanılmadığı durum) kullanarak elde edilen görüntüler karşılaştırılmıştır. Bu görüntüler Şekil 4.20' de görülmektedir.



Şekil 4.20 Paralel plakaların etkisi SEM görüntüleri 1000x büyütme oranında A) Çift silindirik elektrotlu B) Çift silindirik elektrot+paralel plakalar, 5000x büyütme oranında Paralel plakaların etkisi TEM görüntüleri C) Çift silindirik elektrotlu D) Çift silindirik elektrot+paralel plakalar, 10000x büyütme oranında E) Çift silindirik elektrotlu F) Çift silindirik elektrot+paralel plakalar

Şekil 4.20'de paralel plakların nanofiber düzenlenmesi üzerindeki etkisi net bir şekilde görülmektedir. Sadece çift silindirik elektrot kullanılarak elde edilen nanofiberlerde kaotik yapı ve kıvrılmalar görülürken, iğne ucuna uygulanan voltaj değeri aynıyken düzeneğe paralel plakaların eklenmesiyle birlikte frekansın etkisiyle daha önce kıvrılmış ve kaotik yapıya sahip nanofiberlerin belirgin bir şekilde yönlendiği anlaşılmıştır. Çift silindirik elektrotla yapılan deneyler ve aynı düzeneğe paralel plakaların eklenmesi sonucu elde edilen fiberlerin çap dağılımları karşılaştırılmıştır (Şekil 4.21). Çift silindirik elektrotlu düzenekte, fiber dağılımlarında 1.7 µm, paralel plakaların dahil edildiği düzenekte ise 2.3 µm değerleri en çok bulunan değerlerdir.



Şekil 4.21 Çift silindirik elektrot ve paralel plakalı deneyler sonucu elde edilen fiber çap dağılımları A) Çift silindirik elektrotlu B) Çift silindirik elektrot+paralel plakalar

Şekil 4.21' de görülen fiber çap dağılımlarına bakıldığında, paralel plakalar ile yapılan düzenleme çalışmaları sonrası çap dağılım aralığı daha fazla olmuştur ve

iki örnek arasında çap frekansları karşılaştırıldığında, düzenleme çalışmaları sonucu elde edilen fiberlerin çaplarının en yoğun olduğu değer daha yüksektir. Şekil 4.22' de çift silindirik elektrotlu düzen ve bu düzeneğe paralel iletken plakaların eklenmesi sonucu elde edilen fiberlerin ortalama çapları ve standart sapmaları yer almaktadır.



Şekil 4.22 Düzenek tipinin ortalama çaplara etkisi (t-testi, p= 0.19)

Grafikte görüldüğü gibi, çift silindirik elektrot ve paralel plakalar ile yapılan deneyler sonucunda ortalama çap değerlerinde, paralel plakalar eklendikten sonra az da olsa bir artış görülmüştür. Ancak yapılan t-testi sonucu, p değeri 0.05'ten büyük olduğu için düzenek tipinin fiber çapları üzerinde bir etkisi olduğu söylenemez.

Son olarak, yapılan deneylerde düzenlenmenin oranının anlaşılabilmesi için en iyi örnek olarak kabul edilen Şekil 4.20a' daki SEM görüntüsü üzerinden düzenlenmiş fiberler sayılmıştır. Sayım sonucu kaotik olmayan fiber oranı %66 olarak çıkmıştır. Bu oranın içinde bulunan fiberlerin, bulundukları doğrultulardan sapma açıları hesaplanarak düzenlenmenin oranı ortaya çıkarılmıştır. Sonuç olarak fiberlerin dizilim oranı, herhangi bir sapma açısı olmadan %37,5 hesaplanmıştır. Fiberlerin sapma açılarına göre düzenleme frekanslarını gösteren grafik Şekil 4.23' te yer almaktadır.



Şekil 4.23 Fiberlerin düzenlenme yüzdeleri

5. SONUÇ

Özgün bir elektrostatik eğirme yaklaşımı sunulan bu tez çalışmasında, düzenli yapıda nanofiber elde edebilmek için silindirik elektrotlar ve paralel plakalar kullanılmıştır. Deneyler gerçekleştirilirken, polimer çözeltisindeki polimer konsantrasyonu, polimer jetinin uçma süresi, iğne ucuna uygulanan voltaj, nanofiberlerin düzenlemesini sağlayan paralel plakalara uygulanan sinyallerin frekansı ve iğne ucu ile toplayıcı plaka arasındaki mesafe gibi bir çok parametre göz önünde bulundurulmuştur. Elde edilen fiberler öncelikle optik mikroskopta, sonrasında ise taramalı elektron mikroskobunda görüntülenmiştir.

Deneyler öncelikle herhangi bir elektrot ya da plaka kullanılmadan gerçekleştirilmiştir. Yapılan bu deneylerde polimer jetinin toplayıcı plakada görülür bir şekilde toplanmadığı gözlenmiştir. Bu gelişme üzerine kullanılan iğne ucu değiştirilerek daha büyük çapa sahip bir iğne ucu (2 mm) kullanılmıştır ve yine toplayıcı plaka ile iğne ucu arasındaki mesafe (16 cm ve 15 cm'lik iki deneme) değiştirilerek oluşan fiber dağılımı çapı olabildiğince düşürülmüştür.

Fiberlerin toplayıcı plaka üzerindeki alüminyum folyoda belirgin bir şekilde biriktiği görüldükten sonra fiber dağılım çapının daha da düşürülmesi için silindirik elektrotlar kullanılarak odaklama çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Bu bağlamda çapı 3 cm olan dar bir silindirik elektrot ve çapı 8 cm olan geniş bir silindirik elektrot kullanılmıştır. Yine bu iki elektrot arasındaki mesafe 3.5 cm ayarlanarak optimal aralık yakalanmıştır. Deneylerin sonuçlarına bakıldığında dar çapa sahip tek silindirik elektrotla yapılan deneylerde fiber yayılım çaplarının yaklaşık 29 mm'den 20 mm'ye indirilmiştir. Bu düşüşte yine toplayıcı plaka ile iğne ucu arasındaki mesafenin 16 cm'den 13 cm'ye kadar düşürülmesi etkili olmuştur. Daha sonra odaklama çalışmaları ve fiber yayılım çaplarının düşürülmesi için geniş çapa sahip silindirik elektrot düzeneğe eklenmiştir. Çift silindirik elektrotlu deneylerin sonuçları, fiber yayılım çapında tek silindirik elektrotlu düzeneğe göre belirgin bir düşüşün olduğunu göstermektedir. İğne ucu ile toplayıcı plaka arasındaki mesafe 12 cm'ye sabitlenerek uygulanan voltajın 6.2 kV'den 5.6 kV'ye düşürülmesiyle fiber yayılım çaplarının yaklaşık 14 mm'den 10 mm'ye düşürülmüştür. Bu çaplar olabildiğince düşürüldükten sonra, çift silindirik elektrotlu düzenekte voltajın ektisi (4.6 kV, 6 kV,7

54

kV ve 7.9 kV) ve polimer jetinin uçma süresi (5 sn, 10 sn ve 20 sn) etkisinin görülmesi için deneyler gerçekleştirilmiştir. Deneylere öncelikle yüksek voltajdan (7.9 kV) başlanmış ve kademe kademe daha düşük voltaj (4.6 kV) değerlerine getirilmiştir. Bu deneylerin sonuçlarına hem optik mikroskopta hem de taramalı elektron mikroskobunda bakılmıştır. Yönlendirici plakalar kullanılmadığı için örneklerde nanofiberlerin kaotik ve kıvrımlı bir şekilde oluştuğu gözlenirken, artan süre ile daha fazla ve daha kaotik fiber yapısının oluştuğu gözlenmiştir. Diğer taraftan, azalan voltaj ile birlikte oluşan fiber miktarının azaldığı ve yine kaotik yapının düşük voltajlarda daha az görüldüğü söylenebilir. Yine TEM görüntülerinde fiber çaplarına bakıldığında ise artan voltajın fiber çaplarında düşüşe sebep olduğu görülmüştür. Ancak t- testleri sonuçlarına bakıldığında voltajın ortalama çaplar üzerinde bir etkisi olduğu söylenemez.

Deneylerin son aşamasında çift silindirik elektrotlu düzeneğe paralel plakalar eklenerek fiberlerin yönlendirilmesi hedeflenmiştir. Bu deneylerde, polimer jetinin uçuş süresi (5 sn, 10 sn ve 20 sn), paralel plakalara uygulana frekansların etkisi, voltaj etkisi ve farklı PVP konsantrasyonuna (%6, %8, %10, %12) sahip polimer çözeltisinin etkileri gözlenmiştir. Bu değerlerden en iyi sonucu %8 PVP konsantrasyonuna sahip çözelti verdiği için sonraki deneylerde sadece bu konsantrasyon kullanılmıştır. Polimer jetinin uçuş yörüngesine yerleştirilen boyutları 10cm x 1 cm olan 4 adet paralel plaka ile gerçekleştirilen deneylerin sonuçları optik mikroskop ve taramalı elektron mikroskobunda gözlenmiştir. Yönlendirme deneylerinde, paralel plakalar ikili grup halinde ayrılarak her bir grup yükselteç devrelerinin çıkışlarına bağlanmıştır ve bu yükselteçlere sinyal jeneratörleri aracılığıyla sinyaller uygulanmıştır. Bu sinyallerin genlik değerleri 200 V olarak ayarlanmıştır. Sinyallerden birinin frekansı bütün deneylerde 100 Hz'e ayarlanıp, diğer sinyal için 5 kHz ve 10 kHz frekans değerleri kullanılarak yapılan deneylerin sonuçları karşılaştırılmıştır. Frekansın fiber düzenlenmesindeki etkisine bakıldığında, 5 kHz'in uygulandığı örneklerin TEM görüntülerine fiber çaplarında azalma görülürken, frekansın 10 kHz' e çıkarılması kısmen daha düzenli bir yapı oluştururken fiber çaplarında da artışa sebep olmuştur. T- testleri sonucu ortalama caplar üzerinde belirgin bir frekans etkisi görülmemiştir. Ancak yine de fiber düzenlenmesinde belirgin bir etki yaratıp yaratmadığına karar verilememiştir. Bu aşamadan sonra iğne ucuna uygulanan voltaj 4.9 kV ve paralel plakaya uygulanan

55

sinyalin frekansı 5 kHz iken 10 ve 20 saniyelik polimer uçuş süresi etkileri karşılaştırılmıştır. Buna göre süre arttıkça toplanan nanofiber miktarı da artmıştır. Çaplarda belirgin bir değişim olmamıştır. Süre arttıkça nanofiber düzenlenmesinde belirgin bir etki görülmemesine rağmen artan süreyle birlikte nanofiberlerin yönlenme kararlılığında da fazla değişim görülmemiştir. Son olarak, polimer jeti uçuş süresi 10 saniyede ve paralel plaka frekansı 5 kHz' de sabit tutularak, iğne ucuna uygulanan 4.4 kV ve 4.9 kV'luk iki farklı voltajın etkisi karşılaştırılmıştır. Buna göre voltaj düştükçe nanofiber düzenlenmesinin daha belirgin olduğu görülmüştür ve en ideal voltaj değerinin 4.4 kV olduğuna karar verilmiştir.

Sonuç olarak; bu tez çalışmasında harici bir elektrik alan oluşturularak nanofiberlerin yönlendirilebileceği, kaotik yapıdaki fiberlerin yönlendirme plakalarının eklenmesiyle birlikte bu oluşumdan uzak bir profil izledikleri ve düzenli bir yapıda meydana gelebildikleri gözlenmiştir. Bütün deneyler göz önünde bulundurulduğunda üretilen fiber çapları 800 nm ile 3 µm arasında değişkenlik göstermiştir. Ayrıca fiberlerin düzenlenme oranları da yönlendikleri doğrultulardan kaç derece saptıklarıyla hesaplanmıştır. Doğrultusundan hiç sapmadan düzenlenmiş fiber oranı %37,5 hesaplanmıştır. Bu tez çalışmasında üretilen fiberler, doku mühendisliği alanında, yeniden doku oluşturma, doku ekleme ve doku onarımı amacıyla doku iskelesi uygulamalarında kullanılabilir.

KAYNAKLAR

- [1] Victor Leung and Frank Ko, Biomedical applications of nanofibers, 2010
- [2] Nanobülten 13 ; Hacettepe Üniversitesi Nanoteknoloji ve Nanotıp Anabilim Dalı, Mayıs 2011
- [3] Nishath Khan, Applications of electrospun nanofibers in the biomedical field, 2012
- [4] Jayesh Doshi and Darrel H. Reneker, Electrospinning Process and Applications of Electrospun Fibers
- [5] Qufu Wei, Functional nanofibers and their applications, 2012
- [6] Vince Beachley, Eleni Katsanevakis, Ning Zhang, and Xuejun Wen, Highly Aligned Polymer Nanofiber Structures: Fabrication and Applications in Tissue Engineering, 2011
- [7] Candan AKCA CAN, Deniz DURAN, Doku Mühendisliği Uygulamalarında Tekstil Materyal Ve Teknolojilerinin Kullanımı, 2009
- [8] B. P. Chan , K. W. Leong, Scaffolding in tissue engineering: general approaches and tissue-specific considerations, 2008
- [9] Ryan J.Wade, JasonA.Burdick ; Advances in nanofibrous scaffolds for biomedical applications: From electrospinning to self-assembly, 2014
- [10] Wan-Ju Li and Rocky S. Tuan, Fabrication and Application of Nanofibrous Scaffolds in Tissue Engineering, 2009
- [11] Pamela Tsing, Dawn M. Elliott, Ph.D., Electrospinning Natural Polymers For Tissue Engineering Applications
- [12] Ali Moayeri, Abdellah Ajji ; Fabrication of polyaniline/poly(ethylene oxide)/non-covalentlyfunctionalized graphene nanofibers via electrospinning 2015
- [13] Dan Li, Yuliang Weng, and Younan Xia, Electrospinning Nanofibers as Uniaxially Aligned Arrays and Layer by Layer Stacked Films, 2004
- [14] Geun Hyung Kim, Electrospinning Process Using Field-Controllable Electrodes, 2005

- [15] Jianghui Zhao, Hongying Liu, Lan Xu, Preparation and formation mechanism of highly aligned electrospun nanofibers using a modified parallel electrode method, 2015
- [16] JochenWalser, StephenJ.Ferguson, Oriented nanofibrous membranesfortissue engineering applications:Electrospinning with secondary field control, 2015
- [17] Gernot Hochleitner, Julia Franziska Hümmer, Robert Luxenhofer, Jürgen Groll; High definition fibrous poly(2-ethyl-2-oxazoline) scaffolds through melt electrospinning writing, 2014
- [18] *Toby D. Brown , Paul D. Dalton , and Dietmar W. Hutmacher,* Direct Writing By Way of Melt Electrospinning, 2011
- [19] QUYNH P. PHAM, UPMA SHARMA, Ph.D., and ANTONIOS G. MIKOS, Ph.D., Electrospinning of Polymeric Nanofibers for Tissue Engineering Applications: A Review, 2006
- [20] Z. Li and C. Wang, Effects of Working Parameters on Electrospinning, 2013
- [21] Dan Kai , Sing Shy Liow, Xian Jun Loh, Biodegradable polymers for electrospinning: Towards biomedical applications, 2014
- [22] A. Martins, R. L. Reis and N. M. Neves ; Electrospinning: processing technique for tissue engineering scaffolding 2008
- [23] Seema Agarwal, Joachim H. Wendorff, Andreas Greiner, Use of electrospinning technique for biomedical applications, 2008
- [24] Seema Agarwal, Joachim H. Wendorff, and Andreas Greiner, Progress in the Field of Electrospinning for Tissue Engineering Applications, 2009
- [25] Travis J. Sill, Horst A. von Recum ; Electrospinning: Applications in drug delivery and tissue engineering, 2008
- [26] Tyler Allee, Andrew Handrof, Wan-Ju Li, Intelligent Medical Technologies and Biomedical Engineering: Tools and Applications, Electrospinning : Development and Biomedical Applications, 2010
- [27] Okan Karatay, Mustafa Doğan, *Member, IEEE*, Tansel Uyar, Dilek Çökeliler, and Ismail Cengiz Koçum, An Alternative Electrospinning Approach With Varying Electric Field for 2-D-Aligned Nanofibers, 2014
- [28] C. Koçum, Digitally gain controlled linear high voltage amplifier for laboratory applications, 2011

EK-1 POLİMER ÇÖZELTİSİ HAZIRLAMA SÜRECİ

Şekil 1.1, 1.2 ve 1.3 polimer çözeltisinin hazırlanma sürecini göstermektedir.



Şekil 1.1 PVP'nin hassas terazide tartılması

PVP eklenip ve tartıldıktan sonra, çözeltinin çözücü maddesi olan etanol 20 g oluncaya kadar eklenir.


Şekil 1.2 PVP üzerine etanol eklemesi

Etanol eklendikten sonra çözelti içerisinde bir manyetik balık atılarak belirli bir süre karıştırıldıktan sonra polimer çözeltisi kullanıma hazır bir hal alır.



Şekil 3.8 Çözeltinin karıştırılması

Çözelti hazır hale geldikten sonra, şırınga ucuna takılı bir hat yardımıyla çekildikten sonra bu hatta iğne ucu takılır ve polimer uçurma işlemine başlamadan önce düzenekteki yerine yerleştirilir.

EK-2 OPTİK MİKROSKOP GÖRÜNTÜLERİ

Çift Silindirik Elektrot Kullanarak Yapılan Deneyler

Polimer jeti uçuş süresi sabitken iğne ucuna uygulanan voltaj etkisi

Uçuş süresi sabitken 4 farklı voltaj değerinde deneyler yapılmıştır. Bu deneyler sırasıyla 5 saniye, 10 saniye ve 20 saniyelik uçuş süreleri için gerçekleştirilmiştir. Sadece voltajın nanofiber formunu nasıl etkilediğine bakılmak istendiği için, deneylerde mesafeler de değiştirilmemiştir. Buna göre toplayıcı plaka ile iğne ucu arası mesafe 12 cm, silindirik elektrotlar arası mesafe 3.5 cm ve toplayıcı plaka ile geniş elektrot arası yaklaşık 7.5 cm olarak ayarlanmıştır. Sonuç olarak 5,10 ve 20 saniye için 4 farklı voltaj değerinin etkisini gösteren optik mikroskop görüntüleri elde edilmiştir.



Şekil 1 Süre sabitken(5 sn) iğne ucuna uygulanan voltaj etkisinin optik mikroskop görüntüleri A) 4.6 kV B) 6 kV C) 7 kV D) 7.9 kV



Şekil 2 Süre sabitken(10 sn) iğne ucuna uygulanan voltaj etkisinin optik mikroskop görüntüleri A) 4.6 kV B) 6 kV C) 7 kV D) 7.9 kV



Şekil 3 Süre sabitken(20 sn) iğne ucuna uygulanan voltaj etkisinin optik mikroskop görüntüleri A) 4.6 kV B) 6 kV C) 7 kV D) 7.9 kV

Polimer jetinin uçuş süresi sabitken voltajın etkisini gösteren optik mikroskop görüntülerinde görülmektedir ki; voltaj arttıkça daha fazla nanofiberin toplandığı ve nanofiberlerin kaotik oluşumu da artmaktadır.

İğne ucuna uygulanan voltaj sabitken polimer jetinin uçuş süresi etkisi

Voltaj etkisi deneylerinden sonra, polimerin uçuş süresi etkisine sabit bir voltaj değerinde, 5,10 ve 20 saniyeler için deneyler gerçekleştirilmiştir. Bu bağlamda sadece süre parametresinin değiştirilmesi gerektiği için düzenekteki mesafeler aynı şekilde ayarlanmıştır. Sırasıyla 4 farklı voltaj değerinin, 5,10 ve 20 saniyelerdeki optik mikroskop görüntüleri elde edilmiştir. Bu görüntülere göre saniyedeki artışlar nanofiber oluşumunun daha kaotik olmasına sebep olmuştur. İlk denemede voltaj değeri 4.6 kV'a ayarlanmıştır.



Şekil 4 İğne ucuna uygulanan voltaj sabit iken(4.6 kV) sürenin etkisinin optik mikroskop görüntüleri A) 5 sn B) 10 sn C) 20 sn

Voltaj değeri 4.6 kV iken artan süre kaotik yapının arttığı görülmektedir. İkinci deneme için yine aynı sürelerde voltaj değeri 6 kV' a getirilmiştir.



Şekil 5 İğne ucuna uygulanan voltaj sabit iken(6 kV) sürenin etkisinin optik mikroskop görüntüleri A) 5 sn B) 10 sn C) 20 sn

Zamanla birlikte yine kaotik yapının fazlalaştığı söylenebilir. Voltaj değeri 7 kV yapılmıştır.



Şekil 6 İğne ucuna uygulanan voltaj sabit iken(7 kV) sürenin etkisinin optik mikroskop görüntüleri A) 5 sn B) 10 sn C) 20 sn

Son olarak voltaj değeri 7 kV yapılmıştır.



Şekil 7 İğne ucuna uygulanan voltaj sabit iken(7.9 kV) sürenin etkisinin optik mikroskop görüntüleri A) 5 sn B) 10 sn C) 20 sn

Tüm bu voltaj değerleri için 3 farklı sürede gerçekleştirilen deneylerin sonucunda sürenin artmasıyla kaotik nanofiber oluşumunun da arttığı söylenebilir. Bu değerlere ek olarak, yine 10 ve 20 saniye için olabildiğince düşük voltaj değerinde deney yapılmıştır.



Şekil 8 İğne ucuna uygulanan voltaj sabit iken(4.4 kV) sürenin etkisinin optik mikroskop görüntüleri A) 10 sn B) 20 sn

Özellikle 4.4 kV voltaj değeri için 10 ve 20 saniyelik uçurma sürelerindeki kaotik yapı ve toplanan nanofiber miktarı net şekilde ayırt edilebilmektedir.

Paralel Plakalar Kullanarak Gerçekleştirilen Deneyler

İğne ucuna uygulanan voltaj, polimer jetinin uçurulma süresi ve paralel plakalara uygulanan sinyallerin frekansı sabitken polimer çözeltisindeki polimer konsantrasyonunun etkisi

Paralel plakalar kullanılarak yapılan deneylerde, paralel plakalara uygulanan sinyallerin frekans etkisi ve polimer jetinin uçurulma süresi etkisine bakılmıştır. Bundan sonra, 4 farklı PVP konsantrasyonunda polimer çözeltisi hazırlanarak, fiber oluşumundaki etkileri gözlenmiştir. Bu etkinin anlaşılabilmesi için %6, %8, %10 ve %12 PVP konsantrasyonuna sahip polimer çözeltileriyle deneyler gerçekleştirilmiştir. İğne ucuna uygulanan voltaj 4.4 kV, paralele plakalara uygulanan sinyal frekansları 10 kHz-100 Hz ve polimer jetinin uçurulma süresi 5 sn olarak ayarlanıp sonuçlar optik mikroskopta gözlenip karşılaştırılmıştır.



Şekil 9 Paralel plakalı deneylerde PVP konsantrasyonunun etkisi A)%6 PVP B) %8 PVP C) %10 PVP D) %12 PVP

Optik mikroskop görüntülerine bakıldığında, polimer konsantrasyonunun etkisi ile ilgili olarak; konsantrasyon arttıkça daha yoğun fiber oluşumu göze çarparken, fiberlerin tüm konsantrasyon değerlerinde yönlenebildikleri söylenebilir. Fiber oluşumlarının kaotik yapıdan uzak olduğu da görülmektedir. Ancak sonuçların daha detaylı yorumlanabilmesi için TEM görüntüleri daha önemlidir.

<u>İğne ucuna uygulanan voltaj ve polimer jetinin uçma süresi sabitken paralel</u>

<u>plakalara uygulanan sinyallerin frekans etkisi</u>

Çift silindirik elektrotlu düzeneğe paralel plakalarda dahil edilerek yapılan deneylerde, paralel plakalara sinyal üreteci aracılığıyla sinyaller uygulanmıştır. Önce iğne ucuna uygulanan voltaj ile polimerin uçma süresi sabit tutularak, paralel plakalara uygulanana sinyallerin frekansları değiştirilmiştir ve oluşan nanofiberler optik mikroskopta gözlemlenmiştir. Bu düzenekte toplayıcı plaka ile iğne ucu arasındaki mesafe 12 cm, silindirik elektrotlar arası mesafe 3,5 cm ve paralel

plakalarla geniş silindirik elektrot arası mesafede 3,5 cm olarak ayarlanmıştır. Voltaj değeri 4.9 kV'de sabit tutulurken, paralel plakalardan alt kısımda bulunan plakaların frekansı 100 Hz'e sabitlenmiştir, her iki plakaya uygulanan sinyallerin genliği 200 V olarak ayarlanmıştır ve üst plakalara uygulanan sinyalin frekansı 5 kHz ve 10 kHz değerleri için sırasıyla 5,10 ve 20 saniyelik sürelerle deneyler gerçekleştirilmiştir.





Şekil 10 İğne ucuna uygulanan voltaj(4.9 kV) ve süre(5 sn) sabitken frekansın etkisi A) 5 kHz B) 10 kHz





Şekil 11 İğne ucuna uygulanan voltaj(4.9 kV) ve süre(10 sn) sabitken frekansın etkisi A) 5 kHz B) 10 kHz





Şekil 12 İğne ucuna uygulanan voltaj(4.9 kV) ve süre(20 sn) sabitken frekansın etkisi A) 5 kHz B) 10 kHz

Voltaj değeri 4.9 kV iken yapılan deneylerden sonra, minimum voltaj değerindeki nanofiber yönlendirmesini görmek amacıyla iğne ucuna uygulanan voltaj 4.4 kV'a ayarlanmıştır ve 5,10 ve 20 saniye için frekanslar değiştirilerek deneyler gerçekleştirilmiştir(Şekil 4.42, Şekil4.43, Şekil4.44, Şekil4.45, Şekil4.46, Şekil4.47).





Şekil 13 İğne ucuna uygulanan voltaj(4.4 kV) ve süre(5 sn) sabitken frekansın etkisi A) 5 kHz B) 10 kHz



Şekil 14 İğne ucuna uygulanan voltaj(4.4 kV) ve süre(10 sn) sabitken frekansın etkisi A) 5 kHz B) 10 kHz



Şekil 15 İğne ucuna uygulanan voltaj(4.4 kV) ve süre(20 sn) sabitken frekansın etkisi A) 5 kHz B) 10 kHz

<u>İğne ucuna uygulanan voltaj ve paralel plakalara uygulanan sinyallerin</u>

frekansı sabitken polimer jetinin uçma süresi etkisi

Paralel plakalar kullanılarak yapılan son deneyler, iğne ucuna uygulanan voltaj ve plaka frekansları sabit iken polimerin uçuş süresinin etkisini anlayabilmek için gerçekleştirilmiştir. Yüksek güç kaynağında voltaj değeri 4.9 kV'ye ayarlanmıştır. Toplayıcı plaka ile iğne ucu arasındaki mesafe yine 12 cm, slindirik elektrotlar arası 3.5 cm ve paralel plaklar arası 1 cm olmak üzere plakaların geniş silindirik elektrota olan mesafesi de 3.5 cm olarak ayarlanmıştır. Uçuş süresinin etkisinin anlaşılabilmesi için 5, 10 ve 20 saniyelik sürelerde, paralel plaklardan altta bulunan 100 Hz ve üst plaka 5 kHz'e ayarlanmıştır. İkinci denemler için yine 5,10 ve 20 saniyelik uçurma süreleri için plakalar 100 Hz ve 10 kHz'e getirilmiştir. Sonuçlar optik mikroskopta gözlemlenmiştir.



Şekil 16 İğne ucuna uygulanan voltaj(4.9 kV) ve paralel plaklara uygulanan sinyallerin frekansları sabitken(5 kHz-100 Hz) polimer jetinin uçma süre etkisinin optik mikroskop görüntüleri A) 5 sn B) 10 sn C) 20 sn



Şekil 17 İğne ucuna uygulanan voltaj(4.9 kV) ve paralel plaklara uygulanan sinyallerin frekansları sabitken(10 kHz-100 Hz)polimer jetinin uçma süre etkisinin optik mikroskop görüntüleri A) 5 sn B) 10 sn C) 20 sn

Bu deneylerin sonucunda artan süreyle birlikte daha fazla nanofiber oluşumu gözlemlenmiştir. Ayrıca paralel plakalar kullanılarak yapılan deneylerde sürenin etkisinin anlaşılabilmesi açısından alt plaka ve üst plakalara uygulanan sinyallerin frekansları sırasıyla 100 Hz-5 kHz ve 100 Hz-10 kHz ve genlikleri de 200 V olarak ayarlanmıştır ve her iki frekans değeri için de nanofiberlerin yönlenebildikleri, kaotik yapıdan uzak olabilmeleri ve yer yer belirli bir düzen oluşturabildikleri görülmüştür.