



**İSTANBUL MEDENİYET  
ÜNİVERSİTESİ**

FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

NANOBİLİM VE NANOMÜHENDİSLİK ANABİLİM DALI

NANOBİLİM VE NANOMÜHENDİSLİK BİLİM DALI

KONİK VE ÇİFT-KONİK GEOMETRİLİ NANOGÖZENEKLERDE  
PARÇACIK DUYARLILIĞI SİMÜLASYONU

(YÜKSEK LİSANS TEZİ)

Durdane YILMAZ

HAZİRAN-2017



**İSTANBUL MEDENİYET  
ÜNİVERSİTESİ**

FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

NANOBİLİM VE NANOMÜHENDİSLİK ANABİLİM DALI

NANOBİLİM VE NANOMÜHENDİSLİK BİLİM DALI

KONİK VE ÇİFT-KONİK GEOMETRİLİ NANOGÖZENEKLERDE  
PARÇACIK DUYARLILIĞI SİMÜLASYONU

(YÜKSEK LİSANS TEZİ)

Durdane YILMAZ

Tez Danışmanı:

Yrd.Doç.Dr.Ali DİNLER

HAZİRAN-2017

Bu tez çalışmasından elde edilen *rektifikasyon* sonuçlarından yola çıkılarak hazırlanan “*Ionic Current Rectification Analysis in Conic, Single-Tip Double-Conic and Double-Tip Double-Conic Geometric Nanopores*” başlıklı sunum 22-25 Ekim 2017 tarihinde Antalya’da gerçekleşecek olan *Nanoscience & Nanotechnology Conference (NANO\_TR13)* sempozyumunda bildiri olarak sunulacaktır.

Ayrıca *parçacık analizi* bölümlerinde elde ettiğimiz sonuçlar makale olarak yayımlanacaktır.



## ONAY

İstanbul Medeniyet Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü'nde Yüksek Lisans öğrencisi olan Durdane YILMAZ'ın hazırladığı ve jüri önünde savunduğu “Konik ve Çift-Konik Geometrilik Nanogözeneklerde Parçacık Duyarlılığı Simülasyonu” başlıklı tez başarılı kabul edilmiştir.

### JÜRİ ÜYELERİ

#### **Tez Danışmanı:**

Yrd.Doç.Dr.Ali Dinler

İstanbul Medeniyet Üniversitesi

### İMZA

.....

#### **Üyeler:**

Yrd.Doç.Dr.Ali Dinler

İstanbul Medeniyet Üniversitesi

.....

Yrd.Doç.Dr. Semran İpek Küskü

İstanbul Medeniyet Üniversitesi

.....

Yrd.Doç.Dr. Cihangir Özemir

İstanbul Teknik Üniversitesi

.....

**Tez Savunma Tarihi:** 9 Haziran 2017

## ETİK İLKELERE UYGUNLUK BEYANI

İstanbul Medeniyet Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü bünyesinde hazırladığım bu Yüksek Lisans tezinin bizzat tarafımdan ve kendi sözcüklerimle yazılmış orijinal bir çalışma olduğunu ve bu tezde;

- 1- Çeşitli yazarların çalışmalarından faydalandığımda bu çalışmaların ilgili bölümlerini doğru ve net biçimde göstererek yazarlara açık biçimde atıfta bulunduğumu;
- 2- Yazdığım metinlerin tamamı ya da sadece bir kısmı, daha önce herhangi bir yerde yayımlanmışsa bunu da açıkça ifade ederek gösterdiğimi;
- 3- Alıntılanan başkalarına ait tüm verileri (tablo, grafik, şekil vb. de dahil olmak üzere) atıflarla belirttiğimi;
- 4- Başka yazarların kendi kelimeleriyle alıntıladığım metinlerini kaynak göstererek atıfta bulunduğum gibi, yine başka yazarlara ait olup fakat kendi sözcüklerimle ifade ettiğim hususları da istisnasız olarak kaynak göstererek belirttiğimi,

beyan ve bu etik ilkeleri ihlal etmiş olmam halinde bütün sonuçlarına katlanacağımı kabul ederim.

Durdane Yılmaz

## TEŐEKKÜR

Yüksek lisans eğitiminin her aşamasında bilgi, tecrübe ve önerileriyle destek ve katkılarını esirgemeyen, bu çalışmanın şekillenip vücut bulmasını sağlayan müteşekkir olduğum danışman hocam Sayın Yrd.Doç.Dr. Ali DİNLER' e,

Her türlü bilgi ve birikimini paylaşarak bu çalışmada büyük katkılar sunan değerli hocam Sayın Yrd.Doç.Dr. Kaan KEÇECİ'ye,

Tüm sorularımı büyük bir sabırla cevaplandırarak destek olan Dr. Dila KAYA'ya,

Başta sevgili annem olmak üzere desteklerini bir an olsun eksiltmeyen canım aileme,

En içten teşekkürlerimi sunarım.

Mayıs, 2017

Durdane YILMAZ

# İÇİNDEKİLER

	<u>Sayfa</u>
KISALTMALAR DİZİNİ .....	vi
ŞEKİL ve TABLO LİSTESİ .....	vii
ÖZET ve ANAHTAR KELİMELER .....	xi
ABSTRACT and KEYWORDS .....	xiii
1.GİRİŞ .....	1
1.1 Literatür Taraması .....	2
2.MODELLEME .....	6
2.1 Nanogözenek Geometrisi .....	6
2.2 Sonlu Elemanlar Yöntemi ile COMSOL Simülasyonları .....	8
3.SİNYAL OLUŞUMU .....	12
3.1 Rektifikasyon .....	12
3.1.1 Rektifikasyon için kapasitif model .....	13
3.2 Bifazik Sinyal Oluşumu .....	15
3.3 Sinyal Oluşumunu Etkileyen Parametreler .....	16
3.3.1 Sinyal oluşumunun gözenek geometrisine bağımlılığı .....	17
3.3.2 Sinyal oluşumunun iyon konsantrasyonuna bağımlılığı .....	19
3.3.3 Sinyal oluşumunun potansiyel farkına bağımlılığı .....	21
3.3.4 Sinyal oluşumunun basınç farkına bağımlılığı .....	22
3.3.5 Sinyal oluşumunun nanogözenek ve parçacık yüzey yüklerine bağımlılığı .....	24
4.VALİDASYON .....	27
5.SİNYAL DUYARLILIĞI .....	36
5.1 Konik, Tek-Tip/Çift-Konik ve Çift-Tip / Çift-Konik Gözenek Geometrilerinde Rektifikasyon Oluşumunun Kıyaslanması .....	36

## Sayfa

5.2 Konik, Tek-Tip/Çift-Konik ve Çift-Tip/Çift-Konik Gözenek Geometrisinde Parçacık Boyutuna Duyarlılığın Kıyaslanması.....	39
5.3 Parçacık Boyutuna Göre Sinyal Oluşumu .....	42
5.3.1 Aynı boyuttaki parçacıkların geçiş sinyal belirginliklerine göre uygun geometrinin belirlenmesi .....	46
5.3.2 Yakın boyuttaki parçacıkların geçiş sinyallerine göre geometri duyarlılığının belirlenmesi.....	48
5.4 TARTIŞMA.....	52
6. SONUÇ.....	57
KAYNAKÇA .....	59
ÖZGEÇMİŞ.....	62



## KISALTMALAR

DNA	Deoksribo Nükleik Asit
DSA	Direnç Sinyali Algılama
ADSA	Ayarlanabilir Direnç Sinyali Algılama
AKM	Atomik Kuvvet Mikroskobu
NİA	Nanoparçacık İz Analizi
AET	Alan Etkili Transistör
SE	Sonlu Elemanlar
EÇT	Elektrik Çift Tabaka
EOA	Elektroosmotik Akış
RF	Rektifikasyon Faktörü
TEM	Taramalı Elektrokimyasal Mikroskobu

## ŞEKİL LİSTESİ

	<u>Sayfa</u>
Şekil 1. Coulter Prensibine Dayalı Nanogözeneklerin Çalışma Mekanizması.....	6
Şekil 2. Konik, Tek-Tip Çift- Konik, Çift-Tip Çift-Konik Nanogözenek Modelleri.....	7
Şekil 3.a. Geometri ve Sınır Koşulları.....	10
Şekil 3.b Mesh ve Sınır Koşulları.....	10
Şekil 4.a. Doğru Polarlanmış Diyot.....	13
Şekil 4.b. Ters Polarlanmış Diyot.....	13
Şekil 5. Kapasitif Modele Göre Nanogözenekte İyon Taşınımı.....	13
Şekil 6. Kapasitif Modele Göre Nanogözenek İçerisinde İyon Birikimi-Tükenimi	14
Şekil 7. Nanogözenek İyon Birikim/Tükenim Modeli.....	15
Şekil 8. Potansiyel Polarizasyonuna Göre Sinyal Oluşumu için Deneysel Sonuçları.	27
Şekil 8.a. -0.1V'da Konik Gözenekten Parçacık Geçiş Sinyali.....	28
Şekil 8.b. -0.3V'da Konik Gözenekten Parçacık Geçiş Sinyali.....	29
Şekil 8.c. -0.5V'da Konik Gözenekten Parçacık Geçiş Sinyali.....	29
Şekil 8.d. -1V'da Konik Gözenekten Parçacık Geçiş Sinyali.....	30
Şekil 9. Nanogözenek ve Parçacık Yüzey Yüklerine Bağlı Sinyal Oluşumu için Simülasyon Verisi.....	30
Şekil 9.a Parçacık Yüzey Yükü Değişimine Göre Gözenekten Geçiş Sinyali.....	31
Şekil 9.b. Gözenek Yüzey Yükü Değişimine Göre Gözenekten Geçiş Sinyali.....	31
Şekil 10. Potansiyel ve Basınç Polaritelerine Bağlı Sinyal Oluşumu için Deneysel Verisi.....	32
Şekil 10.a. Pozitif Basınç ve Pozitif Potansiyel Altında Parçacığın Gözenekten Geçiş Sinyali.....	33

## Sayfa

<b>Şekil 10.b.</b> Pozitif Basınç ve Negatif Potansiyel Altında Parçacığın Gözenekten Geçiş Sinyali .....	33
<b>Şekil 10.c.</b> Negatif Basınç ve Pozitif Potansiyel Altında Parçacığın Gözenekten Geçiş Sinyali .....	34
<b>Şekil 10.d.</b> Negatif Basınç ve Negatif Potansiyel Altında Parçacığın Gözenekten Geçiş Sinyali.....	35
<b>Şekil 11.a.</b> Konik Nanogözenekte Rektifikasyon Sinyali Oluşumu.....	37
<b>Şekil 11.b.</b> Tek-Tip Çift-Konik Nanogözenekte Rektifikasyon Sinyali Oluşumu..	38
<b>Şekil 11.c.</b> Çift-Tip Çift-Konik Nanogözenekte Rektifikasyon Sinyali Oluşumu..	38
<b>Şekil 12.a.</b> Konik Nanogözenekten Parçacık Geçiş Sinyali Şekil Analizi.....	39
<b>Şekil 12.b.</b> Tek-Tip Çift-Konik Nanogözenekten Parçacık Geçiş Sinyali Şekil Analizi .....	40
<b>Şekil 12.c.</b> Çift-Tip Çift-Konik Nanogözenekten Parçacık Geçiş Sinyali Şekil Analizi (Yukarı Tip).....	40
<b>Şekil 12.d.</b> Çift-Tip Çift-Konik Nanogözenekten Parçacık Geçiş Sinyali Şekil Analizi (Aşağı Tip).....	41
<b>Şekil 13.a.</b> Konik Gözenek Geometrisinde 120nm-260nm-360nm Çaplı Parçacıkların Algılanma Hassasiyeti.....	43
<b>Şekil 13.b.</b> Tek-Tip Çift-Konik Gözenek Geometrisinde 120nm-260nm-360nm Çaplı Parçacıkların Algılanma Hassasiyeti .....	44
<b>Şekil 13.c.</b> Çift-Tip Çift-Konik Gözenek Geometrisinde 120nm-260nm-360nm Çaplı Parçacıkların Algılanma Hassasiyeti.....	44

<b>Şekil 14.a.</b> Konik Gözenek Geometrisinde 120nm Çaplı Parçacığın Algılanma Hassasiyeti.....	46
<b>Şekil 14.b.</b> Tek-Tip Çift-Konik Gözenek Geometrisinde 120nm Çaplı Parçacığın Algılanma Hassasiyeti.....	47
<b>Şekil 14.c.</b> Çift-Tip Çift-Konik Gözenek Geometrisinde 120nm Çaplı Parçacığın Algılanma Hassasiyeti.....	47
<b>Şekil 15.a.</b> Konik Gözenek Geometrisinde 240nm-260nm-280nm Çaplı Parçacıkların Algılanma Hassasiyeti.....	49
<b>Şekil 15.b.</b> Tek-Tip Çift-Konik Gözenek Geometrisinde 240nm-260nm-280nm Çaplı Parçacıkların Algılanma Hassasiyeti.....	50
<b>Şekil 15.c.</b> Çift-Tip Çift-Konik Gözenek Geometrisinde 240nm-260nm-280nm Çaplı Parçacıkların Algılanma Hassasiyeti.....	50
<b>Şekil 16.</b> Gövde Kısmı İçe Doğru Kavisli Olarak İdealize Edilmiş Tek-Tip Çift-Konik Nanogözenek Geometrisi.....	54
<b>Şekil 17.</b> Gövde Kısmı Dışa Doğru Kavisli Olarak İdealize Edilmiş Tek-Tip Çift-Konik Nanogözenek Geometrisi.....	55
<b>Tablo I.</b> Konik, Tek-Tip Çift-Konik ve Çift-Tip Çift-Konik Geometrili Gözeneklerden 120nm-260nm-360nm Çaplı Parçacık Geçişlerinde Elde Edilen Akım Sinyal Farkları.....	45

**Tablo II.** Konik, Tek-Tip Çift-Konik ve Çift-Tip Çift-Konik Geometrilili

Gözeneklerden 120nm Çaplı Parçacık Geçişlerinde Elde Edilen Akım

Sinyal Farkları.....47

**Tablo III.** Konik, Tek-Tip Çift-Konik ve Çift-Tip Çift-Konik Geometrilili

Gözeneklerden 240nm-260nm-280nm Çaplı Parçacık Geçişlerinde Elde

Edilen Akım Sinyal Farkları.....51



## ÖZET

*Nanogözeneklerin* kullanımı, iyonik akım sinyalini okuyarak parçacık geçişini algılama prensibine dayanan bir tekniktir. *Nanogözenekler*, DNA analizi başta olmak üzere hayvan/bitki hücreleri ile bakteriyofaj ve virüs gibi mikroorganizmalar ve çeşitli diğer nanoparçacıklar hakkında bilgi edinilmesinde kullanılır. Bir çeşit *biyosensör* olan *nanogözenekler* elektrolit dolu bir ortamı ikiye ayıran yalıtkan bir membranın üzerinde bulunur. Ortama potansiyel (ve basınç) farkı uygulandığında elektrolit ve beraberinde bulunan partiküller harekete geçer ve gözenekten geçişleri sırasında meydana gelen akım değişimi ile sinyal okuması yapılarak parçacığın şekli ve boyutu hakkında veri elde edilir. Sinyaller *kondaktif*, *rezistif* veya *bifazik* olabilir, bu farklılıklar gözenek geometrisi, membran yükü ve parçacık yüzey yükü, iyonik konsantrasyon, potansiyel fark parametrelerine bağlı olarak oluşur. Asimetrik geometrili *nanogözeneklerin* karakteristiği olan *rektifikasyon* davranışı da incelenmeye değer bir başka özelliktir. *Rektifikasyon* elektrik devrelerindeki diyot devre elemanının özelliğine benzer bir davranış olup akımın bir yönde daha belirgin gerçekleşirken diğer yönde az gerçekleşmesidir.

Bu çalışmada, *konik*, *tek-tip çift-konik* ve *çift-tip çift-konik nanogözenek* geometrilerinde öncelikle iyonik akımın gösterdiği *rektifikasyon* davranışları incelenmiştir. Daha sonra farklı boyuttaki parçacıkların *konik*, *tek-tip çift-konik* ve *çift-tip çift-konik* geometrili üç farklı *nanogözenekten* geçişleri için *MATHEMATICA™ Random Choice* fonksiyonu ile rastgele parçacık geçiş sıralaması oluşturulmuştur. Parçacıkların gözeneklerden geçişleri sırasında oluşturdukları akım(direnç) sinyalleri *Comsol Multiphysics™* programı ile elde edilmiştir. Oluşan sinyaller *MATLAB™* programında okutularak parçacıkların gözenekten peş peşe geçişleri ile oluşan sinyal grafikleri elde edilmiştir ve bu şekilde üç farklı geometrinin parçacık geçişlerine karşı gösterdikleri duyarlılıklarının kıyaslaması için yeni sonuçlar elde edilmiştir. Sinyal analizi yapıldığında *tek-tip çift-konik* gözenek geometrisinin parçacık algılama ve boyut analizlerinde daha başarılı olduğu görülmüştür. Küçük çaplı parçacık geçişlerinde ise *çift-tip çift-konik* geometrili gözenekten daha yüksek hassasiyet elde edilmiştir. *Konik* geometrili gözenek ise diğer ikisine göre daha zayıf sinyal sağlamaktadır. Son bölümde elde edilen veriler dikkate alınarak parçacık duyarlılığı için en uygun *nanogözenek* geometrisi belirlenmiş ve bu geometri idealize edilerek yeni bir gözenek geometrisi önermesi yapılmıştır.

Anahtar Kelimeler: Nanogözenek, Rektifikasyon, Simülasyon, Parçacık duyarlılığı, Sinyal Analizi



## ABSTRACT

The use of nanopores is a technique based on the principle of detecting particle translocation by reading the ionic current signal. Nanopores provide information, particularly during DNA analysis, on microorganisms such as bacteriophages and viruses, as well as other nanoparticles. Nanopores, which are some sort of biosensor, reside on an insulating membrane that bisects an electrolyte-filled environment. When the potential or pressure difference is applied, the electrolyte and the accompanying particles translocate from one cell to other, then the signal is read by the flow drop that occurs during the passage of particles through the pore, and the data about the shape and size of the particle is obtained. The signal can be conductive, resistive or biphasic, these differences occur depending on pore geometry, surface charges, ionic concentration, potential difference parameters.

The rectification behavior, which is characteristic of asymmetric geometric nanopores, is another feature worth investigating. Rectification is a behavior similar to that of a diode element in an electrical circuit, where the current is more pronounced in one direction than the reverse direction.

In this study, rectification behaviours of ionic currents were investigated in conical, single-tip double-conic and double-tip double-conic nanopore geometries. Then, the signal differences that created by particles at different sizes during the translocation from three different nanopore geometries, which are conical, single-tip double-conic and double-tip double-conic, are obtained using *Comsol Multiphysics*<sup>TM</sup> and *MATLAB*<sup>TM</sup> programmes, also by comparing the sensitivity of these three different geometries against particle translocations. When the signal analysis was performed, single-tip double-conic pore geometry was found to be more effective in particle detection and particle size analysis. For small particles, higher sensitivity is achieved with double-tip double-conic pore than other two geometries. Conic geometric pore provides weaker signals than the other two. At the end of this study, considering the novel results obtained in the simulations, a superior nanopore geometry for particle sensitivity is designed and proposed.

Keywords: Nanopores, Rectification, Simulation, Particle sensitivity, Signal Analysis



# 1.GİRİŞ

Teknoloji çağı ile meydana gelen gelişmeler birçok alanda yeniliklerin önünü açmıştır. Bu alanlardan birisi de nanoteknolojidir. Metrenin milyarda bir ölçeğine karşılık gelen *nano* kelimesi bilim insanları için yeni bir dünyanın keşfine kapı aralar. *Nano* boyuttaki yapıların bilimin ilgi alanına girmesi birçok problem için çözüm olanağı sunsa da metrenin milyarda biri ölçeğindeki bu yapıların manipüle edilebilmesi ve biofizik özelliklerinin anlaşılabilmesi büyük sorun teşkil eder.

*Nanoparçacıkların* dinamiklerini kontrol edebilmek hem çok küçük hem de çok hızlı olan bu parçacıklarla yapılan araştırmalar sırasında karşılaşılan birçok zorluğun üstesinden gelmeyi sağlayacaktır. Bilimsel gelişmede büyük yer sahibi olan *nanomateryallerin* tespit ve karakterizasyonu için, ilaç iletimi araştırmaları, *biyoalgılama*, endüstriyel *nanoteknoloji* uygulamalarındaki *nanopartikül* atık salınımı gibi farklı disiplinlerde birçok uygulama mevcuttur. Teknolojik araştırmaların hemen her alanında öncü metotların gelişmesini sağlayan *nanoteknolojinin* en etkili olduğu alanlardan birisi de *nanogözenek* teknolojisidir. Bir çeşit *biyosensör* olan *nanogözenekler*, *nanopartiküllerin* fiziksel, kimyasal ve biyolojik özelliklerinin anlaşılabilmesi için büyük potansiyel taşır. *Nanogözenek* yoluyla kütle taşınımı, gözeneğin nano boyuttaki benzersiz geometrisi, gözenek duvarı veya iyonik akışkan ile nanoparçacık arasındaki güçlü arayüzey etkileşimleri sayesinde diğer uygulamalardan daha üstün özellikler sergileyebilmektedir. *Mikro/nano akışkanların* ve içerisinde bulunan *nanopartiküllerin* davranışlarının anlaşılması için tasarlanan ve bir çeşit çip üzeri laboratuvar (*lab-on-a-chip*) şeklinde dizayn edilmeye çalışılan *nanogözeneklerin* temelinde bulunan *DSA*'nın en büyük özelliği, belli bir ortamdaki her bir parçacığa özel bilgi edinimi sağlamasıdır. *Nanogözenekler* ile ilgili ilk çalışmalar silindirik biçimli gözenekler için yapılmıştır [5]. Diğer yandan asimetric olan *konik nanogözenekler*, sensör özelliklerinin yanı sıra diyot benzeri bir davranış olan iyonik akım *rektifikasyonu* özelliğine de sahiptir[13-16]. Gözenek diyot benzeri davranış sergileyerek potansiyelin bir polaritesinde yüksek iyonik akışa izin verirken aynı potansiyel değerinde fakat karşıt polaritede akışa tam olarak izin

vermez. *Nanogözenek* tabanlı sensörlerin algılama kabiliyetleri iyon taşınımının oluşturduğu akıma dayanır. İyonik taşınımın hareketlerini ve potansiyelini belirleyen *nanogözeneklerin* sergilediği bu iyonik akım *rektifikasyonu*, *nanogözeneklerin* iyonik diyot ve transistör uygulamalarında kullanılabileceği fikri ile de karşımıza çıkar.

*Nanogözenekler* kullanılarak yapılacak her uygulamada doğru sonucu elde edebilmek için uygun parametrelerin belirlenebilmesi büyük önem taşır. Bunun için yapılan çalışmaları göz önünde bulundurarak hazırladığımız bu tezde öncelikle *nanogözeneklerin rektifikasyon* davranışlarına ve oluşturdukları sinyallerin şekil ve büyüklüklerine etki eden değişkenleri inceledik. Daha sonra *nanogözeneklerin* en önemli kullanım alanlarından birisi olan parçacık analizinde uygun gözenek geometrisini belirleyebilmek için üç farklı gözenek geometrisinde simülasyonlar oluşturularak parçacık geçişleriyle elde ettiğimiz sinyalleri kullanarak geometri kıyaslaması yaptık.

## 1.1 Literatür Taraması

*Nanogözenekler* birçok disiplinde kullanılabilmektedir. Bizim bu çalışmada ele alacağımız uygulama alanı, *nanogözeneklerin* kullanımı ile akım sinyalini okuyarak parçacık algılama prensibine dayanan tekniktir.

İlk olarak Wallace H. Coulter'ın 1950'lerde kan hücrelerinin sayımı için geliştirdiği teknik, zamanla gelişim göstererek farklı ortamlardaki kan hücrelerinin, virüs ve bakteriyofaj içeren mikroorganizmaların algılanmasında, DNA ve protein analizinde kullanılan yöntemlere dönüştürülmüştür[1].

Temelde, parçacığın gözenekten geçerken iyon akışını azaltarak akımda düşmeye sebep olacağı prensibine dayanır. Meydana gelen düşüşün direnç sinyali olarak algılanmasına dayanan bu metodun gelişimindeki dönüm noktası, 1996'da Kasianowicz ve arkadaşları[2] tarafından gerçekleştirilen biyolojik  *$\alpha$ -Hemolysin* gözeneği ile tek sarmal DNA'nın tespiti olmuştur. Bu gelişme, parçacık karakterizasyonu için DSA tekniğine dayalı araştırmaların ve uygulamaların hızlanmasını sağlamıştır.

Kullanım alanları arasında ilaç iletimi, klinik teşhis ve tedavi gibi uygulamaları barındıran *nanopartiküllerin* potansiyellerinin tam olarak anlaşılabilmesi için, çok iyi karakterize edilmeleri gerekir. Nano boyuttaki parçacık davranışlarının analizinde karşılaşılan zorlukların üstesinden *nanogözeneklerin* sinyal duyarlılığı ile gelinebilmektedir[5]. DSA tekniği

konsantrasyon, boyut, yük, iletkenlik gibi birçok parametreyi içerdiğinden bu alandaki gelişmeler parçacığın bulunduğu ortam hakkında birçok bilgi elde edilmesine olanak sağlar. Bu amaçla geliştirilen metotlardan birisi de **DSA**'nın adaptasyonu ile oluşturulan **ADSA** tekniğidir. Diğer parçacık algılama yöntemleri ile karşılaştırıldığında, elastomerik gözenek boyutu, germe veya gevşetme yoluyla ayarlanarak numune ile uyumlu hale getirilebildiğinden **ADSA**'nın **AKM** ve **NİA** ile birlikte genel bir üstünlük sağladığı görülmüştür [3,4].

Parçacık analizi için geliştirilen bir başka metot da gözenekten geçen parçacığın oluşturduğu akımın **TEM** kullanımı ile algılanmasına yöneliktir[21]. Gözeneğin geniş girişine yerleştirilen **TEM** probu, parçacığın gözeneğin küçük girişinden geçtiği anda oluşturduğu akımı okuyarak boyut, elektriksel yük ve konsantrasyona bağlı parçacık analizi sağlar.

*Nanogözeneklerin* parçacık duyarlılığı analizlerinde elde edilen sonuçları belirleyen birçok faktör vardır. Basınç, gözenek ve parçacık yüzey yükü, uygulanan potansiyel, iyon konsantrasyonu, gözenek geometrisi ve parçacık boyutu en etkili parametrelerdir. *Lan ve arkadaşlarının* yaptığı çalışmada [16] *konik* şekilli cam *nanogözeneklerde rektifikasyon* oluşumunun basınca bağlılığı incelenmiş, basınç kaynaklı akışın küçük ve büyük gözeneklerde farklı davranış gösterdiği **SE** simülasyonlarıyla da uyumlu olarak belirtilmiştir. Başka bir çalışmada da [20] yine basınca bağlı olarak parçacık geçiş analizi yapılmıştır. *Konik* geometrili *nanogözenek* boyunca basınç ve hız dağılımının teoriksel ve **SE** analizi geliştirilmiştir. Parçacık geçiş frekansı ve sinyal dalga şekillerinin uygulanan basınca, gözeneğin uç ve taban yarıçapına ve çözelti viskozitesine bağlılığı gösterilmiştir.

*Weatherall ve Willmott'un* çalışmasında [15] farklı yüzey yüklerine sahip 4 farklı parçacık grubu ile *konik nanogözeneklerde kondaktif ve bifazik* sinyal şekillerinin oluşumu incelenmiştir. Uygulanan basınç ve potansiyel polaritelerinin sinyal oluşumu üzerindeki etkileri gösterilmiştir. Farklı yüzey yüklerine bağlı parçacıkların konsantrasyon, potansiyel değişimlerinde ve membran gerilmesi durumunda gösterdikleri davranışlar belirtilmiştir.

*Konik nanogözeneklerin* karakteristik özelliklerinden biri olan *rektifikasyon* davranışının yüzey yüklerine bağlı olduğu bilinmektedir. Siwy, yaptığı çalışmada [13] bu davranışın simetrik geometrilerde hangi şartlarda gözlemlendiğini, asimetrik geometrilerin yüzey yükü, konsantrasyon ve gözenek giriş boyutu parametrelerine göre sergiledikleri *rektifikasyon* davranışlarını incelemiştir. Yine gözenek ve parçacık yüzey yüklerine bağlı olarak, *Chen ve arkadaşları* gözenek geometrisinin etkilerinin de görüldüğü çalışmalarında [7] silindirik *nanogözenek* boyunca, parçacık geçişinin oluşturduğu *bifazik* sinyalleri (ard arda artış/azalış

veya azalış/artış şeklinde oluşan sinyal dalga şekilleri) ve bu sırada oluşan iyon konsantrasyon dağılımlarını incelemişlerdir.

*Konik nanogözenekler*, nano ölçekteki parçacıklar için güçlü karakterizasyon sağlar, ancak bu boyuttaki parçacıkların hızlarının fazlalığı ve gözenegin algılama bölgesinin çok kısa olması *nanogözeneklerin* bu kabiliyetlerini sınırlar. *German ve arkadaşları* [9] algılanma süresini uzatmak için basınç ve voltaj parametrelerini kullanarak parçacık geçiş hızını ve büyüklüğünü kontrol altına almaya çalışmışlardır.

*Nanoparçacık* algılama mekanizmasının doğasından kaynaklanan zorluklardan birisi de gözenek boyutu ile parçacığın uyuşmamasından kaynaklanan sinyal-gürültü oranının düştüğü ve parçacığın analizi için elde edilen sinyalin belirsiz olduğu durumlardır. Bu zorlukların üstesinden gelebilmek için *Shen ve arkadaşları* [11] *nanogözeneklerin kapasitif* karakterinin modellendiği bir mekanizma önermişlerdir. *Konik* geometrili gözeneğe ön gerilim uygulandığında, gerilimin polaritesine bağlı olarak milyonlarca iyonun toplu hareketini içeren iyon birikimi/tükenimi oluşur. Kapasitörlerin yüklenme/boşalma karakterlerinin benzeri olan bu süreç, sinyali tespit edilebilir seviyeye yükseltir. Bu çalışmada, yapılan kapsamlı simülasyonlar *kapasitif* sinyal mekanizmasını doğrulamakla beraber sinyal büyüklüklerinin gözenek geometrisi, yük yoğunluğu, konsantrasyon parametrelerine bağımlılığını da açıklamıştır.

Gözenek açıklığının parçacığın boyutuna göre ayarlanabilmesi hem parçacık algılama hassasiyetini artırır hem de parçacığın hızını kontrol edebilmeyi sağlar. *Kozak ve arkadaşları*, çalışmalarında [19] gözenegin boyutunun ayarlamasına dayanan **ADSA** tekniği ile gözenek boyunca hareket eden parçacığın üzerine etki eden elektrokinetik ve akışkan kuvvetlerinin kontrol altına alınmasını incelemişlerdir. Ayrıca **ADSA** tekniği gözenek boyutu değiştiğinde akışkan davranışlarındaki ve elektrostatik etkileşimlerdeki değişimleri de görebilmeye olanak sağlar. *Weatherall ve arkadaşları* [6] gözenek boyutunun değiştirilmesine bağlı olarak gözenekten geçen parçacığın yörünge sapmalarını, buna bağlı olarak elde edilen parçacığın algılanma süresindeki ve sinyal genliklerindeki değişimleri ortaya koymuşlardır.

Yüklü parçacıkların *konik* geometrili gözenekten geçişleri sırasında olağandışı sinyal şekilleri oluştuğu gözlenmektedir. Sinyal dalga şekillerinin ve iyonik yük hareketlerinin üzerinde büyük etkisi olduğu bilinen yüzey yükleri *Lan ve arkadaşlarının* yaptıkları çalışmada [12] incelenmiştir. Bu olağandışı *bifazik* sinyal şekillerinin yüzey yüklerine, uygulanan potansiyelin polarite ve büyüklüğüne bağımlılığı simülasyonlarla da desteklenerek

gösterilmiştir. *Constantin ve Siwy* ise yüzey yük etkilerini başka bir oryantasyonla ortaya koymuşlardır [8]. *Bipolar* (çift kutuplu) olarak dizayn edilen membranın potansiyele bağlı *rektifikasyon* davranışının incelendiği çalışmada ayrıca *rektifikasyonun* tersinirliği de gösterilmiştir.

*Nanogözenekler*le parçacık analizinde **DNA** kullanılması, maliyetinin düşük olması, dirençli ve kolay uyum sağlayabilen yapıda olmasından dolayı polimer bilimi ve mühendisliği için de kullanılabilecek bir modeldir. *Rems ve arkadaşları* [17] *mikro/nano akışkan* ortamlarda **DNA**'nın davranışının uygulamalarıyla birlikte incelendiği derleme makalelerinde polimer bilimi için de bir çerçeve oluşturmuşlardır.

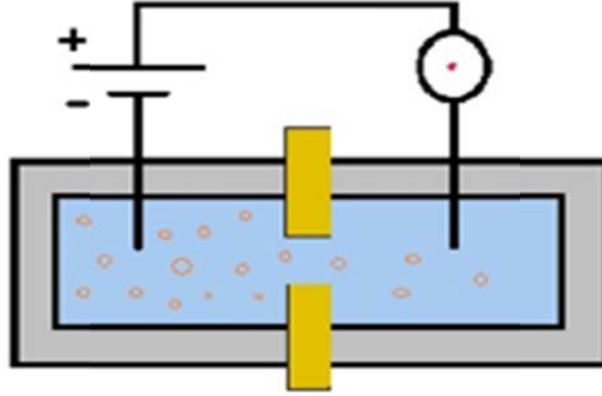
*Nanogözeneklerin* parçacık duyarlılığını etkileyen önemli parametrelerden birisi de ortamdaki elektrolit konsantrasyonudur. *Chen ve arkadaşları* [10] **DNA** tespiti sırasında ortamdaki konsantrasyon yoğunluğunun gözenegin duyarlılığına etkisini göstermek için yaptıkları deney ve simülasyonlar ile asimetric *nanogözeneklerin* sinyal duyarlılığının ve oluşan sinyal şekillerinin elektrolitte kullanılan bileşiğin viskozitesine ve konsantrasyonun yoğunluğuna bağımlılığını göstermişlerdir.

Biz bu tezde yaptığımız çalışmaları, *Kaya ve arkadaşlarının* **DNA**'nın *nanogözenekten* geçişi sırasında oluşturduğu direnç sinyaline gözenek geometrisinin etkisini inceledikleri çalışmalarından [25] yola çıkarak oluşturduk. Farklı boyutlarda oluşturduğumuz *nanoparçacıkların* farklı geometrilerle simüle ettiğimiz *nanogözeneklerden* geçişleri sırasında oluşturdukları sinyallerle parçacık analizini gerçekleştirdik. *Konik, tek-tip çift-konik ve çift-tip çift-konik* olarak simüle ettiğimiz *nanogözeneklerden* farklı boyutlardaki parçacıkların rastgele oluşturduğumuz bir sıralamayla geçtiklerini varsayarak gözeneklerin parçacıkların geçişi sırasında gösterdikleri duyarlılık ve hassasiyet ölçümlerini yaptık. Küçük çaplı *nanoparçacıkların* geçişiyle oluşan sinyallerin en iyi *çift-tip çift-konik* geometrili *nanogözenekten* elde edildiğini, diğer tüm hassasiyet ve duyarlılık ölçümlerimizde en iyi sonuçları *tek-tip çift-konik* geometrili gözenegin sağladığını gördük. Elde ettiğimiz sonuçlardan yola çıkarak parçacık analizinde en iyi sinyali elde edebilmek için idealize edilmiş yeni bir gözenek geometrisi önerisinde bulunduk.

## 2. MODELLEME

### 2.1 Nanogözenek Geometrisi

*Nanogözeneklerin* mekanizması AET'lerin çalışma prensibine dayanır. Düzenek olarak sistem, iletken elektrolit çözeltisi ile doldurulmuş iki rezervuarın ortasına yerleştirilmiş *nano* boyutta gözenek içeren yalıtkan bir membran ve yine her iki rezervuara yerleştirilmiş elektrotlardan oluşur.



**Şekil 1.** Coulter Prensibine Dayalı Nanogözeneklerin Çalışma Mekanizması [27]

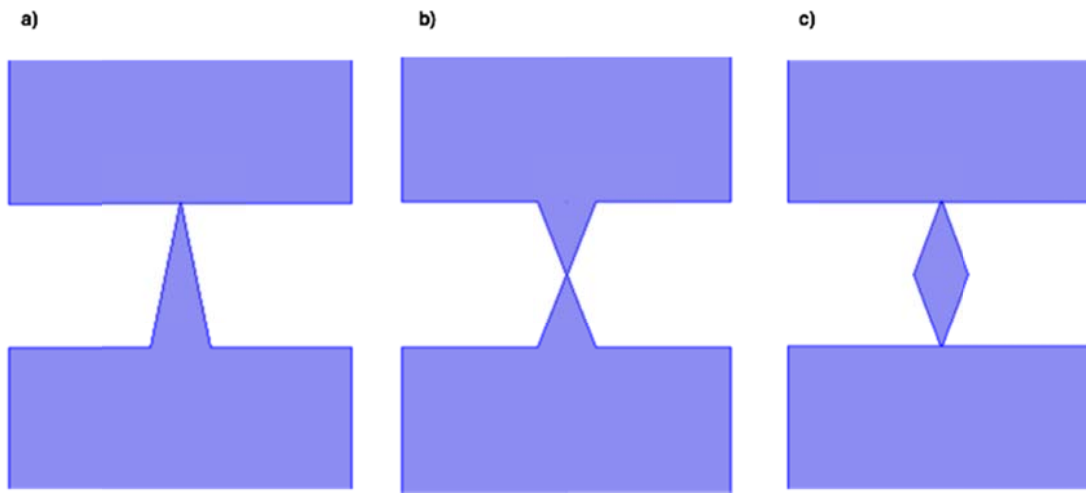
Bu teknikte elektrolit çözeltisi dolu ortam biyolojik, katı-hal veya her ikisinin birleşiminden oluşan hibrit yöntem ile yüzeyinde *nano* boyutta gözenek meydana getirilmiş bir membran kullanılarak iki eş hücreye ayrılır. Hücrelerin her iki tarafında bulunan elektrotların yardımı ile uygulanan potansiyel fark sonucu oluşan manyetik alan ile iyon akımı oluşur. Elektrolit içerisinde bulunan farklı boyuttaki partiküller, membranda bulunan *nanogözenek* yolu ile bir hücreden diğerine geçerken, iyon akımında bir miktar azalma meydana getirir. Akımdaki bu düşüş, parçacığın gözenekten geçişi sırasında iyon akışına karşı oluşan dirençten meydana gelir. *Ohm Kanunu* 'ndan türetilmiş sinyal değeri, potansiyele bağlı oluşan akım ve gözenegin

parçacık ve iyonik akıma karşı gösterdiği direnç sonucu elde edilir ve geçen *nanoparçacık* hakkında veri oluşumunu sağlar.

Elde edilen verilerin bağımlı olduğu en önemli parametrelerin başında *nanogözeneğin* geometrisi gelir. İyon akımının *rektifikasyon* davranışının da incelendiği bu çalışmada, dışarıdan manipüle edilmedikçe *rektifikasyon* gözlemlenemeyen *silindirik nanogözenekler* ele alınmamış, değerlendirmeler *konik geometrili nanogözenekler* üzerinden yapılmıştır.

Parçacığın gözenekten geçişinin ve *nanogözeneğin* farklı geometrilere bağlı olarak gösterdiği *rektifikasyon* davranışının simülasyon analizinde *konik, tek-tip çift-konik ve çift-tip çift-konik* geometrili *nanogözenekler*denelde edilen sinyallerin karşılaştırılması yapılacaktır.

*Nanogözeneklerimizin* model görüntüsü **Şekil 2**'deki gibidir.



**Şekil 2.** Konik, Tek-Tip Çift- Konik ve Çift-Tip Çift-Konik Nanogözenek Modelleri

Parçacık geçiş analizleri için **Şekil 2**'de görülen her üç gözenek geometrisi de  $-0.4V$  potansiyel ve  $-4\text{mmHg}$  basınç altında,  $10\text{mM}$ 'lık  $\text{KCl}$  çözeltisi bulunan ortama göre modellenmişlerdir. Gözenek modellerinin tip çapı  $430\text{nm}$ , geniş girişinin çapı  $7.27\mu\text{m}$ , genişlik-kalınlık-uzunluk değerleri  $20\mu\text{m}$  olarak ayarlanmıştır.

*Rektifikasyon* analizi için de **Şekil 2**'de görülen geometriler kullanılmış, sadece parametrelerde değişiklikler yapılmıştır. *Rektifikasyon* parametrelerinde potansiyel  $\pm 1V$  aralığında tutulmuş, konsantrasyon  $100\text{mM}$   $\text{KCl}$  çözeltisi olarak hesaplanmıştır. Tip çapı  $3\text{nm}$ , gözenek taban girişinin çapı  $476\text{nm}$ , kalınlık-genişlik-uzunluk ölçüleri  $12\mu\text{m}$  olarak ayarlanmıştır. Potansiyel gözeneğin aşağıdaki hücredeki elektrotla uygulanıp, yukarıdaki hücrede bulunan elektrot topraklanmış kabul edilmiştir. Simülasyonlarda tip çapının küçük olduğu durumlarda tip çevresinde mesh sıklaştırılması yapılmıştır.

## 2.2 Sonlu Elemanlar Analizi ile COMSOL Simülasyonları

*Nanogözenekler* ile direnç sinyali analizi birçok parametreye bağlıdır. Bu çalışmada **SE** yöntemi olarak kullandığımız *COMSOL Multiphysics*<sup>TM</sup>, akışkan hızının belli bir bölgedeki değerini, iyonik konsantrasyon yoğunluğunu, elektrik potansiyeli ve iyon akısının değerini elde edebilmek için kullandığımız *Poisson-Nernst-Planck* ve *Navier-Stokes* denklemlerini bir arada çözerek akım sinyalleri ve konsantrasyon dağılımları üzerinde etkili olan parametreleri analiz etmemize olanak sağlamaktadır. Parametreler arasındaki bu ilişkiler *COMSOL*'un *Electrostatics*, *Transport of Diluted Species* ve *Creeping Flow* modülleri kullanılarak tanımlanmıştır.

*Electrostatics* modülü iyon dağılımları ile potansiyel arasındaki ilişkiyi açıklayan *Poisson* denklemini belirtilen geometri ve yük için çözer. *Poisson* denklemi aşağıdaki şekilde tanımlanmıştır;

$$E = -\nabla V$$
$$\nabla(\epsilon_0 \epsilon_r) = \rho_s$$

E elektrik alanı, V potansiyeli,  $\rho_s$  yüzey yük yoğunluğunu,  $\epsilon_0$  boşluğun dielektrik sabitini,  $\epsilon_r$  de göreceli geçirgenliği tanımlar.

*Transport of Diluted Species* modülü ile çözümlenen ve difüzyon dağılımı, taşınım ve yayınımları içerecek iyon akısının modellenmesinde kullanılan *Nernst-Planck* denkleminin tanımı aşağıdaki gibidir;

$$\nabla(D_i \nabla c_i - z_i u_{mj} F c_i \nabla V) + u c_i = 0$$
$$-D_i \nabla c_i - z_i u_{mj} F c_i \nabla V + u c_i = N_i$$

Burada  $D_i$  i. iyonun difüzyon katsayısını,  $c_i$  i. iyonun çözeltideki konsantrasyonunu,  $z_i$  çözeltideki valans yüklerini,  $F$  Faraday sabitini,  $u$  hız vektörünü,  $V$  potansiyeli,  $u_{mj}$  mobilitiyi,  $N_i$  iyon akı vektörünü belirtir.

İyon difüzyon katsayısını belirten *Stokes-Einstein* denklemi;



$$D_i = \frac{k_B T}{6\pi\eta r}$$

$D_i$  difüzyon sabitini,  $k_B$  Boltzmann sabitini,  $T$  sıcaklığı,  $\eta$  elektrolit çözeltisinin viskozitesini ve  $r$  çözeltide bulunan türlerin hidrodinamik yarıçaplarını belirtir ( $K^+ Cl^-$  nin her ikisi için de  $r = 1.5 * 10^{-10}$  alınabilir).

*Creeping Flow modülü* ile basınç ve elektrik alanın oluşturduğu düzgün (*laminar*) akışla oluşan iyon taşınımını tanımlayan *Navier-StokesDenklemleri*;

$$\nabla[pI + \mu(\nabla u + (\nabla u)^T)] = 0$$

$$\rho \nabla u = 0 \quad (\text{süreklilik denklemi (kütlenin korunumu)})$$

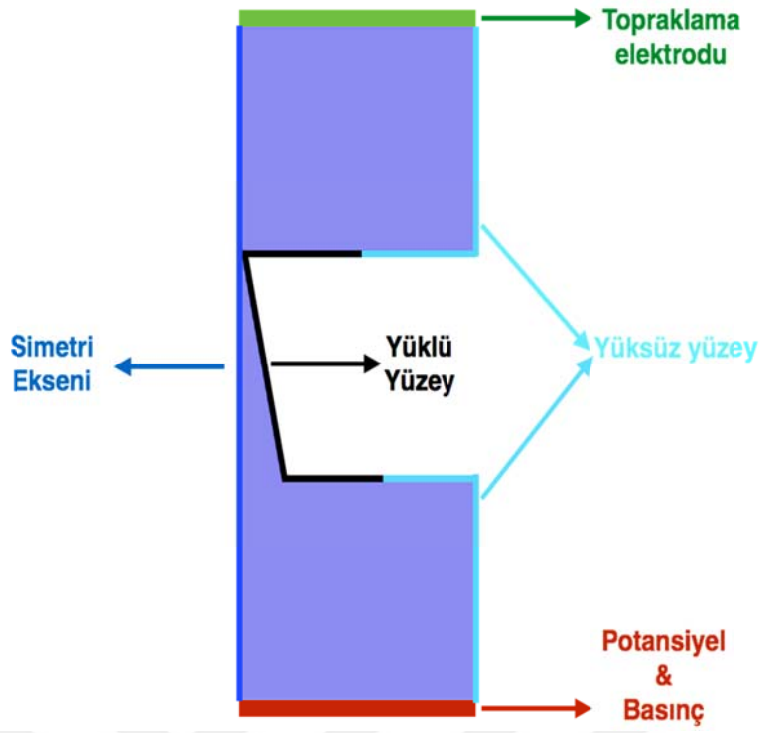
$p$  basıncı,  $I$  birim vektörü,  $\mu$  dinamik viskoziteyi,  $u$  hız vektörünü,  $\rho$  çözelti yoğunluğu belirtir.

Akışkanın atalet kuvvetleri ile viskozite kuvvetlerine oranını veren *Reynold Sayısı*;

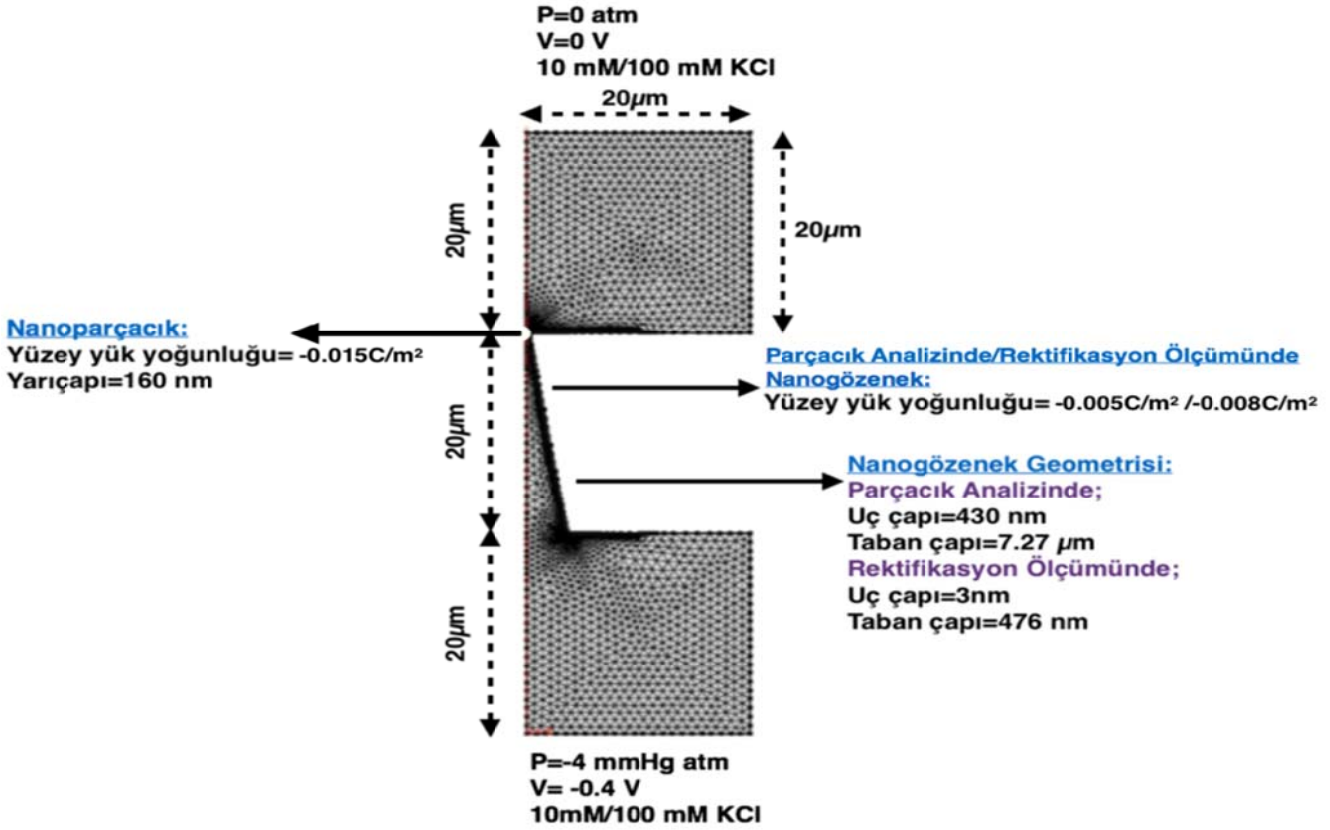
$$Re = \frac{\rho v L}{\eta}$$

$Re$ , atalet kuvvetleri ile viskozite kuvvetinin belli akış şartları altında birbirlerine olan göreceli önemini gösterir.  $Re$  Reynold sayısı,  $\rho$  yoğunluk,  $v$  ve  $L$  akışa ait karakteristik hız ve uzunluk ölçüleridir.

*COMSOL Multiphysics™*'nin bütün bu denklemleri bir arada çözmesiyle oluşturduğumuz sistemin geometrisi, sınır koşulları ve uygulanan parametreler **Şekil 3.a.** ve **Şekil 3.b.**'de gösterildiği gibidir:



Şekil 3.a.Geometri ve Sınır Koşulları



Şekil 3.b.Mesh ve Sınır Koşulları

**Şekil 3.a. ve Şekil 3.b.**'de görüldüğü gibi simülasyonda hesaplamada zaman kazanmak adına geometrinin simetri eksenini alınarak modelleme yapılmıştır. Basınç ve potansiyel gözenegin taban girişi tarafından uygulanmıştır. Gözenegin uç tarafındaki elektrot topraklanmış kabul edilmiştir.

*Rektifikasyon* gözenek uç çapı ancak yeterince küçük olduğunda gerçekleştiğinden, *rektifikasyon* ölçümünde kullanılan parametreler için uç çapı 3nm, taban çapı 430nm, kalınlık- genişlik-uzunluk birimleri 12µm olarak ayarlanmıştır. +/-1V potansiyel altındaki gözenegin yüzey yük yoğunluğu  $-0.008 \text{ C/m}^2$ 'dir.

Parçacık analizinde parçacık çapı ile gözenek uç çapının birbirine yakın değerlerde olması parçacığın algılanma hassasiyetini arttıracığından 320nm parçacığın gözenekten geçişi için uç çapı 430nm, taban çapı 7.27µm, kalınlık- genişlik-uzunluk birimleri 20µm olarak ayarlanmıştır. Gözenekten geçişi sırasında parçacığı yönlendirmek için uygulanan basınç -4mmHg'dır ve **Şekil 3**'te gösterildiği gibi elektrotlarla birlikte gözenegin taban girişi tarafından uygulanmıştır. -0.4V potansiyel altındaki gözenegin yüzey yük yoğunluğu  $-0.005 \text{ C/m}^2$  iken parçacık yüzey yükü  $-0.015 \text{ C/m}^2$  olarak ayarlanmıştır.

Sonlu elemanlar yönteminde eleman sayısını artırarak her bir elemanın kendi iç dinamikleri içinde hesaplanmasıyla karmaşık sistemin çözümünü kolaylaştırmak ve daha kesin sonuçlara ulaşmak amacıyla yapılan mesh, *nanogözenek* geometrimizde sınır yüzeyinde 20, parçacık etrafında da 50 eleman olarak ayarlanmıştır.

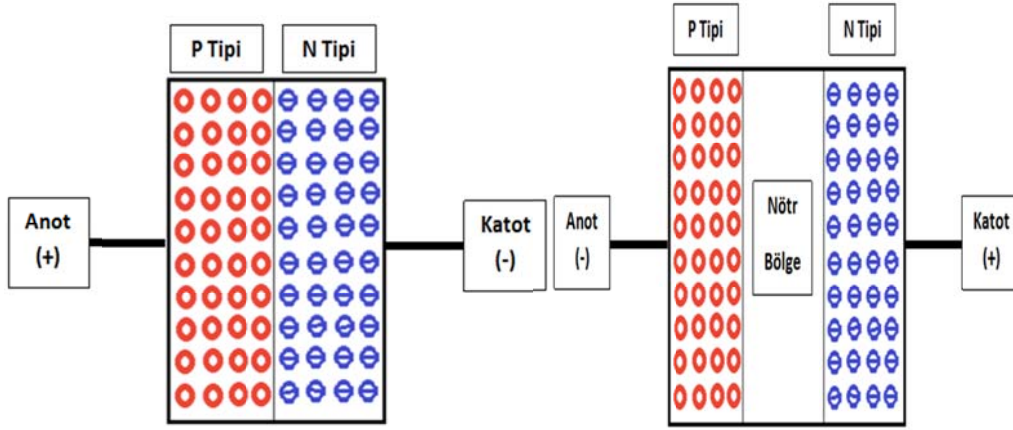
## 3.SİNYAL OLUŞUMU

### 3.1Rektifikasyon

*Rektifikasyon, nanogözeneklerdeki* iyon akımının, diyot (elektrik akımını tek yöne ileten devre elemanı) benzeri davranış sergilemesidir. Diyotlar genel olarak, P ve N tipi iki malzemenin birleşiminden oluşur. N tipi malzeme negatif, P tipi malzeme de boşluklar içerse de pozitif tarafı temsil eder. Pozitif taraf ‘Anot’, negatif taraf da ‘Katot’dur. Çalışma mekanizmasına baktığımızda, bu iki malzeme bir araya geldiğinde, birleşme bölgesinde N tipi malzemedeki elektronlar P tipi malzemedeki boşlukları doldurur ve burada bir nötr bölge oluşturarak akım geçişini engeller.

Genel olarak, her iki uca güç kaynağı bağlayarak polarlama yapıldığında iki durumla karşılaşırız. Anot uca (+), Katot uca (-) kutup bağlandığında *Doğru Polarlama* yapılmış olur. Bu durumda (+) kutup Anot tarafındaki P tipi malzemedeki boşlukları, (-) kutup da Katot tarafındaki N tipi malzemedeki elektronları iterek aradaki nötr bölgeyi ortadan kaldırmış olur ve elektronlardan boşluklara doğru elektron akışı başlar.

İkinci durumda ise Anot uca (-), Katot uca (+) kutuplu güç kaynakları bağlanarak *Ters Polarlama* yapılır. Anot tarafında bulunan P tipi malzemenin boşlukları (-) kutuba doğru, Katot tarafındaki N tipi malzemedeki elektronlar da (+) kutuba doğru çekilirler. Bunun sonucunda da aradaki nötr bölge genişlemiş ve elektronların akışı durmuş olur.



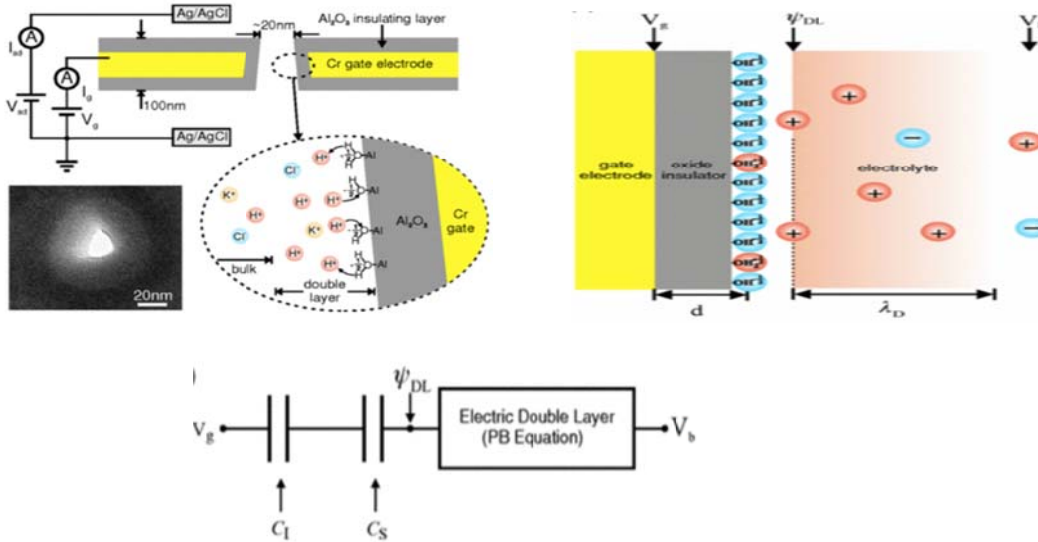
Şekil 4.a. Doğru Polarlanmış Diyot

Şekil 4.b. Ters Polarlanmış Diyot

Diyotların polarlanma tiplerini *nanogözenekler*deki iyon akışına uyarlırsak, uyguladığımız potansiyele göre iyon akışı gerçekleşirken potansiyel değeri diğer yönde değiştiğinde iyon akımında belli bir azalma olacaktır, bu da *rektifikasyon* olarak isimlendirilir.

### 3.1.1 Rektifikasyon için kapasitif model

Genelde gözenek girişi ile parçacık büyüklüğünün uyuşmadığı durumlar için önerilen bir model olan ‘*Kapasitif Model*’ ile *rektifikasyonu* açıklamaya çalıştığımızda karşımıza şu mekanizma çıkar:

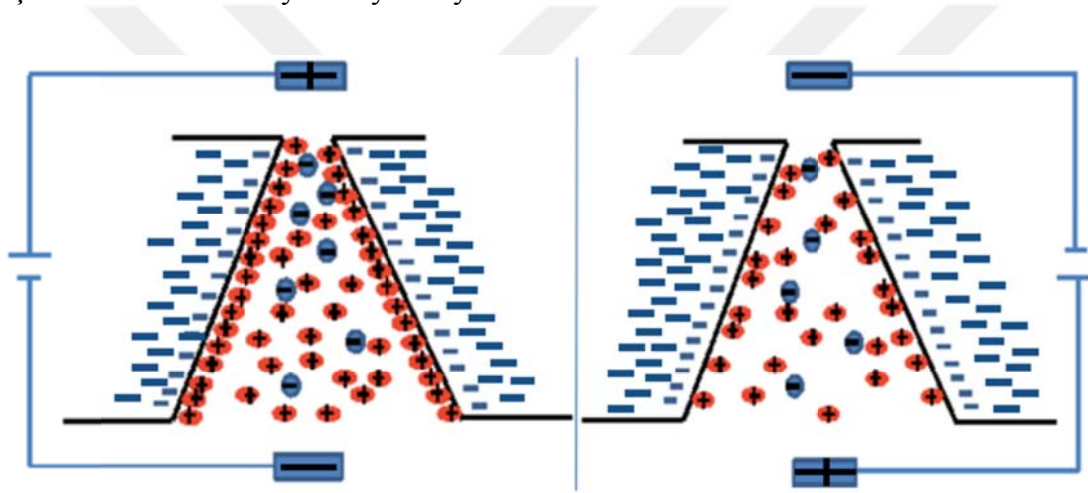


Şekil 5. Kapasitif Modele Göre Nanogözenekte İyon Taşımını [24]

Kapasitördeki yük birikimi, nanogözeneklerde gözenek duvarlarının yüzey yükleri ile karşıt iyonların elektrostatik etkileşimi olarak temsil edilir. Yukarıdaki şekilde görüldüğü gibi Stern tabakası ve yalıtkan membran yüzey, elektrik devresindeki kapasitör elemanına karşılık gelir.

Kapasitörler elektrik yükünü depolayan devre elemanlarıdır, yük depolayabilme kapasitelerine kapasitörün kapasitansı denir. Nanogözenekleri kapasitöre benzetirsek, potansiyel fark uygulandığında gerçekleşecek iyon akışı sırasında yüzey yüküne bağlı olarak gözenekte iyon birikimi gerçekleşir. Gözenekte biriken bu iyonları kapasitörün şarj/yüklenme durumuna benzetebiliriz. Ters yönde potansiyel uygulandığında gözenekte iyon birikimi gerçekleşmeyecek ve bir tükenim bölgesi oluşacaktır. Bu durumdaki yük miktarına baktığımızda gözenek, kapasitörün deşarj/yüksüz durumuna geçmiş olur. İkinci durumda birinci duruma göre daha az yük vardır, dolayısıyla iyon akışı da azalmış ve rektifikasyon gerçekleşmiş olur.

Gözeneğin kapasitans karakteristiğini göstermek için farklı voltaj değerlerinde gözenek içerisinde biriken +/- yüklü iyon sayısına bakılır.



**Şekil 6.** Kapasitif Modele Göre Nanogözenek İçerisinde İyon Birikimi ve Tükenimi

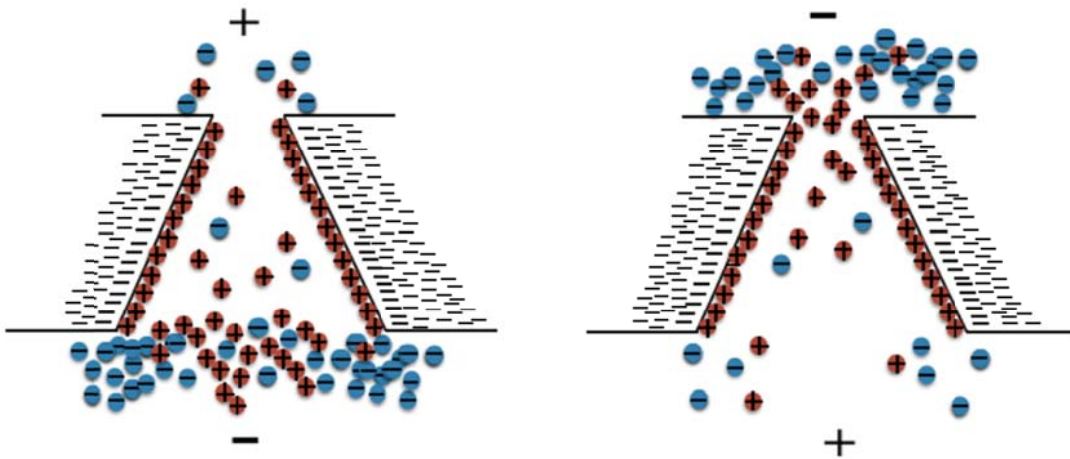
Gözenek yüzeyini negatif yüklü kabul edersek, negatif (-) voltaj uygulandığında, pozitif (+) yüklü iyonlar dış çözülden iç çözültiye doğru harekete geçerler. Negatif yüklü iyonlar ise gözeneğin yüzey yükleri tarafından elektrostatik etkileşimden dolayı dışlanırlar. Böylece gözenek içerisinde iyon birikimi meydana gelir ve gözenek içerisindeki konsantrasyon artışı ile iletkenlikte de artış gözlenir. Pozitif (+) voltaj uygulandığında ise yine negatif (-) yüklü iyonların yüzey yükleri tarafından reddilmesiyle dış çözülden iç çözültiye taşınımları engellenmiş olur. Potansiyel polarizasyonundan dolayı gözenek içerisinde iyon tükeniminin gerçekleşmesi iletkenliğin ve akımın azalmasına sebebiyet verir.

### 3.2 Bifazik Sinyal Oluşumu

Parçacığın gözenekten geçişi sırasında iyon akımını bloke etmesinden kaynaklanan direnç sinyalinin, akımda meydana gelen azalmadan dolayı negatif (*rezistif*) olması beklenir. Ancak bazı durumlarda pozitif (*kondaktif*) veya pozitif/negatif (*kondaktif/rezistif*) sinyallerin birbirlerini takip ettiği *bifaziklik* şeklinde sinyaller oluşur.

Bu direnç sinyali şekillerinin, *kondaktif* sinyal için; yer değiştiren partikülün yüzey yükü tarafından indüklenen iyon iletkenliğindeki artıştan ve *rezistif* sinyal için; mevcut elektrolit çözeltisinin parçacık tarafından hacimsel dışlanmasından meydana gelen akım etkilerinin dengelenmesinden kaynaklandığı düşünülmektedir [10].

*Bifazik* sinyal oluşumuna iyon birikim/tükenim modeli ile açıklama getirebiliriz [15]. Gözenek yüzey yükünün negatif olduğunu kabul edersek anot elektrotunun gözeneğin küçük girişinde, katot elektrotunun da gözeneğin geniş girişinde bulunduğu durumda potansiyel uygulanırsa ortamdaki katyonlar katot elektrot tarafından çekilirken eş zamanlı olarak anyonlar ise gözeneğin negatif yüzey yükleri tarafından itilir. Bu durumda katot tarafında hem yüzey yükünün dışladığı negatif yüklü iyonların hem de elektrotun çektiği pozitif yüklü iyonların birikimi söz konusu olur. Anot tarafında ise yüzey yükü ve katot elektrotu tarafından çekilen katyonlardan ve yüzey yükünün reddettiği iyon miktarından kaynaklı bir tükenim bölgesi oluşur. Konsantrasyonun bu şekilde polarlanması iyon dağılımını etkileyeceğinden aynı zamanda asimetrik *nanogözeneklerdeki rektifikasyon* oluşumundan da sorumludur.



Şekil 7. Nanogözeneklerde İyon Birikim/Tükenim Modeli

*Bifazik* sinyal oluşumunu bu konfigürasyonda değerlendirdiğimizde tükenim bölgesinde, bölgede bulunan iyon miktarının azlığından dolayı direnç düşer ve parçacığın bu bölgeden geçişi sırasında öncelikle üzerinde topladığı karşıt iyonlardan kaynaklı gözenekte geçici bir iletkenlik (*kondaktivite*) artışı oluşmasıyla akımda da artış meydana gelir, bu da *bifazik* sinyal oluşumunun pozitif yöndeki artışını yani *kondaktif* sinyal oluşumunu açıklar. İyonik artışın ardından parçacığın tipten geçişi sırasında iyonik akışı engelleyeceğinden akımda azalma meydana gelir ve hacim dışlama etkisinin baskın duruma geçmesinden dolayı *rezistif* sinyal oluşur.

Birikim/tükenim modeli dışında *nanoparçacığın* gözenek duvarına geçici olarak tutunup, bırakılması da *bifazikliğe* yol açabilir. Parçacık yüzeye tutunup tekrar bırakıldığında gözenek içerisindeki yeniden iyon dağılımı değişecektir, bu durumun da *bifazik* sinyal oluşumuna etkisi olabilir. Ancak bu durum simülasyona dahil edilmemiştir.

*Bifazik* sinyal şekillerinin oluşum sıralaması (*rezistif/kondaktif veya kondaktif/rezistif*), yüzey yükü ve elektrik alan ile tespit edebileceğimiz, parçacığın geçiş yönüne bağlıdır. *Konik* gözeneklerde görülen *bifaziklik*, yüzey yüklerinin yanı sıra uygulanan basınç ve potansiyel polariteleriyle, gözeneğin tip çapı ile konsantrasyon miktarına bağlı olarak değişen ECT etkisiyle parçacığın gözeneğin hangi girişinden geçtiğine bağlı olarak meydana gelir. Bunun sebebi uygulanan potansiyelin oluşturduğu tükenim ve birikim bölgelerinin yeri ve bölgelerin elektrostatik etkileşimleridir.

### 3.3 Sinyal Oluşumunu Etkileyen Parametreler

Yarı üçgensel sinyal dalga şekilleri ve resistif sinyaller *konik nanogözeneklerin* karakteristiğidir. Parçacık geçişinden elde edilen sinyal şekillerindeki belirgin farklılıklar, *nanogözenek/nanoparçacıkların* algılanması zor geometrik ve yük etkileşim karakteristikleri için DSA tekniğinin hassasiyetini yansıtır.

*Nanogözeneklerle* yapılan ölçümlerde (akım zamanın fonksiyonu olarak çizildiğinde) elde edilen sinyallerin şekil, süre ve büyüklükleri parçacığın geçişi sırasında üzerine etkiyen kuvvetlerin bilgisini verir [9]. Bu kuvvetler parçacığın ve iyonik akışın davranışını etkileyerek farklı oryantasyonlarda elde edilen sinyallere açıklama getirebilmemize imkân tanır.



### 3.3.1 Sinyal oluşumunun gözenek geometrisine bağımlılığı

Silindirik *nanogözenek*lerde belli bir boyuta kadar parçacık karakterizasyonu yapılabilir, ancak aşırı küçük *nanoparçacıkların* sinyali, düşük sinyal-gürültü oranından dolayı kaybolabilir. *Konik* geometrili *nanogözeneklerin* algılama bölgesi ise silindiriklere göre çok daha küçük ölçeklere inebildiğinden yüksek sinyal-gürültü oranı ile parçacık duyarlılığını arttırır.

*Konik nanogözenek*lerde asimetrik geometri gözenek içindeki iyon dağılımındaki dengeyi bozar. Her iki gözenek girişinin farklı çaplarda olması, iyon dağılımında elektrostatik asimetri oluşturur, voltaj ve konsantrasyona bağlı olarak ECT ve Debye uzunluklarındaki kalınlaşma/incelme davranışlarını etkiler ve akım sinyal şekilleriyle *rektifikasyon* davranışına etki eder. *Rektifikasyon* davranışı, küçük gözenek girişi ancak yeterince dar olduğunda belirir. Bütün *rektifikasyon* modelleri küçük gözenekten geçen iyonların gözenek yüzeyindeki fazla yüklerle etkileşimlerinden kaynaklanır, bu durum da gözenek geometrisi asimetrik yapıya yaklaştıkça *rektifikasyon* ve *bifazikliğin* görülebileceğine işaret eder. Bu çalışmamızda kullandığımız *tek-tip çift-konik* ve *çift-tip çift-konik* geometrili asimetrik *nanogözenek*lerden elde ettiğimiz simülasyon sonuçlarında belirgin bir *rektifikasyon* gözlemlenememiştir.

*Bifazik* davranışı ise *çift-tip çift-konik* geometrili *nanogözenek* simülasyonumuzun sonuçlarından başarılı bir şekilde elde etmemize rağmen *tek-tip çift-konik* geometrili gözenek sadece *rezistif* sinyal üretmiştir. Parçacık geçişinde oluşan sinyalin *bifazik* olma şartının tipin tükenim bölgesi olmasından dolayı gözenek parçacığı algılama bölgesinin iyonik birikim veya tükenimden hangisine maruz kaldığı önemlidir. Her iki gözenek girişi tipten oluşan *çift-tip çift-konik* gözenekte tükenim bölgesinde bulunan yukarıdaki tipten parçacık geçerken üzerindeki fazla karşıt yüklerin oluşturduğu iyonik zenginleşmeyle iyonik artış meydana getirdiğinden *bifazik* sinyal elde etmiş olduk. *Tek-tip çift-konik* gözenekte ise her iki gözenek girişi geniş çaplı olduğundan tükenim ve birikimler buralarda gerçekleşmiştir. Gözenek orta kısmında kalan tipte yukarıdaki tükenim bölgesinden gelen iyonların akışıyla iyonik artış meydana gelir ve yeterli iyonik tükenim oluşmaz. Birikim bölgesine parçacıkla gelen karşıt yüklerle bir iyonik zenginleşme oluşmayacağından buradan sadece *rezistif* sinyal elde edilmiştir.

*Konik* şekilli gözenek ucunda aynı çaptaki silindirik geometrilere göre daha büyük elektrik alan oluşur [21]. Silindirik *nanogözeneklerin* her iki açıklığına farklı pH uygulandığında [13] *rektifikasyon* davranışı göstermesi, *rektifikasyonun* gözenek ürettiği malzemeye değil

iyonların gözenekteki elektrostatik asimetrisine bağlı olduğunda göstermektedir. Bu da *rektifikasyon* davranışının neden konik geometrili gözeneklerin karakteristiği olduğunu açıklar.

Silindirik gözeneklerle yapılan çalışmada, uzun gözeneklerde iyon konsantrasyonunun birikim/tükenim etkisi daha fazla olacağından, gözenek boyu uzadıkça akım sinyal piklerinin saptamalarında da artış görülmüştür (parçacık gözenegın girişinde/çıkışında olduğunda) [7]. Gözenek ucunun genişliği büyüdükçe EÇT'nin etkisi azalmaya başlayacaktır. İyonların ve akışkanın davranışını belirleyen unsur parçacık ile gözenek arasında kalan boşluk mesafesi olduğundan direnç sinyali şeklini etkileyen EÇT etkisi buradan anlaşılabilir. Gözenek boyutu büyüdükçe EÇT de göreceli olarak inceleyeceğinden (non-overlapping) *rektifikasyon* davranışı zayıflar [16]. Büyük boyuttaki gözeneklerin küçük gözeneklere göre daha zayıf *rektifikasyon* sergilemelerinin sebebi büyük gözeneklerde EÇT'nin daha küçük olmasındandır (EÇT/tip\_çapı oranı).

Birikim/tükenim mekanizmasını *kapasitif* modeli [11] ele alarak incelediğimizde, gözenek uzunluğunun, biriken yükün büyüklük mertebesini deęiştiren en etkin parametre olduğunu görürüz. *Kapasitif* modelde sinyal ölçümü gözenek içerisinde biriken yük miktarı baz alınarak yapılır. Gözenegın boyu kısaldıkça içeride biriken yük miktarı aynı oranda azalır. Azalan yük, sinyal üretimi için daha küçük olacağından kısa *nanogözeneklerde kapasitif* etki ihmal edilir. Gözenegın boyu uzadıkça içeride daha fazla yük birikeceğinden aynı oranda sinyalde de artış görülür.

Gözenek uzunluğu gibi gözenek girişinin yarıçapı da akım sinyalini etkileyen önemli bir parametredir. *Kapasitif* model, DSA'daki duruma benzerdir. Uzunluk sabitlenip gözenek girişinin yarıçapı arttırıldığında içeride biriken yük miktarında bir miktar azalma olacaktır. Gözenek girişinin yarıçapı çok fazla arttırılsa bile gözenegın uzunluğunun sabitlenmesinden dolayı içeride meydana gelen iyon azalması kapasitenin altına düşmeyeceğinden sinyal üretebilecek yeterlilikte olur. Bu durum, DSA modelinden farklı olarak, *kapasitif* modelde sinyal üretebilmek için parçacık ile gözenek girişinin uyuma zorunluluğu olmadığını gösterir.

Gözenek-sensör dizaynında ve parçacık analizinde kesinlik için gözenek boyutu ile elektrokinetik kuvvetlerin bağımlılığını anlamak oldukça önemlidir. Bu ilişki en net ADSA tekniği ile anlaşılabilir [6,19]. Elektrokinetik ve akışkan kuvvetler parçacığın gözenekte ilerlemesini sağlayan hızın bileşenleridir. Gözenek çapı büyüdükçe parçacığın dışladığı iyonik hacim azalır, akışkanın hızı artar. Artan akışkan hızından dolayı sinyal genişliğinde daralma

görlür. **ADSA** ile gözeneğin genişlemesi membranın boyunu dolayısıyla agılama bölgesini kısaltır. Artan hızla beraber *rezistif* sinyalin hem boyunda (genliğinde) hem de genişliğinde (parçacığın algılanma süresinde) azalma görlür. Yani elektrokinetik kuvvetler ile gözeneğin boyu ters orantılıdır. Bu durum, *kapasitif* modelde [11] boy uzadıkça/kısaldıkça sinyal artar/azalır şeklinde oluşur.

Sadece *kondaktif* sinyalin oluştuğu durumlar, uygulanan voltajın polarizasyonu ile beraber tükenim bölgesinin gözeneğin hangi girişinde oluştuğuna da bağlıdır. Erişim direnci için hesaplandığında, iyonik akımın parçacık varlığına en duyarlı olduğu an, parçacığın gözeneğin küçük girişinden geçtiği andır [15]. Parçacık boyutu ve gözenek uç çapı birbirine yaklaştığında elektrostatik etkileşim, dolayısıyla duyarlılık artar. Parçacık geniş gözenek girişinde bulunduğunda bu hassasiyet azalır, parçacığın taşıdığı karşıt yüklerin meydana getireceği iyonik artış, yüzey yüklerinin etkileşime geçememesiyle zayıflar ve *kondaktivite* azalır. Bir başka deyişle tükenim bölgesi gözeneğin küçük girişine yaklaştıkça *kondaktif* sinyaller de artacaktır.

Nanogözenek geometrisini etkileyen bir başka parametre de uç çapı ve taban çapı oranı olarak ifade edilebilen gözeneğin konik açısıdır. Gözenek direnci direkt olarak gözenek geometrisine bağlıdır ve iyonik akımın büyüklüğünü etkiler. Konik açıdaki artışla parçacıkların hızında ve gözenekteki parçacık sayısında meydana gelen artıştan dolayı statik ve dinamik kuvvetlerde kütle akısında artış meydana geldiği gösterilmiştir [26]. Parçacıkların geçişleri sırasında elektrokinetik ve elektroozmotik kuvvetler önemli rol oynar. Negatif yüklü yüzeyde elektroozmotik kuvvet negatif yüklü parçacığın geçişine karşı yönde etki eder. Yüksek konik açısının veya düşük tip/tabana oranının elektroozmotik kuvvetin negatif katkısını aşmasına ve parçacıkların geçişine yardımcı olduğu belirtilmiş ve uçta daha yüksek elektrik alan kuvveti ile daha geniş bir algılama bölgesi oluşmasına yol açtığı gösterilmiştir [25].

### **3.3.2 Sinyal oluşumunun iyon konsantrasyonuna bağımlılığı**

*Nanogözeneklerde* oluşan akımın artış veya azalış oranı iyon konsantrasyonu ile doğrudan ilişkilidir.

Deney sonuçları, *bifazik* direnç sinyallerinin sadece düşük konsantrasyonda oluştuğunu göstermektedir, bazı deneylerde de sadece akım artışının oluştuğu pozitif (*kondaktif*) sinyaller gözlenmiştir [7]. Konsantrasyonun yüzey yüklerine etkisinin gösterildiği bir çalışmada da [14] 100mM KCl konsantrasyonu bulunan *karbon-nanotüpün* yüzey yükünün 1mM KCl

konsantrasyonu bulunan ortamdan 50 kat daha yüksek olduğu gösterilmiştir. Bu sonuç yüzey ile elektrostatik etkileşimde en önemli parametreler olan ECT ve Debye uzunluğunun büyük oranda konsantrasyona bağımlılığını gösterir.

Konsantrasyona bağlı sinyal oluşumu incelendiğinde, yüksek konsantrasyonda gözenek içerisindeki dış çözelti ile iç çözelti arasında yoğunluk farkı oluşturacak iyon birikim etkisi azalır. ECT'nin ortamdaki iyon fazlalığı ile perdelenmesinden dolayı bifaziklik kaybolur, parçacığın geçişiyle hacim dışlama etkisi baskın hale gelen ortamda sadece rezistif sinyal görülür, düşük konsantrasyonda ise ortamdaki iyon azlığından dolayı hacim dışlama etkisi devre dışı kalır ve yalnızca parçacıkla gelen karşıt yüklerden kaynaklı kondaktif sinyal gözlenir. Parçacığın olmadığı durumda yüksek iyonik çözelti rektifikasyonu ortadan kaldıracak etki yapar.

Yüksek iyon konsantrasyonunda, ortamda bulunan fazla miktardaki karşıt iyondan dolayı Debye uzunluğu kısalır. Ortamdaki bu fazla iyonlar negatif yüzeyi nötrlemek için gözenek yüzeyine yakın olarak toplanacaklarından ECT inceleyecektir. Düşük iyon konsantrasyonunun bulunduğu durumda ise yüzeyde toplanacak karşıt iyon miktarının azlığından ECT kalınlaşır. Dolayısıyla yüksek iyon konsantrasyonlu ortamda elde edilen sinyalden ECT'deki incelmeye bağlı olarak rektifikasyon davranışında azalma görülür. Ancak yeterince düşük konsantrasyonlu bir ortamda Debye uzunluğu artar, ECT de kalınlaşır ve yüzey yükleri daha etkin rol oynar. Bunun sonucunda (uygulanan potansiyele bağlı olarak, yüzey yükünün etkisiyle meydana gelen birikim/tükenimden kaynaklı) akımda rektifikasyon oluşumu görülür.

Farklı bileşikler kullanılarak oluşturulan konsantrasyon ortamlarında yapılan çalışmalarda [10] konsantrasyonun viskozitesinin de sinyal şekli oluşumunda etkili olduğu görülmüştür. Eşit konsantrasyonda farklı viskoziteye sahip çözeltilerle yapılan ölçümlerde viskozitesi yüksek bileşikli çözeltide sadece rezistif sinyal görülürken düşük viskoziteli çözelti bifazik sinyal oluşturur [10]. Yüksek viskoziteli bileşik yoğun konsantrasyonda parçacığın hızını azaltarak geçişi yavaşlatır ve parçacığın algılanma süresini arttırır. Düşük viskozite bileşikli çözeltide ise bifazikliğin oluşması, parçacığın yüzey yükleri ile karşıt iyonların etkileşiminin artmasından kaynaklanır.

Kapasitif modele göre [11] açıkladığımızda konsantrasyon artışı, gözenek içerisinde biriken iyon miktarını arttıracığından, yüksek konsantrasyon, yüksek sinyal-gürültü oranı sağlar. Ancak elektrik devrelerinde her kapasitörün sınırlı kapasitansı olduğu gibi nanogözeneklerin

de sınırlı iyon depolama kapasiteleri vardır. Dolayısıyla başlangıçta konsantrasyon artışı ile yükselen sinyal bir süre sonra denge halini alarak sabit şekilde devam eder.

Yüksek konsantrasyonda parçacık/iyon yığılması olabilir. Bu durumda sinyal genişliği artar ve algılanma süresi uzar. Ancak yığılma olayı tekli parçacık analizinde kesinliği etkileyeceğinden, düşük konsantrasyonda ölçüm yapmak daha elverişli olacaktır.

### 3.3.3 Sinyal oluşumunun potansiyel farkına bağımlılığı

*Nanogözeneklerin* çalışma prensibinin AET'lere benzediğini önceki bölümlerde belirtmiştik. Bu mekanizmanın harekete geçmesi için elektrik alan oluşması gerekmektedir, bu da ortamdaki elektrotlarla potansiyel fark uygulanarak sağlanır. En dirençli bölgeyle sınırlı olacak şekilde, gözenek boyunca uygulanan potansiyel fark en dar bölgede düşer ve burada yüksek bir elektrik alan oluşur. Uygulanan potansiyel fark negatif potansiyelde ve pozitif potansiyelde farklı davranış sergileyen iyon hareketlerinden elde edilen sinyal şekillerinde belirleyici rol oynar.

Voltaj polaritesine bağlı oluşan sinyal şekilleri iyon dağılımındaki asimetriden kaynaklanır. Hacim dışlama ve iyonik artış etkileri, gözenek içerisinde iyon birikimi oluşturan negatif potansiyel uygulandığında rekabet halindeyken, iyon tükenimine sebep olan pozitif voltajda birbirlerine katkı sunarlar.

Yüklü gözenekte iyon birikimi/tükenimi voltajın polaritesine ve büyüklüğüne bağlı olarak meydana gelir [10,12]. Negatif yüklü gözeneğe negatif potansiyel uygulandığında gözeneğe çekilecek pozitif iyonlarda artış olacağından gözenek içerisindeki iyon birikimiyle birlikte iletkenlik de artar. Artan iletkenlik direnci düşürür. Dolayısıyla potansiyel negatif yönde arttıkça önce *rezistif* sinyal boyu azalır, daha sonra sinyal *bifazik* görünüm alır, belli bir değerden sonra da *kondaktif* görünüme geçer.

Pozitif potansiyelde ise iyonik yüklerin tükeniminden dolayı gözenek iletkenliği azalır ve *kondaktif* sinyal kaybolur. Dolayısıyla *bifaziklik* ortadan kalkar, tekli sinyal görünümü oluşur. Voltaj düştükçe yüzey yükünün etkisini tetikleyen unsur zayıflayacağından, yüzey yüklerine bağlı iyon birikimi önemsiz hale gelir, bu durumda hacim dışlama etkisi gözenekte bulunan iyon miktarına baskın geleceğinden, düşük voltajda pozitif potansiyeldeki gibi yalnızca *rezistif* sinyaller oluşur.

Parçacığın yükünün varlığı durumunda da yüksek voltaj parçacığın etkisini artırır. Parçacık yükü gözenekteki iyon artışına katkıda bulunur. Parçacığın yük etkisi ile oluşan gözenek

içerisindeki iyon birikimi ve iletkenlik artışı, iyonik çözeltinin maruz kaldığı hacim dışlama etkisine baskın çıkar ve bundan dolayı akımda artış gözlenir.

### 3.3.4 Sinyal oluşumunun basınç farkına bağımlılığı

Basınç etkisi ile oluşturulan akış, parçacığı yönlendirmek ve gözenek içerisinden geçişini hızlandırmak için kullanılan en etkin mekanizmalardan biridir.

*Bifazik* sinyallerde *kondaktif/rezistif* sinyallerin oluşum önceliği parçacığın yönüne bağlıdır [15]. Ancak basıncın etkisini değerlendirebilmemiz için uygulanan potansiyeli de göz önüne almamız gerekir. Gözeneğin ve basıncın yönlendirdiği parçacığın yüzey yüklerinin etkileşimi sonucu oluşan sinyaller potansiyelin meydana getirdiği iyonik polarizasyona bağlıdır. Hem pozitif hem de negatif basınç, negatif potansiyel altında uygulandığında oluşan sinyal şekli *bifaziktir*, ancak parçacığın öncelikli geçtiği yere bağlı olarak sinyaldeki artış ve azalışın sıralaması değişir. Negatif potansiyel altında, negatif yönde basınç uygulandığında parçacık tükenim bölgesinden birikim bölgesine doğru hareket edeceğinden önce tükenim bölgesinde parçacığın etrafına toplanan karşıt iyonların oluşturduğu iyonik artıştan kaynaklı *kondaktif* sinyal, daha sonra birikim bölgesindeki hacim dışlama etkisinin baskın olduğunu belirten *rezistif* sinyal oluşumu gerçekleşir. Negatif potansiyel altında pozitif yönde basınç uygulayarak yönlendirilen parçacıktan gelen sinyal ise, negatif basınç altındaki cevabın tam tersi şeklinde oluşur. Birikim bölgesinden harekete geçen parçacık burada *rezistif* sinyal üretecek, ancak tükenim bölgesine geçtiğinde parçacığın yüzey yüklerinin sağladığı ortamdaki iyonik zenginleşmeden dolayı akımda *kondaktif* sinyal görülecektir.

Pozitif potansiyel altında ise durum daha farklıdır. Bu durumda akım sinyalini basınçtan ziyade potansiyelin meydana getirdiği iyonik polarizasyon belirler. Pozitif potansiyel uygulandığında tükenim bölgesi gözeneğin geniş girişinde oluşur. Parçacığın üzerinde biriken karşıt iyonların *kondaktif* sinyal oluşturabilmesi için tükenimin gözeneğin en dar kısmında oluşması gerekir. Geniş gözenek girişinde parçacığın taşıdığı karşıt iyonlar, akımın zenginleşirmesi için yetersiz kalacaklardır. Pozitif potansiyel altında pozitif basıncın yönlendirdiği parçacık, geniş gözenekteki tükenim bölgesinden tip tarafında oluşan birikim bölgesine, negatif basınç altında ise tipteki birikim bölgesinden geniş gözenek girişindeki tükenim bölgesine hareket eder ve her iki durumda da sadece *rezistif* sinyal oluşur. (Bu bölümde anlatılanlar **4.Validasyonlar** bölümünde sinyal grafikleriyle detaylı olarak gösterilecektir.)

*Bifazik* sinyal oluşumuna parçacığı yönlendirerek katkı sağlayan basınç, yüksek değerlere çıktığında *bifazikliğı* ortadan kaldıracak etki yapar [12]. Yüksek basınç **ECT**'de dengeli bir iyon dağılımı oluşumunu engelleyecek çözelti akışına sebep olur. Basınçla birlikte hızlanan parçacıkla, dağılımları parçacığı göre yavaş kalan iyonlar arasındaki iletkenlik azalır ve *kondaktif* sinyal kaybolur. Gözenekten geçen parçacığın ürettiğı *rezistif* sinyalin de genişliğı geçiş hızından dolayı kısalmır.

Gözenek boyunca uygulanan basınca bağılı olarak iyon dağılımında, çözelti akışındaki artıştan kaynaklanan düzensizlik ile beraber başlangıç akımında akımının artması beklenir [20]. Parçacık taşınımını sağlayan akışkanın hızının artışı ile daha fazla parçacık geçişi gerçekleşir, direnç sinyallerinin frekansı artarken, boyları kısalmır. Basınç, parçacık taşınımını arttırırken algılama süresini azaltır.

Asimetrik *nanogözeneklerin* bir karakteristiğı olan ve iyon akımının *omiklikten* uzaklaşması olarak tanımlayabileceğimiz *rektifikasyon* davranışı ve aynı değerli, karışit işaretili potansiyeldeki akım değerlerinin oranı olan **RF** değeri, basınç etkisi altında incelendiğinde elde edilen yanıtın büyük oranda gözenek girişi boyutuna bağımlı olduğı görülür [16]. Büyük çaplı gözeneklere basınç uygulandıında (*on*) **RF**'de azalma, basıncın olmadığı durumda (*off*) ise artış gözlenmektedir. Küçük çaplı gözeneklerde basınç uygulamasına bağılı **RF** değerine bakıldığında, basınç varlığının gözeneğın *rektifikasyon* davranışını etkilemediğı dikkat çeker. Basıncın gözenek çapına göre farklı *rektifikasyon* davranışlarına sebebiyet vermesi, akış miktarının gözenek girişinin çevresindeki iyon dağılımları üzerinde oluşturduğı etki incelendiğinde anlaşılabilir. Hacimsel akış oranının gözenek yarıçapının üçüncü kuvveti ile orantılı olduğı göz önüne alındığında, büyük gözeneğın çevresinde büyük bir hız değışimi meydana getiren basınç, küçük gözenekte neredeyse ihmal edilebilir bir etki oluşturur.

İyon *rektifikasyonunda* basıncın yönü de büyüklüğü kadar etkilidir. Basınç negatif yönde uygulandıında akımda *omik* davranışa neden olur ve **RF**'de azalma görülür. Pozitif basınç ise negatif basınca nispetle *rektifikasyonu* azaltmada daha az etkilidir. Gözenek iletkenliğini neredeyse yok edecek şekilde iyon dağılımına sebebiyet vermesi, basıncın *rektifikasyon* davranışında baskın rol oynamasını sağlar. Bu etki, büyük çaplı gözeneklerde gözle görülür düzeydeyken küçük çaplı gözenekler için ihmal edilebilir seviyededir.

### 3.3.5 Sinyal oluşumunun nanogözenek ve parçacık yüzey yüklerine bağımlılığı

Gözenek ve parçacık yüzey yükleri hem sinyal dalga şekillerinin oluşumunda, hem de gözenekte elektrostatik etkileşim içerisindeki iyonik yüklerin davranışlarında belirleyici rol oynarlar.

Direnç sinyallerinin şeklini etkileyen en etkin parametreler parçacık ve gözenek yüzey yüküdür. Akımdaki artışı gösteren *kondaktif* sinyallerin oluşumunda, gözeneğin yüzey yükünden ziyade parçacığın yükünün etkili olduğu Menestrina'nın [23] deney sonuçlarında gösterilmiştir.

Parçacık varlığında elde edilen sinyal şekilleri, parçacık yüzey yükünün akımda birbirine baskın çıkmaya çalışan iki durum meydana getirmesinden kaynaklanır [10,12]. Yüklü parçacık etrafında toplanan karşıt iyonların parçacıkla birlikte gözeneğe girmesi akımda artışa sebep olurken parçacığın mekanik olarak iyonik akımı engellemesiyle de akımda düşüş meydana gelir. EÇT'nin parçacığı çevrelediği varsayıldığında [15], parçacığın yüzey yükündeki artıştan dolayı EÇT'de toplanan karşıt iyon yoğunluğuyla beraber, konsantrasyon polarizasyonuna bağlı olarak *kondaktif* sinyal üreten mekanizmada da artış görülür. Bir başka deyişle, *kondaktif* sinyal oluşumu gözenekten geçen parçacığın etrafında toplanan karşıt iyon miktarı ile orantılı olduğundan parçacığın yüzey yükü arttıkça *kondaktif* sinyalde de artış beklenir. Parçacık yüzey yüküne bağlı olarak EÇT'de biriken fazla yük miktarından dolayı iyon sayısı da artacağından parçacık yüzey yükü ile EÇT'deki herhangi bir noktadaki yük yoğunluğu arasında doğru orantı vardır denilebilir.

*Bifazik* sinyal oluşumunda parçacık yüzey yükü etkili olurken *konik* geometrili gözeneklere özgü *rektifikasyon* davranışında elde edilen sinyal şeklinde belirleyici faktör gözeneğin yüzey yüküdür. Gözenek yüzey yükünün *rektifikasyona* etkisi, gözenek pH'ı değiştirilerek ve yüzeye DNA modifiye edilerek yapılan çalışmalarla [13] gösterilmiştir.

Yüzey yüklerinin yüksek seçicilik gösterdiği ya da reddetme eğiliminde olduğu pozitif ve negatif yüklerin dağılımına göre gözenekte potansiyelle bağlı iyon birikim/tükenim bölgeleri oluşur. Gözeneğin yüzey yükünün negatif olduğunu kabul edersek, gözenek katyonlar için seçici, anyonlar için reddedici davranış sergiler. Bunun sonucunda negatif potansiyelde iyon birikimi, pozitif potansiyelde iyon tükenimi oluşur ve bu şekilde gözeneğin yük etkisi ile *rektifikasyon* meydana gelmiş olur.



*Konik* geometrili *nanogözeneklerin nanopartikül* geçişinde ürettikleri *bifazik* sinyaller incelendiğinde, sinyal dalga şekillerinin yüklü parçacık ile gözenek yüzeyi arasındaki elektrostatik etkileşimi yansıttığı görülür [12]. Negatif yüklü *nanogözeneğe Şekil 3*'te görüldüğü gibi taban girişi tarafındaki elektrottan negatif potansiyel uygulandığında gözenek içerisinde iyon artışı meydana gelir. Yüklü parçacık dış çözeltiden gözenek girişine geldiğinde her iki yüzey yükünün etkisiyle gözenekteki yük ve iletkenlik artışından dolayı iyonik akımda artış gözlenir (*kondaktif* sinyal). Parçacık gözenek içerisinde ilerledikçe yük dağılımı da değişir. Uygulanan potansiyelle birlikte iyon birikiminde meydana gelen artış, hacim dışlama etkisini baskın duruma geçirir (*rezistif* sinyal). Parçacık gözenekte ilerlemeye devam ettikçe hacim dışlama etkisi ve yüzey yüklerinden kaynaklanan iyonik etkileşim azalır ve akım başlangıç miktarına geri döner.

Sinyal şekillerinin yüzey yüklerine bağımlılığı incelendiğinde, gözenek yüzey yükü gözenek içerisindeki iyon birikiminden sorumlu olduğundan, negatif yüzey yükü arttıkça başlangıç akımında da artış gözlenir. Buradan *rektifikasyonda* gözenek yüzey yükünün belirleyici unsur olduğunu anlıyoruz. Ancak gözenek yükünün *bifazik* akım davranışında önemli bir etkisi yoktur. Parçacık, gözeneğe girdiğinde elektrostatik etkileşimle gözenekteki yük dağılımını değiştirdiğinden, *bifazik* sinyallerin dalga şeklini etkileyen mekanizmanın parçacık yükünden kaynaklandığı görülür.

Parçacık yüzeyinde işlem yapıldığında, yüklü parçacığın hassas bir şekilde ölçümü için etkin parametrelerin iyon konsantrasyon yoğunluğu ve potansiyelin polaritesi olacağını öngörebiliriz. Yüzey yüklerine bağlı olarak oluşan sinyaller konsantrasyon yoğunluğunun etkisiyle şekillenir. Bu durumda *bifazik* ve *kondaktif* oluşan sinyal dalga şekilleri önemli olur. *Bifazik* sinyallerde görülen artış yönündeki *kondaktif* sinyaller iyonik tükenimin meydana geldiği algılama bölgesinden geçen parçacığın yüzey yüküne bağlı olarak taşıdığı karşıt yüklü iyonların meydana getirdiği iyonik zenginleşmeden kaynaklanır. Yoğun konsantrasyonda bu karşıt yükler iyonik zenginleştirme yapamayacaklarından elde edilen sinyal parçacığın yükünden değil boyutundan kaynaklanan *rezistif* şeklinde olur. Konsantrasyon yoğunluğunun az olduğu bir ortamda parçacığın yüzey yüklerinin etkisiyle üzerinde taşıdığı karşıt yükler etkin hale geçer ve *kondaktif* sinyal oluşmasıyla parçacık yükü hakkında bilgi edinilebilir. Uygulanan potansiyelin *Şekil 3*'te gösterilen şekilde uygulandığını varsayarsak pozitif potansiyel tükenim bölgesini gözeneğin taban girişinde oluşturacaktır. Birikim bölgesi uç tarafında oluşan gözenekten geçen parçacık burada karşılaştığı iyonik birikimden dolayı yoğun konsantrasyonlu ortamdaki gibi *kondaktif* sinyal üretemez ve boyuta bağlı olarak

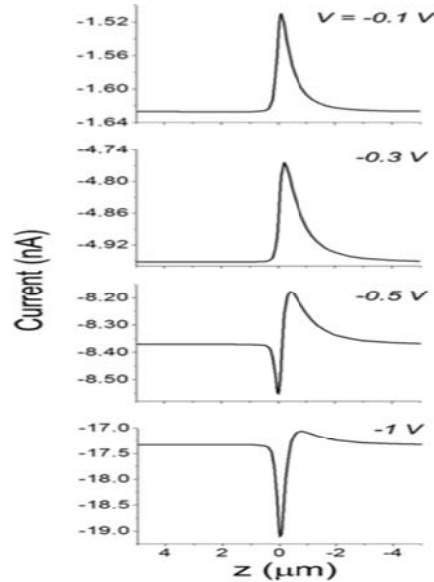
*rezistif* sinyal ölçülür. Negatif potansiyel uygulandığında ise gözeneğin uç kısmı tüketim tarafı olur, buradan geçen parçacığın yükünden kaynaklı taşıdığı karşıt yükler *kondaktif* sinyal üretir ve bu şekilde de parçacık yüküne bağlı analiz yapılabilir.

Parçacık ile gözenek duvarının etkileşimi parçacığın gözenekten geçiş süresini uzatacaktır [9]. Bu önerme **ADSA** modeli ile yapılan çalışmalarla da [6,19] tutarlılık gösterir. Parçacığın gözenek yüzey yükleriyle etkileşimi ile elektroforetik ve elektroozmotik hareketliliğinin kombinasyonu, parçacığa etki eden elektroforetik kuvvetleri oluşturur. Elektroforetik kuvvetlerle akışkan kuvvetleri de parçacığın hız bileşenlerini meydana getirir. Gözenek genişledikçe hızı artan akışkanın parçacık üzerinde oluşturduğu kuvvet etkileri de artar. Parçacık ve gözenek yüzeyi arasındaki mesafenin artmasıyla elektrostatik etkileşim azalır. Bu durum parçacığın gözenekte tutulma süresini kısaltır, elde edilen sinyalin boyu ve parçacığın algılanma süresini belirten sinyal genişliği de azalmış olur. Parçacığın geçiş eksenine dayalı olarak oluşturduğu sinyallere bakıldığında ise [6] elektrik alan gözenek yüzeyine yakın bölgede daha fazla olduğundan gözenek genişledikçe parçacığın yörüngesi merkezden gözenek yüzeyine doğru kayar. Elektrostatik etkileşimin kuvvetli olduğu yüzeyde daha yavaş hareket edeceğinden burada daha fazla tutulur ve hem sinyalin boyutu hem de parçacığın geçiş süresi artar. Gözenek boyutu küçüldükçe parçacık yörüngesi merkez eksenden geçme eğilimi gösterir, merkezdeki elektrik alan daha düzgün olduğundan bu yörüngeden geçen parçacığın sinyali nispeten daha küçük olur.

*Bifazik* sinyallerde *kondaktivite* oluşumunu açıklayan parçacığın yüzey yükü, *kapasitif* modelde de [11] benzer durum oluşturur. Parçacık, kendisiyle beraber etrafında biriken karşıt iyonları da gözeneğin içerisine sürükler ve gözenekte biriken yük miktarında artış meydana gelir. Sinyal yük birikimine bağlı olduğundan *kapasitif* modelde sinyal artışı gözlenir. Ancak gözeneğin alabileceği yük kapasitesi dolduğunda sinyal artıştan sabit duruma geçer yani belli bir değerden sonra parçacık yükündeki artış sinyal artırımını oluşturmaz.

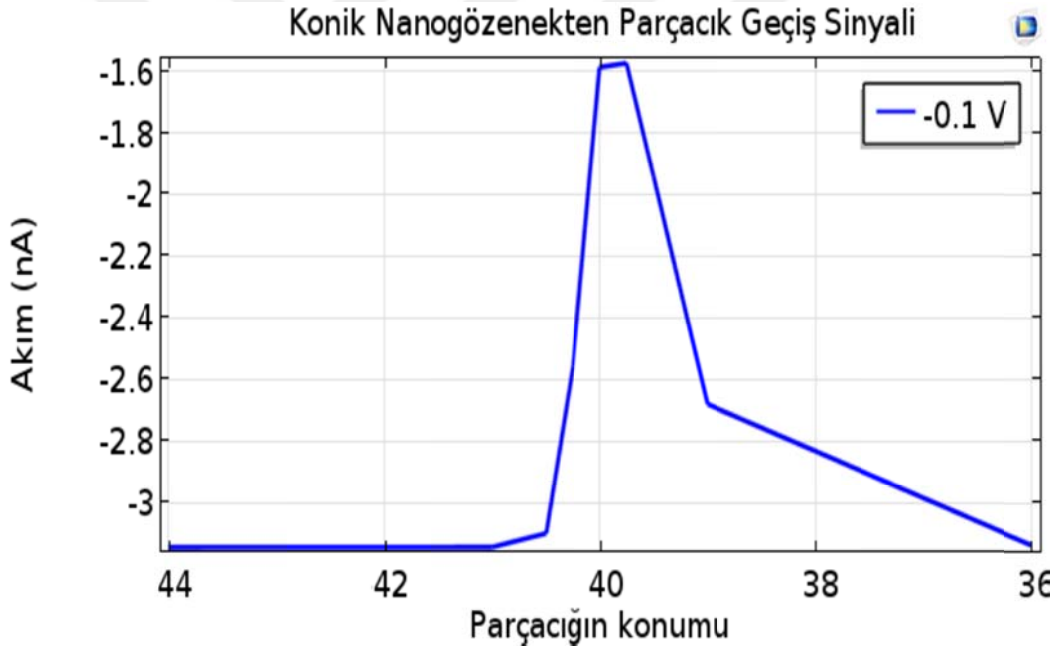
## 4. VALİDASYONLAR

Modellemedeki amaç, teorik veya gerçek bir sistemin değişik koşullar altındaki davranışlarını anlamak, farklı stratejileri değerlendirmek ve bu amaçla geliştirilen bilgisayar modeli üzerinde denemeler yaparak gerçek sistemin karakteristiğinin izlenmesidir. Bu çalışmada yapılan modellemelerde de yüzey yükleri, gözenek ve parçacık boyutları, potansiyel, basınç, konsantrasyon parametrelerindeki değişikliklerle *nanogözenekten* elde edilen sinyallerde farklılığa sebep olan mekanizmaya açıklık getirilmeye çalışılmıştır. Bu tezi oluşturmak için incelediğimiz çalışmalarda, deneylerden elde edilen sinyallerin niceliksel tutarlılığının belirlenebilmesi için simülasyonlarla desteklendiğini gördük. Kendi modellemelerimize geçmeden önce, daha önce yapılan çalışma sonuçlarının sağlamasını yaparak bu makalelerde elde edilen verilerle tutarlılığımızı gördük. Önce verilen grafikler, sağlamasını yapmak için kullandığımız deney verilerinin simülasyon sonuçlarını, sonraki grafikler de bizim elde ettiğimiz sonuçları göstermektedir.

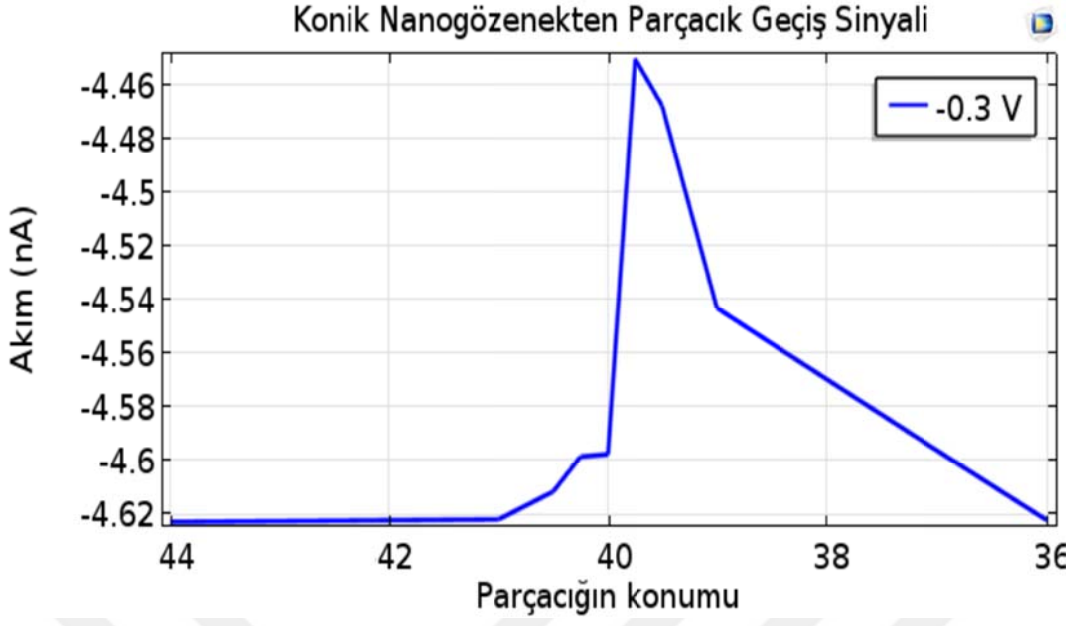


Şekil 8. Potansiyel Polarizasyonuna Göre Sinyal Oluşumu için Deney Sonuçları [12]

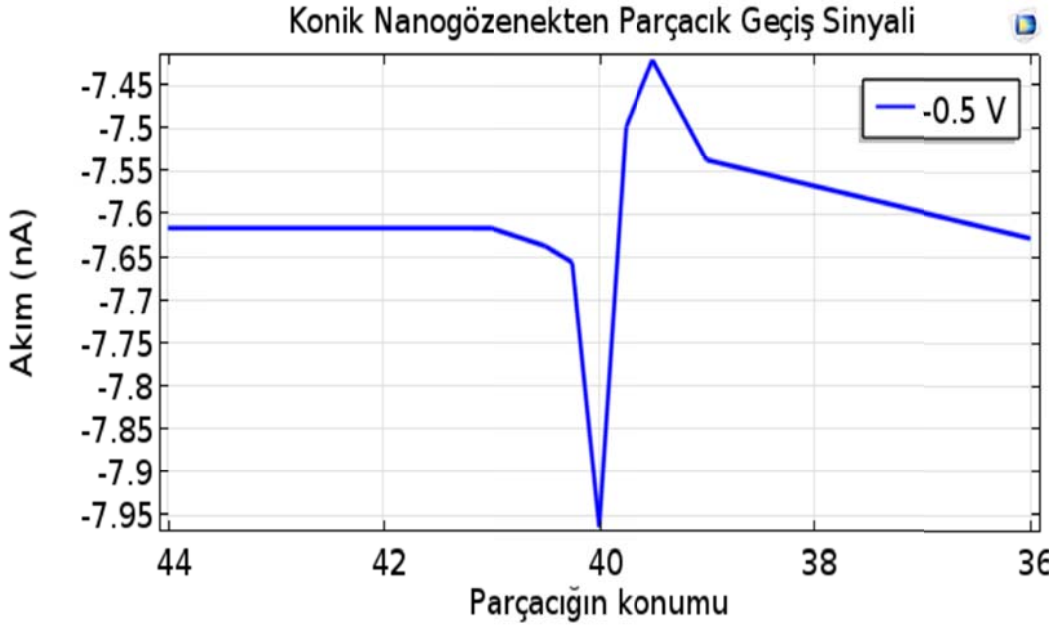
Şekil 8'de [12] yüzey yükü  $-0.015C/m^2$  olan 160nm yarıçapındaki parçacığın, uç yarıçapı 215nm olan *nanogözenekten* geçişi sırasında oluşan sinyal şekillerinin potansiyele bağımlılığı gösterilmektedir. Uygulanan potansiyel  $-0.1V$  ile  $-1V$  aralığındadır. **Bölüm 3.3.3**'de de belirttiğimiz gibi parçacığın gözenekten geçişi sırasında, voltaj negatif yönde arttıkça başlangıç akımı artar, *rezistif* sinyal *bifazik* görünüme kayar, voltaj değeri çok büyük olduğunda da direnç sinyali hemen hemen kaybolur ve sadece *kondaktif* sinyal görülür. Buradan anlaşılacağı gibi gözenekte biriken iyon miktarı potansiyelin yönü ve büyüklüğüne büyük oranda bağlıdır. Negatif işaretli potansiyel arttıkça negatif yüklü gözeneğe daha fazla iyon taşınır. Potansiyel artışı ile parçacığın yüzey yükleri de daha etkin hale gelir, gözenekteki iyon artışı hacim dışlama etkisine baskın çıkar ve *kondaktif* sinyal oluşur. Potansiyel eşik değerindeki büyüklüğe çıktığında hacim dışlama etkisi kaybolur, fazla miktardaki iyon birikiminden dolayı *kondaktif* sinyal görülür.



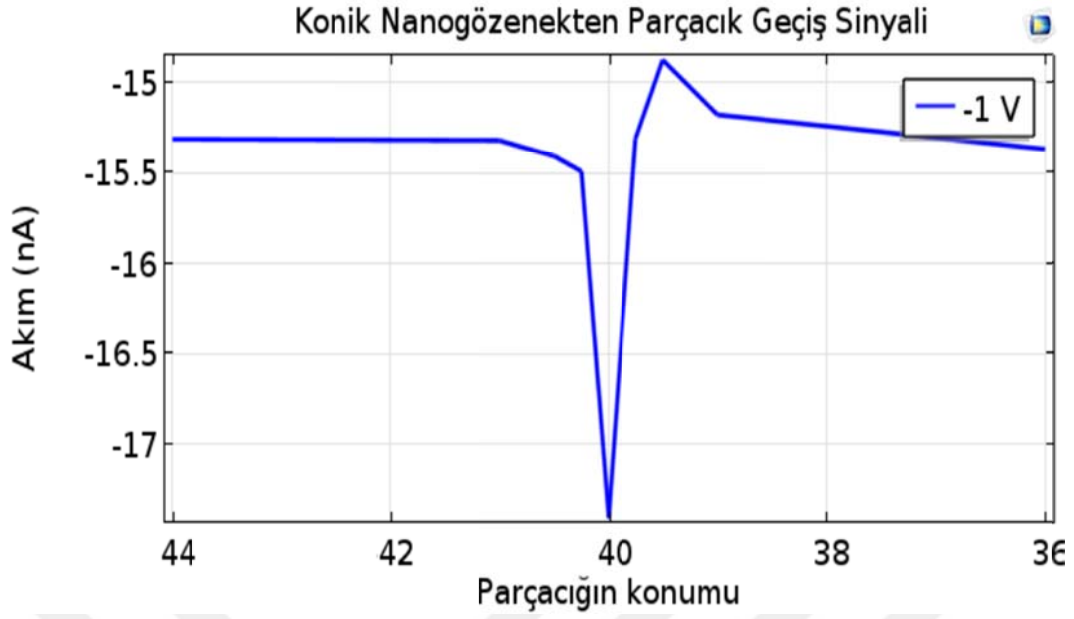
Şekil 8.a.  $-0.1V$ 'da Konik Gözenekten Parçacık Geçiş Sinyali



Şekil 8.b. -0.3V'da Konik Gözenekten Parçacık Geçiş Sinyali

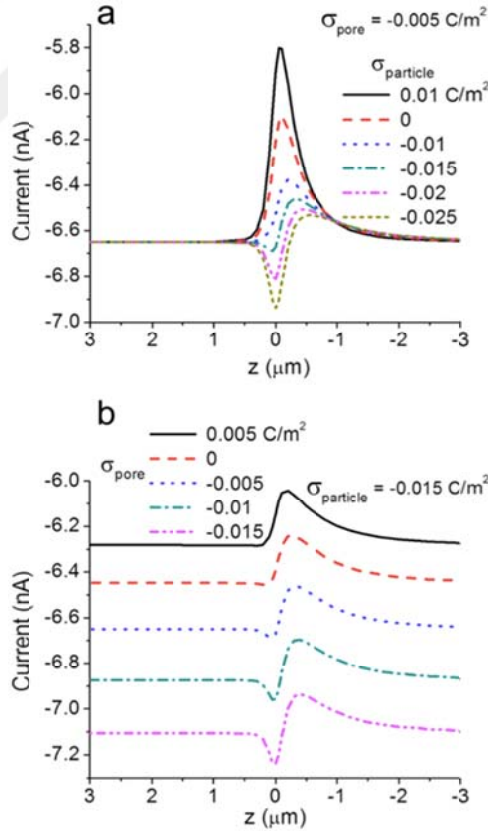


Şekil 8.c. -0.5V'da Konik Gözenekten Parçacık Geçiş Sinyali

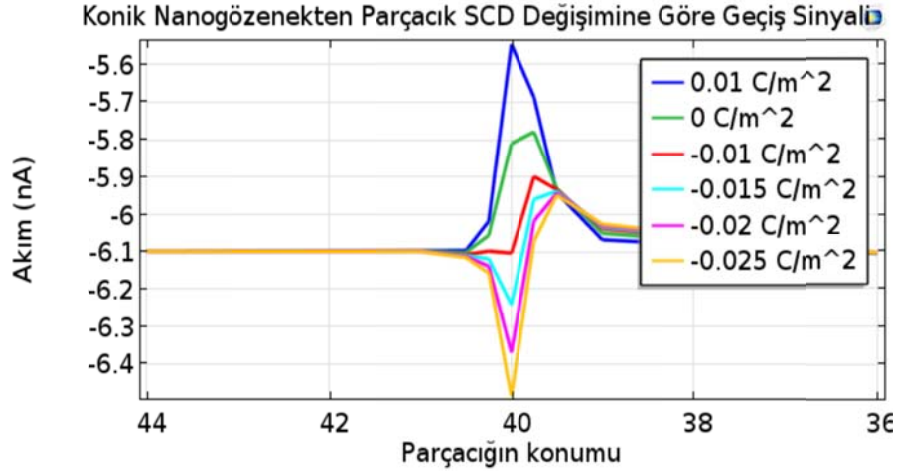


Şekil 8.d. -1V'da Konik Gözenekten Parçacık Geçiş Sinyali

Şekil 9'da [12] gözenek ve parçacık yüzey yüklerinin akım sinyalleri üzerindeki etkileri gösterilmiştir.

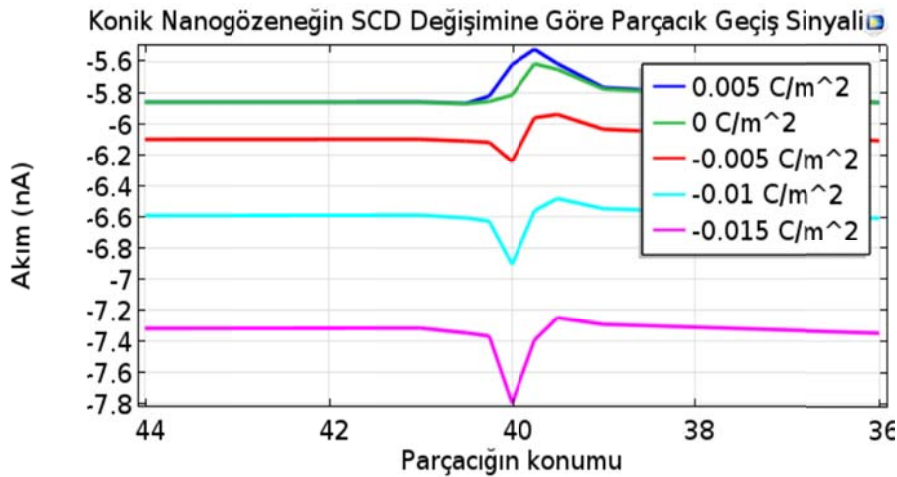


Şekil 9. Nanogözenek ve Parçacık Yüzey Yüklerine Bağlı Sinyal Oluşumu için Simülasyon Verisi [12]



**Şekil 9.a.** Parçacık Yüzey Yükü Değişimine Göre Gözenekten Geçiş Sinyali

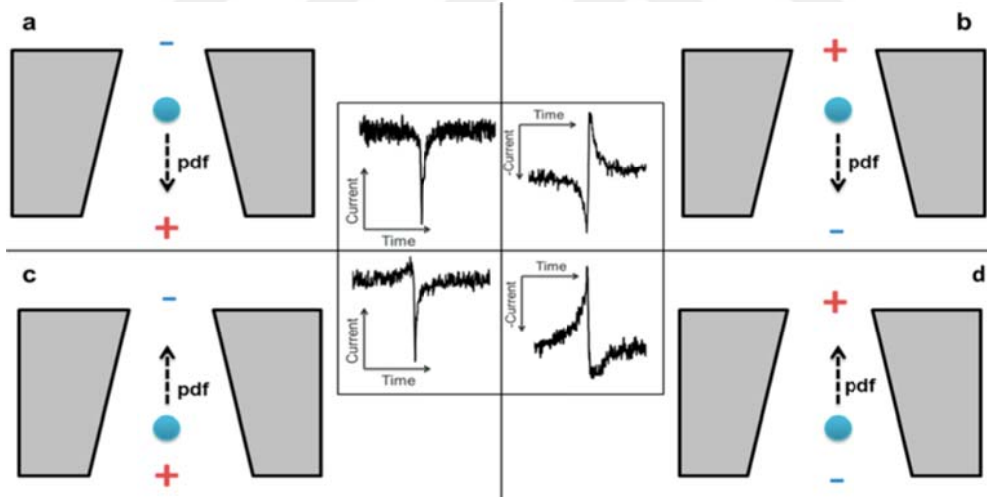
Şekil 9.a.'da  $-0.4V$  potansiyel altında gözenegin yüzey yükü  $-0.005C/m^2$ 'de sabit tutulup parçacığın yüzey yükü  $0.01C/m^2$  ile  $-0.025C/m^2$  aralığında değiştirilmiştir. Şekilde de görüldüğü gibi parçacığın yüzey yükündeki değişim başlangıç akımını etkilemez. Ancak sinyal şekillerinin oluşumu parçacık yüküne bağlıdır. Gözenek yüzeyi ve uygulanan potansiyel negatif olduğunda, pozitif yüklü ve nötr parçacıkla elektrostatik etkileşime geçen karşıt yükler, gözenek yüzeyi tarafından reddedileceğinden hacim dışlama etkisi iyonik artışa baskın gelir ve akımda düşüş okunur. Parçacık yükü negatif yönde arttıkça üzerinde biriken karşıt yüklerle gözenek iletkenliğini artırarak *bifazik* sinyal oluşturur. Negatif parçacık yükü çok arttığında gözenek girişindeki iyon birikimi daha da baskın hale gelerek direnç sinyalini ortadan kaldırır ve akımda büyük oranda sadece artış gözlenir (*kondaktif* sinyal).



**Şekil 9.b.** Gözenegin Yüzey Yükü Değişimine Göre Gözenekten Geçiş Sinyali

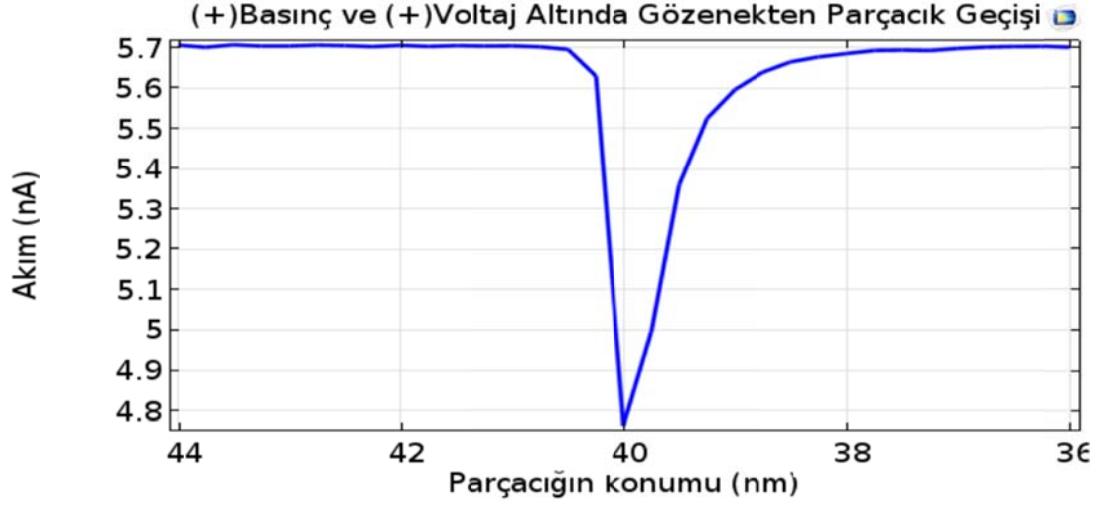
**Şekil 9.b.**'de ise  $-0.4V$  potansiyel uygulanan gözeneğin yüzey yükü  $0.005 C/m^2$  ile  $-0.015C/m^2$  aralığında değiştirilirken parçacık yükü  $-0.015C/m^2$ 'de sabit tutularak ölçüm yapılmıştır. Gözenek içerisindeki iyon birikim/tükeniminde en önemli parametrelerden biri gözenek yüzey yüküdür. Grafikte görüldüğü gibi yük negatif yönde arttıkça, gözenekte biriken iyon miktarı arttığından, başlangıç akımlarında da artış olmuştur. Parçacık yükü de gözenek iletkenliğini etkileyecek değerde sabit tutulduğundan, gözeneğin yükü arttıkça hacim dışlama etkisi ile iyon birikim etkisi rekabet haline geçer ve sinyal *bifaziğe* dönüşür. Ancak *kondaktif* sinyal parçacık yüküne bağlı olduğundan *rezistif* sinyalin yok olup sadece *kondaktif* sinyalin görülmesi için parçacık yükünün de artırılması gerekir. Ayrıca pozitif yüklü gözenekte iyon tükenimi olduğundan şekilde de görüldüğü gibi akım azalır sadece *rezistif* sinyal oluşur, bu da *rektifikasyon* oluşumunda gözenek yükünün etkinliğini gösterir.

**Şekil 10**'da [15]'de verilen sinyal şekillerinin hem basıncın hem de potansiyelin polaritelerine ve gözenek girişlerinin konumlarına bağlılığı analiz edilmiştir. Uygulanan potansiyele bağlı olarak gözenek girişlerinde oluşan birikim/tükenim bölgelerinden basıncın polaritesine göre yönlendirilen parçacık sinyali şekillendirir.



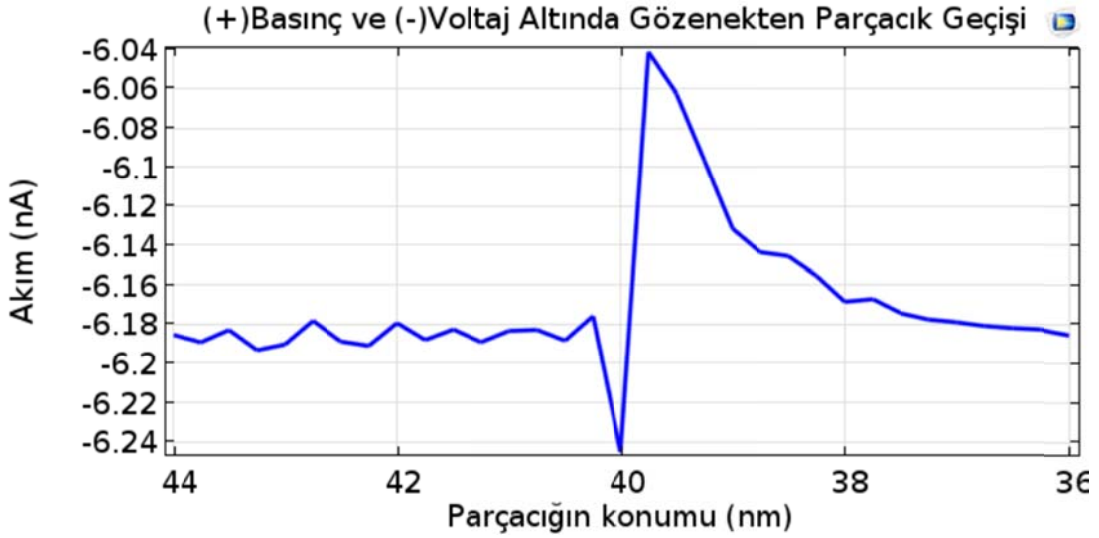
**Şekil 10.** Potansiyel ve Basıncın Polaritelerine Bağlı Sinyal Oluşumu için Deney Verisi [15]





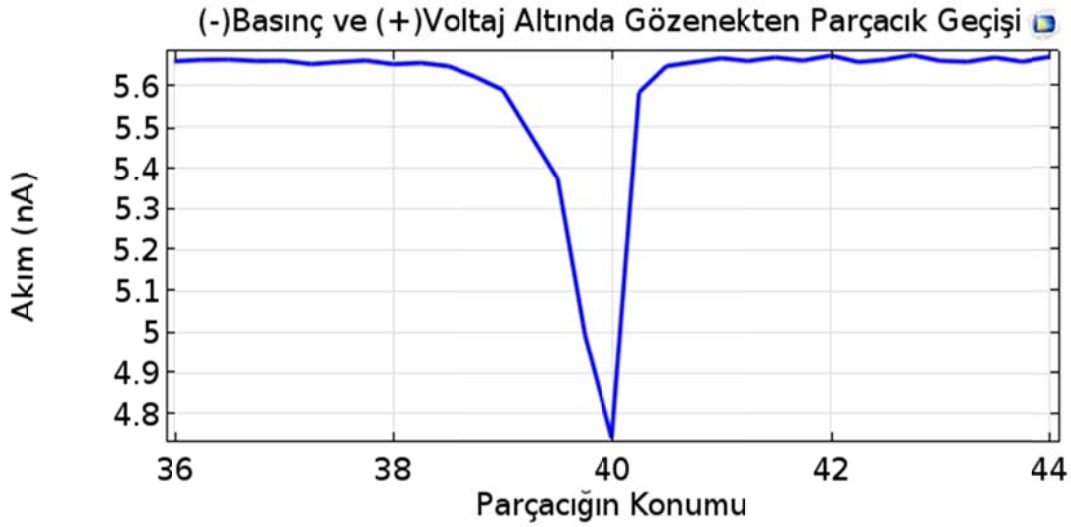
**Şekil 10.a.** Pozitif Basınç ve Pozitif Potansiyel Altında Parçacığın Gözenekten Geçiş Sinyali

Şekil 10.a.'da pozitif voltaj altında pozitif basınç uygulanmış ve sadece *rezistif* sinyal okunmuştur. Önceki bölümlerde belirttiğimiz gibi pozitif potansiyelin olduğu bölge tükenim bölgesidir. Tükenim bölgesi gözenegin geniş çaplı girişinde oluştuğundan *kondaktif* sinyal elde edilemez. *Kondaktif* sinyalin oluşabilme şartlarından birisi de tükenim bölgesinin gözenegin en dar kısmında oluşmasıdır. Birikim bölgesi parçacığın algılanma bölgesi olan gözenegin uç kısmında oluşmuştur. İyonik yük yoğunluğunun bulunduğu uç bölgesinden geçen parçacık üzerindeki karşıt yüklerle iyonik artış meydana getiremeyeceği için hacim dışlama etkisi baskın duruma geçmiş ve sadece rezistif sinyal görülmüştür.



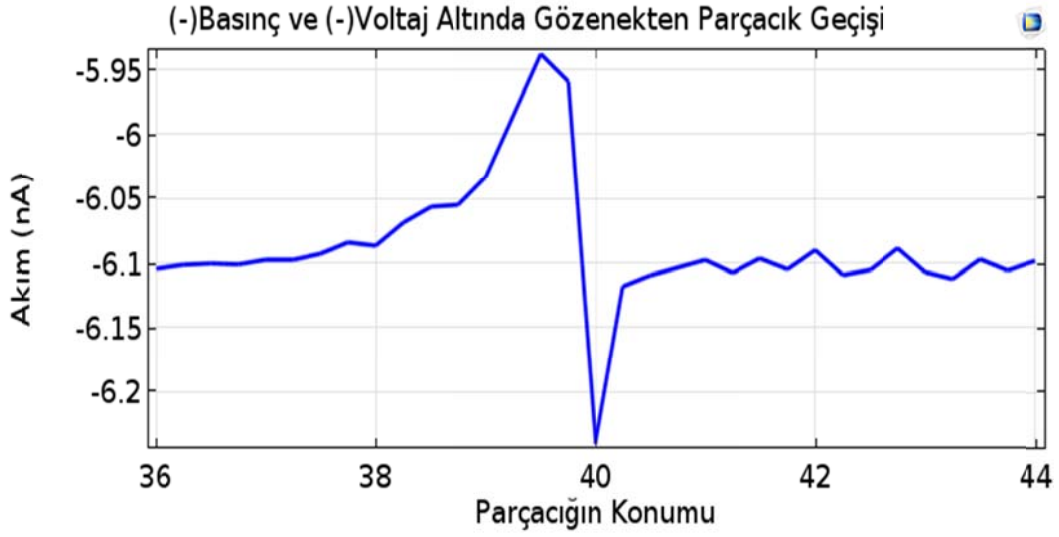
**Şekil 10.b.** Pozitif Basınç ve Negatif Potansiyel Altında Parçacığın Gözenekten Geçiş Sinyali

**Şekil 10.b**'de negatif potansiyel uygulanan gözenekte tükenim bölgesi küçük çaplı gözenek girişinde, birikim bölgesi de geniş çaplı gözenek girişinde oluşmuştur. Parçacık iyonik tükenimin olduğu algılanma bölgesi olan gözeneğin uç kısmından geçerken öncelikle üzerindeki karşıt yüklü iyonlarla iyonik zenginleşmeye sebep olur. Akımda bir miktar artış meydana gelir ve *kondaktif* sinyal oluşur. Daha sonra tam tipten geçtiği sırada iyonik akımı engellediğinden hacim dışlama etkisi baskın hale geçer, *rezistif* sinyal oluşturur. Bu şekilde önce iyonik artış ve ardından azalışın meydana gelmesiyle *bifazik* davranış ortaya çıkar.



**Şekil 10.c.** Negatif Basınç ve Pozitif Potansiyel Altında Parçacığın Gözenekten Geçiş Sinyali

**Şekil 10.c.**'de **Şekil 10.a**'daki gibi pozitif potansiyel uygulanmıştır. Uç kısmında birikim bölgesi, taban girişinde tükenim bölgesi oluşan gözenekte negatif basınç etkisiyle hareket eden parçacık tükenim bölgesinden birikim bölgesine doğru harekete geçmiştir. Basıncın polaritesinin değişmesinin **Şekil 10.a.**'dakinden farklı bir durum oluşturmadığını görüyoruz. Bu bize sinyal şekillerinin potansiyelin işaretine bağlı olarak birikim tükenim bölgelerinin gözeneğin hangi girişinde oluştuğuna bağlı olduğunu gösteriyor.



**Şekil 10.d.** Negatif Basınç ve Negatif Potansiyel Altında Parçacığın Gözenekten Geçiş Sinyali

**Şekil 10.d.**'de hem basınç hem potansiyel negatif polariteye sahiptir. Birikim bölgesi geniş, tükenim bölgesi küçük girişinde oluşan gözenekten negatif basınç altında hareket eden parçacık *bifazik* sinyal oluşturur. Birikim bölgesinden harekete geçen parçacık iyonik tükenimin olduğu algılanma bölgesinden geçerken önce *rezistif*, daha sonra iyonik artışın devreye girmesiyle *kondaktif* sinyal oluşturmuştur. **Şekil 10.b.**'deki sinyalle aynı görsel oluşmuş gibi görünse de basıncın yönü farklı olduğu için parçacığın geçiş yönüne dikkat edildiğinde sinyallerdeki farklılık görülür.

## 5. SİNYAL DUYARLILIĞI

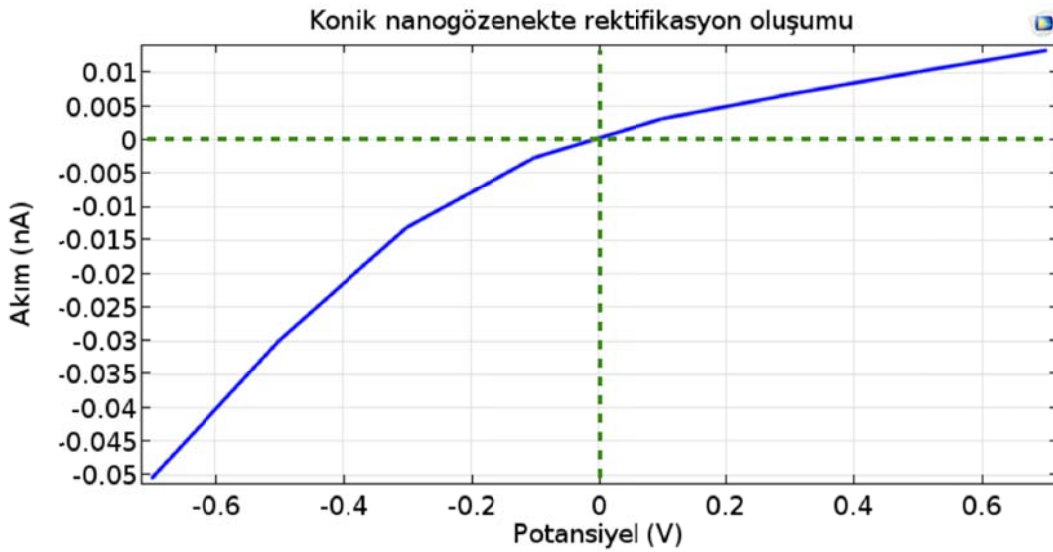
### 5.1 Konik, Tek-Tip Çift-Konik ve Çift-Tip Çift-Konik Gözenek Geometrilerinde Rektifikasyon Oluşumunun Kıyaslanması

*Rektifikasyon konik nanogözeneklerde gözlemlenen akımın diyot benzeri davranması durumudur. Gözenek yüzey yükü ile potansiyele aynı polarlama yapıldığında sistem iletken durumuna geçer ve iyonik akımda artış olur. Gözenek yüzey yüküne zıt polaritede potansiyel uygulandığında ise sistem yalıtkan gibi davranır, iyonik taşınım yani akım azalır. Birinci durumda karşıt iyonlar yüzey yükleri ve elektrot tarafından gözenek içerisine çekilerek iyonik akım artışı meydana getirir, ikinci durumda ise zıt polariteli potansiyel uygulanmasından dolayı iyonlar gözenek yüzey yükleri tarafından reddedilir, dolayısıyla elektrot iyonları çekemez ve gözenekte iyonik taşınım azalır, bu şekilde *rektifikasyon* gerçekleşmiş olur.*

Çalışmamızın bu bölümünde *nanogözeneklerdeki rektifikasyon* davranışına gözenek geometrisinin etkisi incelenmiştir. İyonik konsantrasyonun 100mM olduğu ortamda tip çapı 3nm, uzunluk-kalınlık-genişlik ölçüleri 12µm, yüzey yükü  $-0.008C/m^2$  olan *konik, tek-tip çift-konik* ve *çift-tip çift-konik* olmak üzere üç farklı geometri için yapılan simülasyonlarda  $\pm 1V$  potansiyel fark aralığında elde edilen *rektifikasyon* davranışları gösterilmiştir.

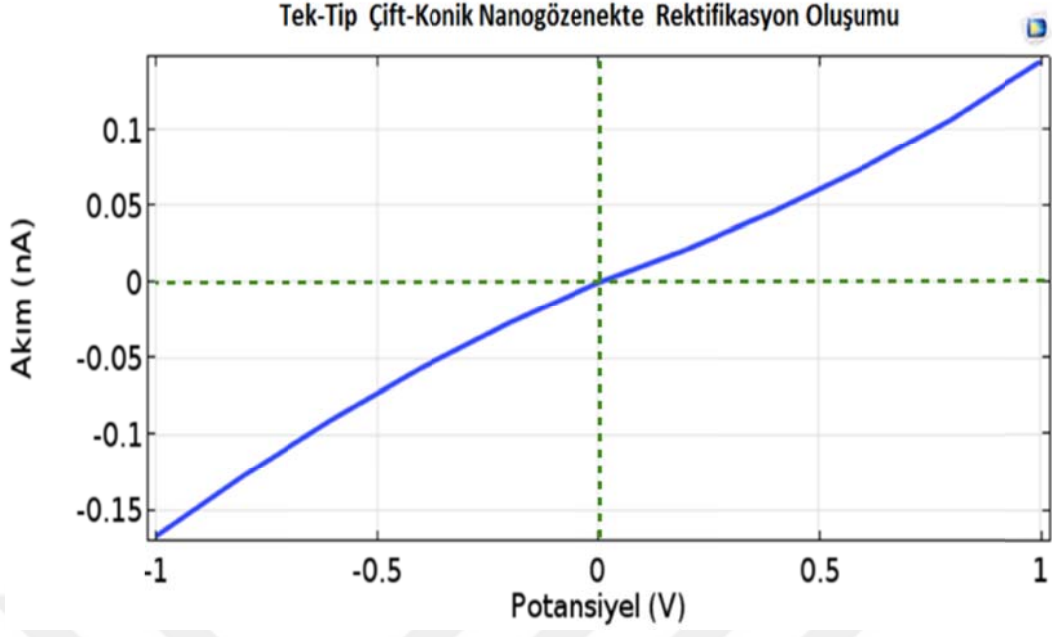
*Konik* geometrinin çiftli ve tekli varyasyonlarıyla karşılaştırma yapıldığında *konik* gözenekte *rektifikasyon* görülürken *tek-tip çift-konik* geometri ve *çift-tip çift-konik* geometri gözeneklerde akım sinyali artan/azalan hemen hemen simetrik şekilde oluşmuştur ve *rektifikasyon* belirsizdir. *Çift-konik nanogözeneklerle* yapılan deneysel çalışmada *rektifikasyon*, gözenek iletkenliğinin sıfırlandığı bir bölgenin oluştuğu şaşırtıcı bir sonuçla birlikte gözlenmiştir[13]. Bu tezde yapılan simülasyonlarda seçilen simülasyon parametre değerleri ile belirgin bir *rektifikasyon* gözlemlenmemiştir.

**Şekil 11.a.**'da *konik* geometrinin asimetrik yapısından beklenildiği gibi belirgin bir *rektifikasyon* oluşumu gözlenmiştir. Asimetrik yapının etkisi, EÇT'nin uçta kapladığı mesafe gözenek boyunca farklılaştığından, iyonik akışkanın gözeneğin her yerinde yüzey yükleri ile aynı mesafede etkileşime geçememesi ile kendisini gösterir. **Bölüm 3.1**'de anlattığımız gibi potansiyel aralığında akım değişimine bakıldığında gözenekte diyot benzeri davranış oluşur. Negatif yüklü gözenek yüzey yüklerinin ve negatif potansiyel uygulanan elektrotun oluşturduğu iyonik akım artar, potansiyel pozitif kutuba döndürüldüğünde yüzey yüklerinin iyonları reddetmesiyle azalışa geçer.

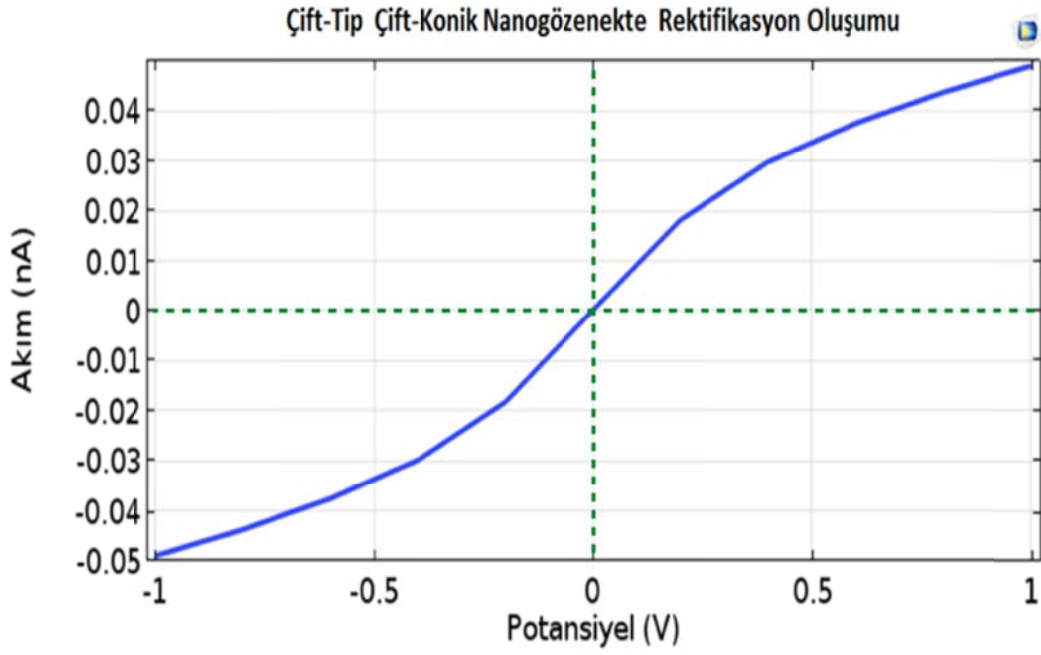


**Şekil 11.a.** Konik Nanogözenekte Rektifikasyon Sinyali Oluşumu

**Şekil 11.b.**'de *tek-tip çift-konik* ve **Şekil 11.c.**'de *çift-tip çift-konik* gözenek geometrileri ile yapılan ölçümlerde sırasıyla 0.05nA ve 0.01nA'lik azalmalar ile görülen *rektifikasyonun* daha belirgin olması beklenebilirdi. *Konik* geometrili *nanogözenekte* RF değeri ~5 olarak oluşurken *tek-tip çift-konik* geometrili gözenekte ~1.15, *çift-tip çift konik* gözenekte de ~1.02 olmuştur. Kuvvetli bir akım doğrultması ortaya çıkmamasına rağmen bu geometrilerde de asimetrik yapıdaki *nanogözeneklerin* karakteristiğinin sergilendiğini görmek açısından dikkate değer bir sonuçtur.



Şekil 11.b. Tek-Tip Çift-Konik Nanogözenekte Rektifikasyon Sinyali Oluşumu

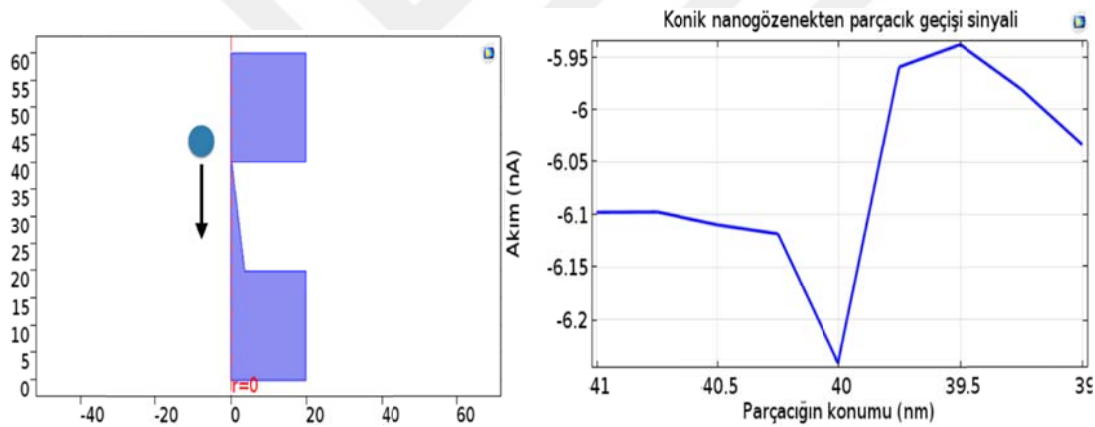


Şekil 11.c. Çift-Tip Çift-Konik Nanogözenekte Rektifikasyon Sinyali Oluşumu

## 5.2 Konik, Tek-Tip Çift-Konik ve Çift-Tip Çift-Konik Nanogözenek Geometrilerinde Parçacık Duyarlılığının Kıyaslanması

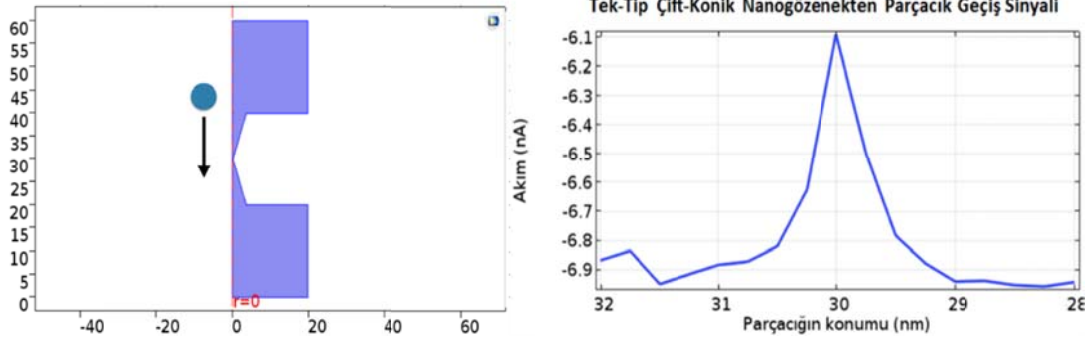
*Nanogözenekler* DNA sekanslama, protein analizi gibi parçacık algılama süreçlerinde kullanıldığında, parçacık duyarlılığını etkileyen en önemli parametrelerden birisi gözenek geometrisi olur. *Nanogözenek*in geometrisi farklılaştığında, parçacık gözenekten geçirildiğinde oluşan sinyal şekilleri de gözenek geometrisine göre farklılaşır.

Bu bölümde aynı parçacığın farklı geometrilere sahip üç farklı *nanogözenek*ten geçişi sırasında gözeneklerin parçacığa gösterdikleri duyarlılıklar incelenmiştir. İyonik konsantrasyonun 10mM olduğu ortamda tip çapı 430nm, uzunluk-kalınlık-genişlik ölçüleri 20 $\mu$ m ve yüzey yükü  $-0.005C/m^2$  olan *konik*, *tek-tip çift-konik* ve *çift-tip çift-konik* gözeneklerden  $-0.4V$  potansiyel ve  $-4mmHg$  basınç altında 160nm yarıçaplı ve  $-0.015C/m^2$  yüzey yüklü parçacık geçirilerek elde edilen sinyaller gösterilmiştir.



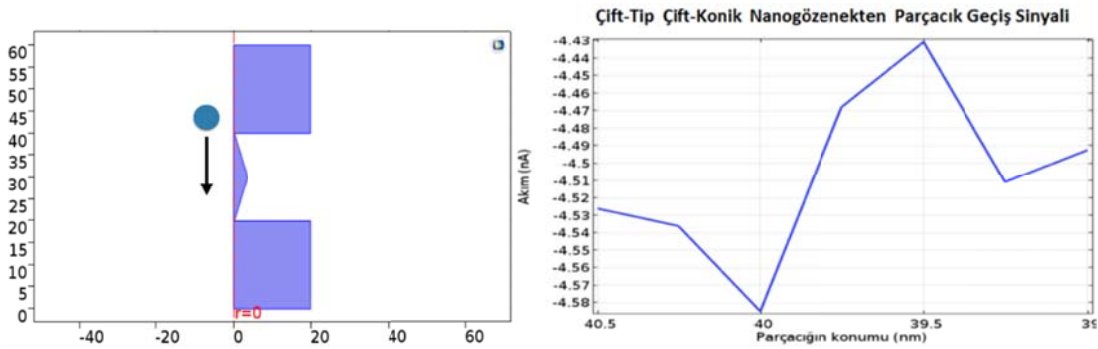
**Şekil 12.a.** Konik Nanogözenekten Parçacık Geçiş Sinyali Şekil Analizi

**Şekil 12.a.**'da *konik* geometrili gözenekten parçacık geçişi sırasında oluşan sinyal simülasyonlardan elde ettiğimiz sonuçlara göre *bifazik* olarak oluşmuştur. Negatif polariteli potansiyeli gözenek'in geniş girişinden uyguladığımızdan birikim bölgesi burada oluşur. Uygulanan negatif basınç parçacığı yukarıdan aşağıya doğru yönlendirir. Tükenim bölgesinin oluştuğu algılanma bölgesinden geçen parçacığın üzerindeki beraberinde getirdiği karşıt yüklü iyonlarla birlikte geçtiği tükenim bölgesinde meydana getirdiği iyonik zenginleşmeden dolayı artış, daha sonra uçtan geçiş anında iyonik akışı engelleyeceğinden hacim dışlama etkisini baskın hale getirdiğinden dolayı azalış görülmüştür.



**Şekil 12.b.** Tek-Tip Çift-Konik Nanogözenekten Parçacık Geçiş Sinyali Şekil Analizi

**Şekil 12.b.**'de gözeneğin geometrisi *konik* gözenek ile aynı ölçülerde *tek-tip çift-konik* şeklinde simüle edilmiştir. Elde ettiğimiz sonuçlarda sinyal sadece *rezistif* yani akımda azalma olarak görülmüştür. Önceki bölümlerde belirttiğimiz gibi *bifazik* sinyal oluşumu, tükenim bölgesinin gözeneğin tip kısmında meydana gelmesine bağlıdır. Gözeneğin tipi kanalın içinde kaldığından iyonik birikim ve tükenimler gözeneğin geniş girişlerinde oluşur. Bu gözenek geometrisinden elde ettiğimiz sinyaller **Bölüm 4**'te anlattığımız pozitif potansiyel-pozitif basınç altında önerdiğimiz açıklamalar ile uyumludur. Uygulanan potansiyelle birlikte gözeneğin diğer tarafına geçmeye başlayan iyonlar gözenek içindeki daralmadan dolayı burada bir miktar birikim ve yığılma meydana getirirler. Parçacık tipten geçerken tükenim geniş girişte olduğundan, burada iyon yoğunluğu ile karşılaşır ve parçacığın yüzey yükleri iyonik artış etkisi yapamaz, dolayısıyla bu geometriden elde ettiğimiz simülasyon sonuçlarında *kondaktif* sinyal görülmemiştir.



**Şekil 12.c.** Çift-Tip Çift-Konik Nanogözenekten Parçacık Geçiş Sinyali Şekil Analizi

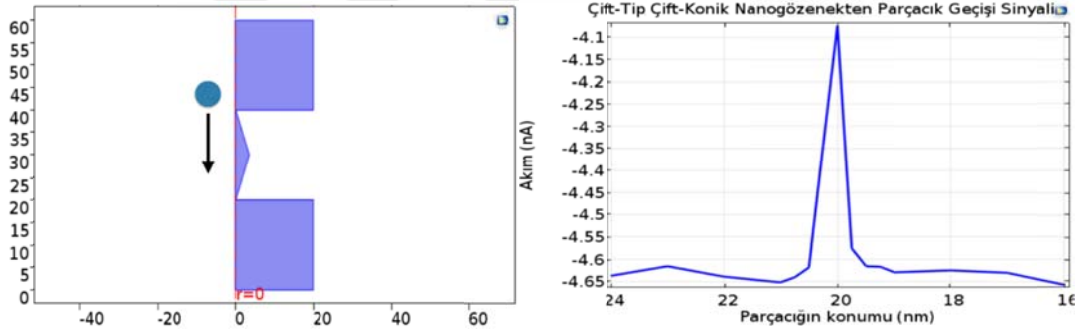
(Yukarı Uç)

**Şekil 12.c.**'de model *çift-tip çift-konik* geometri ile oluşturulmuştur. Bu geometride birikim ve tükenim bölgelerinin her ikisi de küçük çaplı açıklıklarda oluşur. Geniş gözenek girişi kanalın içinde yer aldığından buradaki iyon miktarı tükenim bölgesine oranla fazla, birikim bölgesine



nispetle biraz daha az olacaktır. *Kondaktif* sinyalin oluşma şartı olan tükenimin tip kısmında oluşması bu geometride mevcuttur. Parçacık tükenim bölgesinden geçerken parçacıkla birlikte gözeneğe giren karşıt iyonların meydana getirdiği iyonik zenginleşmeden dolayı simülasyon sonuçlarından elde ettiğimiz sinyalde iyonik akımda ilk önce artış görülmüştür. Daha sonra tam uçtan geçtiği anda iyonik akışı engelleyeceğinden hacim dışlama etkisinin baskın duruma geçmesiyle akımda azalma görülmüştür. Elde ettiğimiz simülasyon sonucuna göre sinyalde önce artış daha sonra parçacığın geçişiyle baskın hale gelen hacim dışlama etkisinden dolayı azalış oluşmasıyla bifazik sinyal görülmüştür.

*Çift-tip çift-konik* gözenekte oluşan sinyaller diğer iki geometriden farklı olarak sinyalin elde edildiği parçacık konumuna göre değişiklik gösterir. **Şekil 12.c.**'deki sinyal, parçacık gözenegin tükenim bölgesindeki tipten geçişi anında alındığından *bifazik* şeklinde oluşmuştur. **Şekil 12.d.**'de ise parçacık gözenekte birikimin gerçekleştiği uça konumlandığından elde edilen sinyaller *rezistif* olur. Aynı oryantasyon ile hareket ettirilen parçacık bu defa birikim bölgesinden çıkış yaptığından iyonik yoğunluktan dolayı oluşan direnç akımda düşüşe sebep olmuştur ve elde ettiğimiz sonuçlarda sadece *rezistif* sinyal görülmüştür.



**Şekil 12.d.** Çift-Tip Çift-Konik Nanogözenekten Parçacık Geçiş Sinyali Şekil Analizi (Aşağı Uç)

Parçacığın oluşturduğu sinyal tipten geçişi anında oluşturduğu akım değişimine bağlıdır. *Konik* ve *tek-tip çift-konik* gözenek geometrilerinde birer tip bulunur. Bu uçlarda (aynı işaret ve değerde uygulanan potansiyel için) tükenim/birikimin olduğu bölgeler değişmeyeceğinden parçacığın uçtan geçişi sırasında meydana gelen akım davranışında da bir değişiklik meydana gelmez. *Bifazik* sinyal oluşumu tükenim bölgesinin tipte oluşmasına bağlıdır. Negatif potansiyel altında değerlendirildiğinde her iki gözenek girişinin uçtan oluşması ve farklı iyonik polarizasyona sahip olması *çift-tip çift-konik* gözenek geometrisinde parçacığın konumuna göre farklı sinyal dalga şekilleri elde etmemizi sağlamıştır.

Üç farklı geometrideki sinyal oluşumları değerlendirildiğinde, potansiyelin geometrik oryantasyona göre iyon polarizasyonu üzerindeki etkisinin en önemli parametre olduğu anlaşılmaktadır. Elde ettiğimiz sonuçlar, potansiyele bağlı olarak oluşan iyonik birikim ve tükenimin gözeneğin hangi bölgesinde oluştuğunun parçacığın yüzey yükünün akım üzerinde oluşturacağı etkiyi belirlediğini göstermektedir.

### 5.3 Parçacık Boyutuna Göre Sinyal Oluşumu

Parçacığın gözenekten geçişi ile oluşan sinyal şekilleri, parçacığın gözenek içerisindeki iyon dağılımına etkisine bağlı olarak oluşur. Burada en etkin parametreler boyutla beraber parçacığın ve gözeneğin yüzey yükleridir. Yüklü parçacıkların gözenek içerisindeki etkileri, uygulanan voltaja bağlılık gösterir. Bununla beraber parçacığın gözenek içerisindeki algı bölgesine göre konumu da elde edilen sinyalin şeklini etkiler.

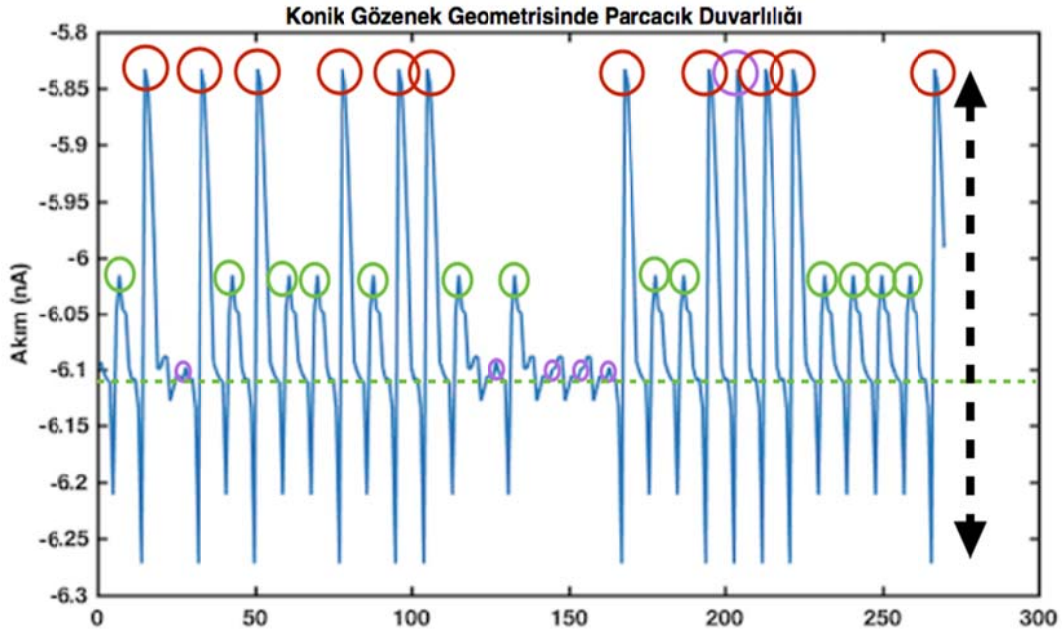
Akım sinyalinin genliği ve periyodu parçacığın boyu ile orantılıdır [6]. Parçacığın boyutu gözenekten çok küçük olduğunda ölçülen akım değişimi parçacığın tespiti için çok küçük olur ve parçacık gözenek tarafından algılanamadan geçer, bu sebeple, gözeneğin uç çapı ile parçacık boyutunun uyuşması, algılama bölgesinde sinyalin büyüklüğünü ve dalga şeklini etkileyen elektrostatik etkileşimlerin meydana gelebilmesi için çok önemlidir.

Parçacığın gözenekten geçiş hızı ve süresi *nanogözeneğin* parçacık duyarlılığını etkileyebilecek bir parametredir. Basınç ve potansiyel fark uygulanarak parçacık hızı kontrol altına alındığında sinyalin dalga boyu uzatılabilir ve böylece algılanma süresi arttırılmış olur. Ancak bu çalışmada sinyal analizleri parçacıkların hızlarından bağımsız olarak ele alınmıştır.

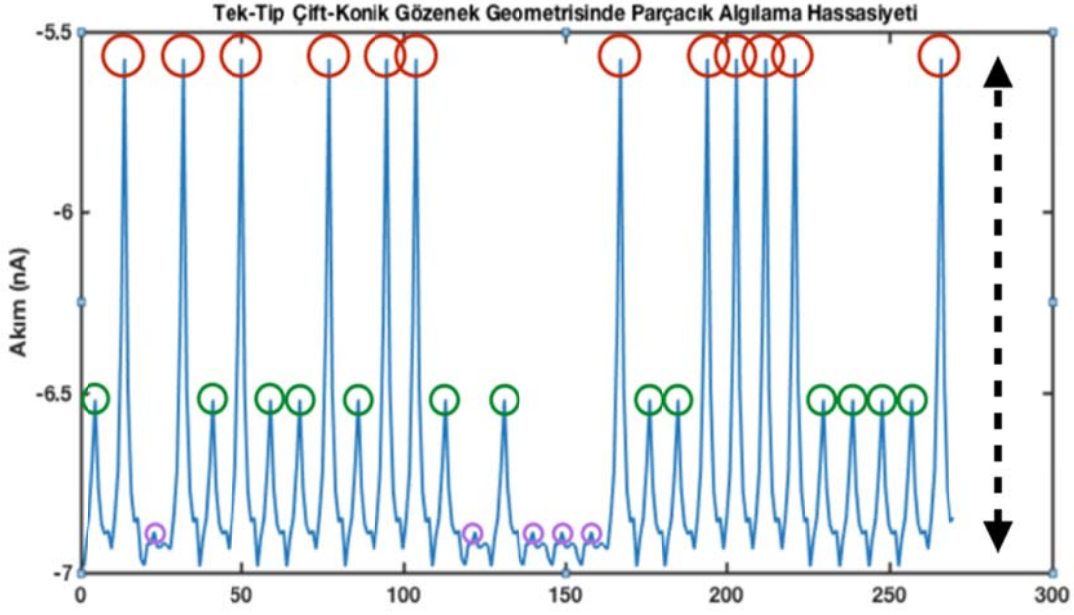
Sinyal analizi için öncelikle farklı boyutlardaki parçacıklar için farklı gözenek geometrilerinin boyut analizi yapabilirliğini, parçacık algılama hassasiyetlerini ve duyarlılıklarını ölçmek için *MATHEMATICA*<sup>TM</sup> programında bulunan *Random Choice* fonksiyonu ile rastgele bir parçacık sırası elde ettik ve parçacıkların bu sıra ile gözenekten geçtiğini varsaydık. *Comsol Multiphysics*<sup>TM</sup> programı ile içlerinden farklı boyutlarda parçacık geçişinin olduğu varsayılarak simüle ettiğimiz *konik*, *tek-tip çift-konik* ve *çift-tip çift-konik* geometrili *nanogözenek*lerden akım sinyallerini elde ettik. Elde ettiğimiz akım sinyallerini *MATLAB*<sup>TM</sup> programında okutarak gözeneklerin farklı boyutlardaki parçacıkları algılama hassasiyet ve duyarlılıklarını ölçtük.

Boyutları sırasıyla Küçük-Orta-Büyük tanımlarına karşılık gelen 120nm-260nm-360nm çaplı 3 tip parçacığın geçiş sıralaması şu şekilde oluşturulmuştur:

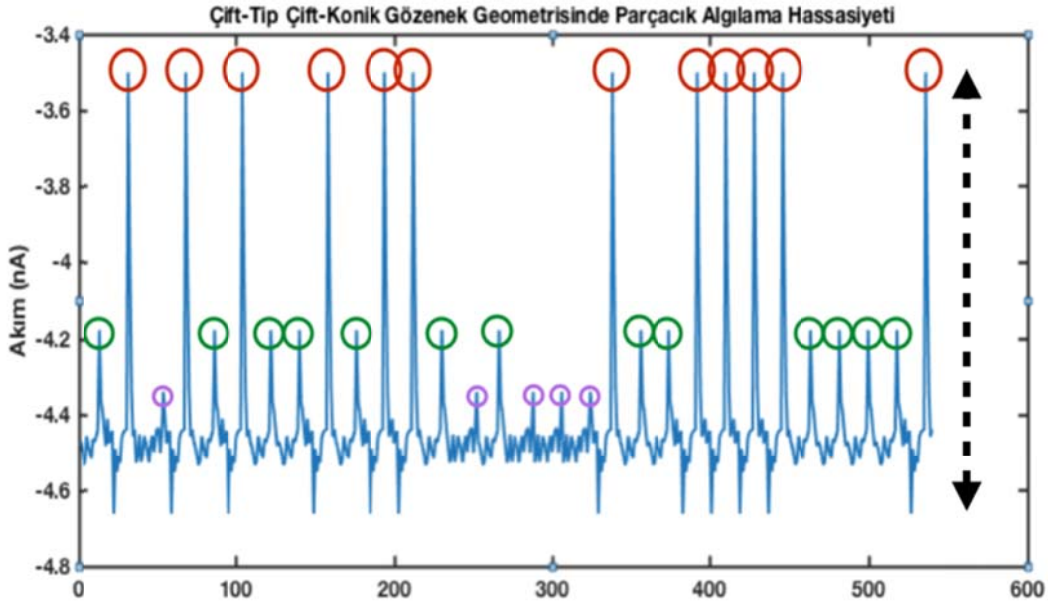
[Orta-Büyük-Küçük-Büyük-Orta-Büyük-Orta-Orta-Büyük-Orta-Büyük-Büyük-Orta-Küçük-Orta-Küçük-Küçük-Küçük-Büyük-Orta-Orta-Büyük-Büyük-Büyük-Büyük-Orta-Orta-Orta-Orta-Büyük]



Şekil 13.a. Konik Gözenek Geometrisinde 120nm-260nm-360nm Çaplı Parçacıkların Algılanma Hassasiyeti



Şekil 13.b. Tek-Tip Çift-Konik Gözenek Geometrisinde 120nm-260nm-360nm Çaplı Parçacıkların Algılanma Hassasiyeti



Şekil 13.c.Çift-Tip Çift-Konik Gözenek Geometrisinde 120nm-260nm-360nm Çaplı Parçacıkların Algılanma Hassasiyeti

Gözenek Geometrisi Parçacık Boyutu	Konik	Tek-tip/Çift-Konik	Çift-tip/Çift-Konik
<b>120nm</b>	~0.05nA	~0.1nA	~0.15nA
Fark	<b>~0.15nA</b>	<b>~0.4nA</b>	<b>~0.15nA</b>
<b>260nm</b>	~0.2nA	~0.5nA	~0.3nA
Fark	<b>~0.2nA</b>	<b>~1nA</b>	<b>~0.85nA</b>
<b>360nm</b>	~0.4nA	~1.5nA	~1.15nA

**Tablo I.** Konik, Tek-Tip Çift-Konik ve Çift-Tip Çift-Konik Geometrilili Gözeneklerden 120nm-260nm-360nm Çaplı Parçacık Geçişlerinde Elde Edilen Akım Sinyal Farkları

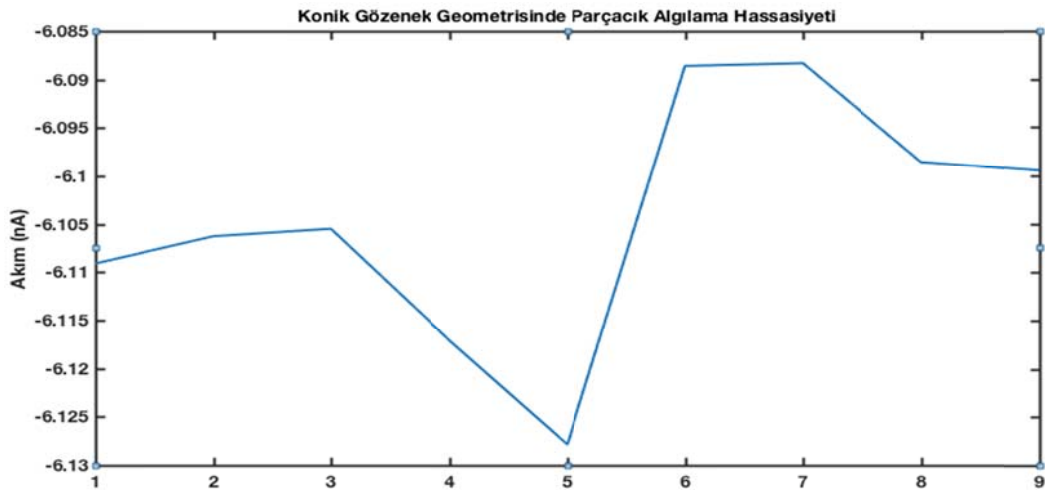
Şekil 13.a., Şekil 13.b.ve Şekil 13.c.’deki sinyallerde farklı geometrilerdeki üç nanogözenek’in de farklı boyutlardaki nanoparçacıklar için net bir şekilde boyut analizi yapabildiği görülmüştür. Akım sinyallerine kondaktif ve rezistif toplamında bakıldığında konik gözenek 120nm çaplı parçacıktan ~0.05nA, 260nm çaplı parçacıktan ~0.2nA ve 360nm çaplı parçacıktan ~0.4nA’lik akım farkları oluşturmuştur. Tek-tip çift-konik gözenekte bu farklar 120nm çaplı küçük parçacık için ~0.1nA, 260nm çaplı orta parçacık için ~0.5nA ve 360nm çaplı büyük parçacık için ~1.5nA’dır. Çift-tip çift-konik nanogözenekte ise küçük parçacık için ~0.15nA, orta parçacık için ~0.3nA, büyük parçacık için ~1.15nA’lik direnç sinyal farkları ölçülmüştür. Bu verilerden yola çıkarak en iyi hassasiyetin tek-tip çift-konik nanogözenek geometrisinden elde edilebileceğini söyleyebiliriz. Gözenek’in ortasında yer alan algılama bölgesinde, tükenim bölgesinden birikim bölgesine doğru hareket eden iyonik akıştan kaynaklı bir iyonik yoğunluk oluşacaktır. Diğer taraftan, asimetrik geometriden dolayı tip bölgesinde EÇT’nin daha etkin olması, birikim bölgesinde meydana gelen iyon fazlalığıyla elektrostatik etkileşimi artırır. Tipin her iki girişinde mevcut bulunan iyonik yoğunluk, parçacıkla birlikte gelen karşıt yüklerle daha da artar, bu da sinyalin parçacık tespitinde daha kuvvetli olmasını sağlar.

Çift-tip çift-konik gözenek’in daha zayıf sinyal üretmesi, gözenek’in geniş girişinin, gözenek’in iç kısmında yer almasından kaynaklanabilir. Bu geometride tükenim ve birikim bölgeleri

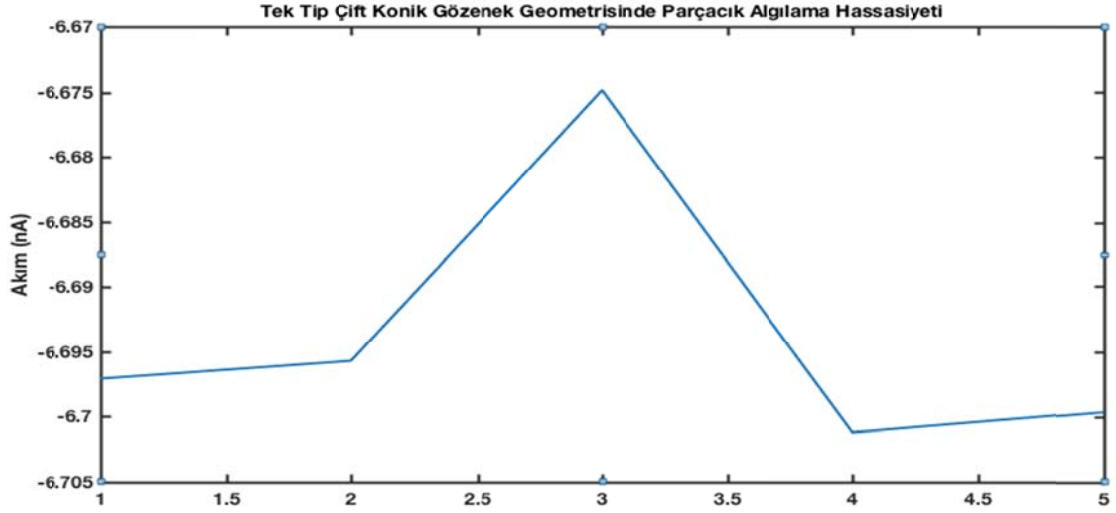
tiplerde meydana gelir. Gözeneğin iç kısmında bulunan geniş çaplı bölgede, geniş çaptan dolayı iyonik dağılımın daha seyrek, dolayısıyla elektrostatik etkileşimin düşük olması beklenir. Katyonlar yüzeyde toplanma eğilimi gösterirken anyonlar yüzey yükleri tarafından itilecektir. Parçacık bu bölgeden geçerken üzerindeki fazla yükleri anyonlarla etkileşime geçmelerinden dolayı burada bırakabilir. Dolayısıyla, birikim bölgesine geçerken üzerinde daha az karşıt yük bulunur. Diğer geometriye nispetle geçiş anında daha az iyon bulunması daha düşük sinyal oluşumuna sebep olmuş olabilir. Yine de her iki *çift-konik* geometrili gözeneğin *konik* geometriye göre daha iyi sinyal ürettikleri açıktır. Bu da sinyali algıladığımız tipin *konik* gözenekte iyonik tükenimin olduğu, diğer geometrilere ise iyonik birikimin olduğu bölge olmasından olabilir.

### 5.3.1 Aynı boyuttaki parçacıkların geçiş sinyal belirginliklerine göre uygun geometrinin belirlenmesi

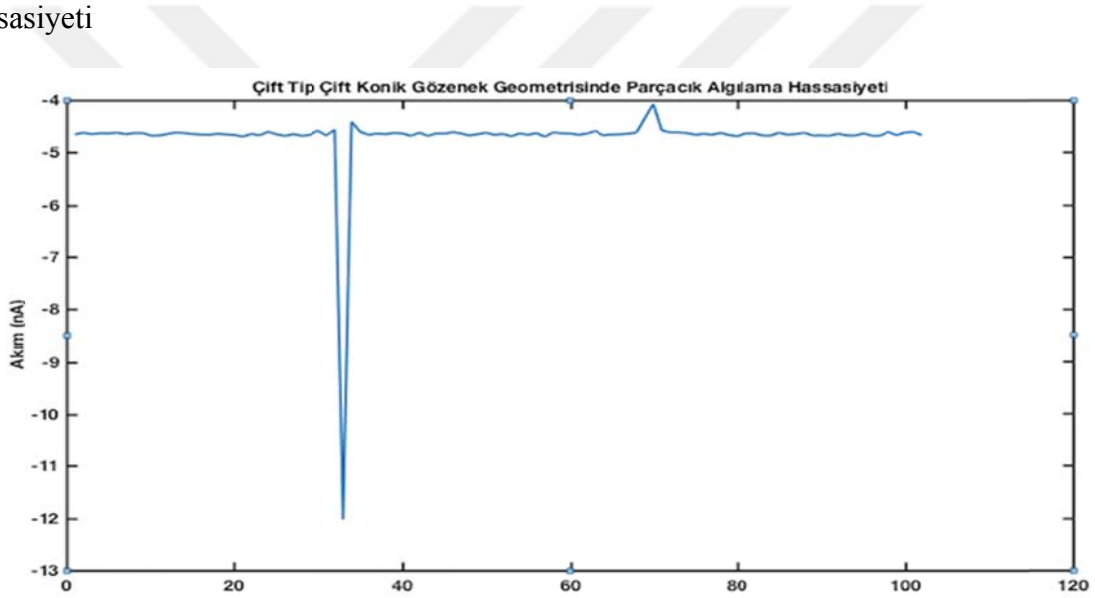
Farklı geometrili *nanogözeneğin* parçacık algılama hassasiyetlerini tespit etmek amacıyla her üç *nanogözeneğin* de 120nm çapındaki *nanoparçacıkların* geçtiği varsayılarak ölçüm yapılmıştır. Ortam parametreleri; gözeneğin tip çapı 430nm, geniş gözeneğin girişinin çapı 7.27 $\mu$ m, uzunluk-kalınlık-genişlik ölçüleri 20 $\mu$ m, uygulanan potansiyel fark-0.4V, basınç -4mmHg, gözeneğin yüzey yükü  $-0.005C/m^2$  ve parçacık yüzey yükü  $-0.015C/m^2$ 'dir.



Şekil 14.a. Konik Gözenek Geometrisinde 120nm Çaplı Parçacığın Algılanma Hassasiyeti



Şekil 14.b. Tek-Tip Çift-Konik Gözenek Geometrisinde 120nm Çaplı Parçacığın Algılanma Hassasiyeti



Şekil 14.c. Çift-Tip Çift-Konik Gözenek Geometrisinde 120nm Çaplı Parçacığın Algılanma Hassasiyeti

Gözenek Geometrisi Parçacık Boyutu	Konik	Tek-tip/Çift-Konik	Çift-tip/Çift-Konik
120nm	~0.04nA	~0.03nA	~8nA

Tablo II. Konik, Tek-Tip Çift-Konik ve Çift-Tip Çift-Konik Geometrilili Gözeneklerden 120nm Çaplı Parçacık Geçişlerinde Elde Edilen Akım Sinyal Farkları

Gözenek geometrilerinin parçacık geçişine gösterdikleri hassasiyetin anlaşılması için yaptığımız ölçümlerde **Şekil 14.a.**, **Şekil 14.b.** ve **Şekil 14.c.** incelendiğinde görülecektir ki en iyi hassasiyeti  $\sim 8nA$ 'lık akım farkıyla *çift-tip çift-konik* geometrili gözenek göstermiştir.  $\sim 0.03nA$ 'lık direnç sinyali ile en zayıf hassasiyet *tek-tip çift-konik* geometrili gözenekte görülürken, *konik* geometrili gözeneğin hassasiyeti  $\sim 0.04nA$ 'lık direnç oluşturmuştur. *Çift-çift çift-konik* gözeneğin oluşturduğu akım farkındaki büyüklük *kondaktif* sinyalden kaynaklanıyor gibi görülse de sadece *rezistif* sinyale bakıldığında da  $\sim 0.2nA$ 'lık direnç sinyali ile diğer iki geometriden daha iyi hassasiyet gösterdiği görülür. **Bölüm 5.3**'te farklı boyutlardaki parçacıklar için yaptığımız sinyal analizinde en belirgin direnç sinyallerini *tek-tip çift-konik* gözenekten elde etmemize rağmen *çift-çift çift-konik* gözeneğin küçük parçacık için daha iyi sinyal ürettiğini gördük. Sadece küçük parçacıkla hassasiyet ölçümü yaptığımız bu bölümde elde ettiğimiz simülasyon sonuçları bir önceki bölümle uyumlu olarak *çift-tip çift-konik* geometrinin küçük parçacık geçişi için daha hassas olduğunu gösteriyor. *Konik* ve *tek-tip çift-konik* gözeneklerden elde ettiğimiz sinyallere baktığımızda başlangıç akımlarının *çift-tip çift-konik* gözeneğe göre daha yüksek olduğunu görüyoruz. *Tek-tip çift-konik* gözeneğin her iki gözenek girişin geniş çaplı olması tipteki iyonik yığılma azaltarak iyonik akışı arttırmış, bu da küçük parçacığın oluşturacağı hacim dışlanmasını etkisiz hale getirmiş olabilir. Daha iyi sinyal elde ettiğimiz *çift-tip çift-konik*te daha düşük olan başlangıç akımı parçacık geçişini yavaşlatmış olabilir. Her iki gözenek girişinin uçtan oluştuğu geometride daha yavaş geçen parçacığın gözenekten geçişi boyunca elektrostatik etkileşime daha fazla maruz kalarak ölçüm hassasiyetinin artmış olabileceği düşünülebilir.

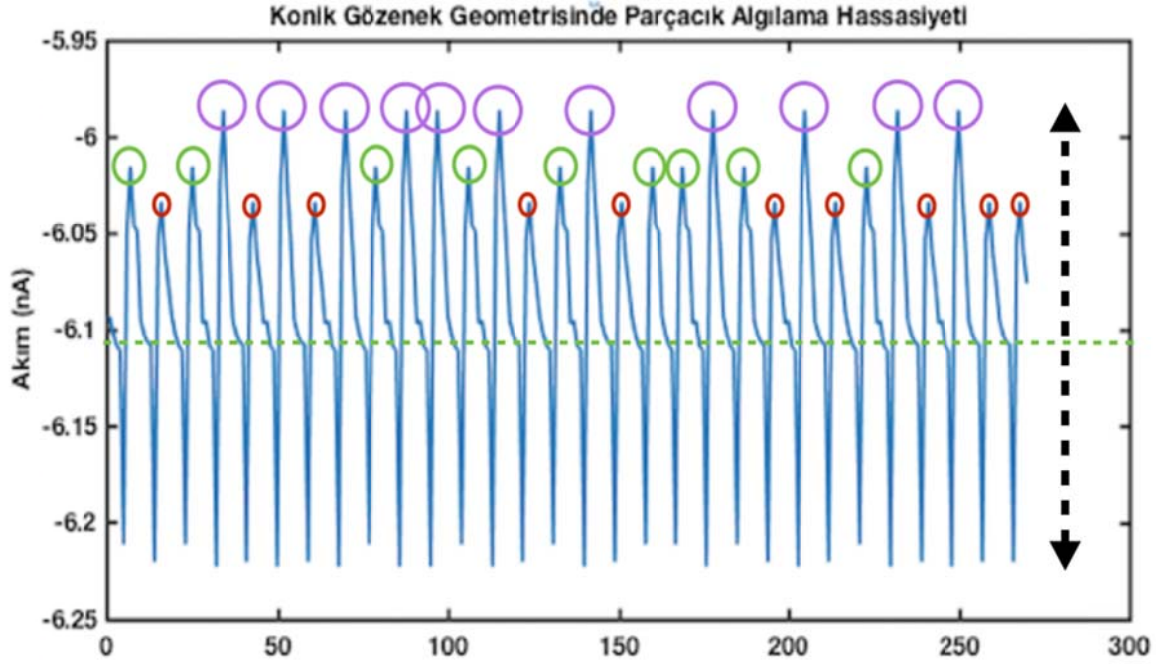
### **5.3.2 Yakın boyuttaki parçacıkların geçiş sinyallerine göre geometri duyarlılığının belirlenmesi**

*Nanogözeneklerin* parçacık analizi kullanımında en iyi sinyali elde edebilmek için uygun geometrinin belirlenebilmesinde izlediğimiz yol birbirine yakın boyutlardaki parçacıklardan alınan sinyallerin incelenmesidir. Gözenek simülasyon parametreleri; gözeneğin tip çapı 430nm, geniş girişinin çapı  $7.27\mu m$ , uzunluk-kalınlık-genişlik ölçüleri  $20\mu m$ , uygulanan potansiyel fark  $-0.4V$ , basınç  $-4mmHg$ , gözenek yüzey yükü  $-0.005C/m^2$  ve parçacık yüzey yükü  $-0.015C/m^2$ 'dir. Farklı gözenek geometrilerine göre duyarlılık ölçümü için 240nm-260nm-280nm çaplı parçacık grubu oluşturulmuştur. *MATHEMATICA™ Random Choice* fonksiyonu ile rastgele oluşturulan parçacığın gözeneklerden geçiş sıralaması kullanılarak *Comsol Multiphysics™* programından elde edilen sinyal değerleri *MATLAB™*'de okutulur

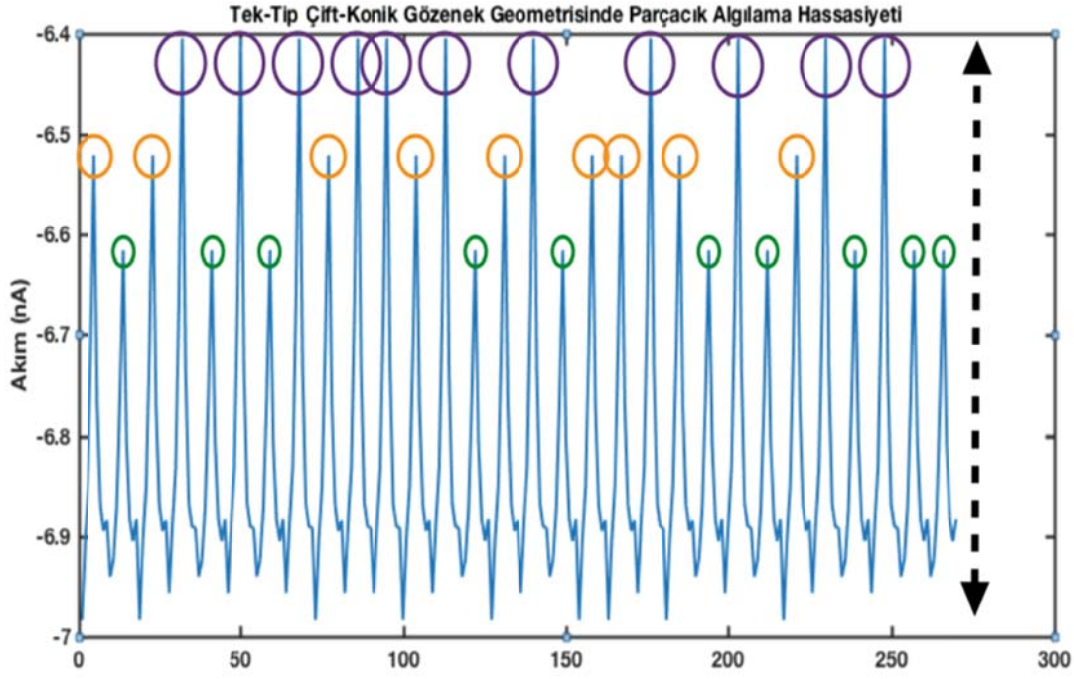


parçacık analiz sinyalleri elde edilmiştir. Parçacıkların gözeneklerden geçiş sıralaması şu şekildedir:

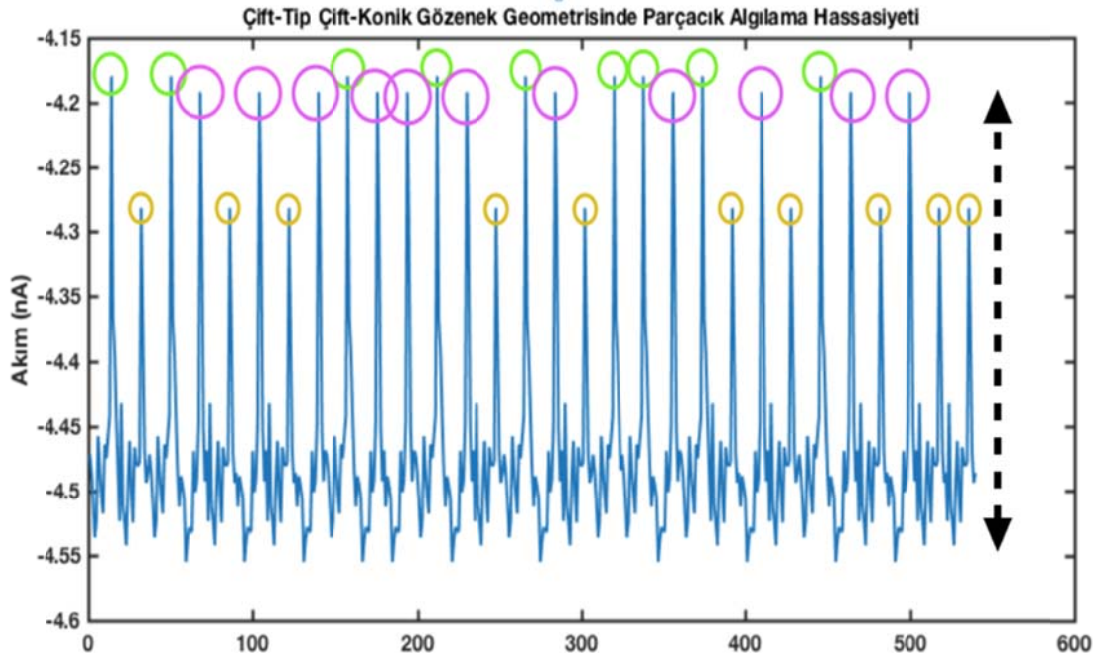
**[Orta-Küçük-Orta-Büyük-Küçük-Büyük-Küçük-Büyük-Orta-Büyük-Büyük-Orta-Büyük-Küçük-Orta-Büyük-Küçük-Orta-Orta-Büyük-Orta-Küçük-Büyük-Küçük-Orta-Büyük-Küçük-Büyük-Küçük-Küçük]**



**Şekil 15.a.** Konik Gözenek Geometrisinde 240nm-260nm-280nm Çaplı Parçacıkların Algılanma Hassasiyeti



Şekil 15.b. Tek-Tip Çift-Konik Gözenek Geometrisinde 240nm-260nm-280nmÇaplı Parçacıkların Algılanma Hassasiyeti



Şekil 15.c. Çift-Tip Çift-Konik Gözenek Geometrisinde 240nm-260nm-280nm Çaplı Parçacıkların Algılanma Hassasiyeti

Gözenek Geometrisi Parçacık Boyutu	Konik	Tek-tip/Çift-Konik	Çift-tip/Çift-Konik
<b>240nm</b>	~0.18nA	~0.3nA	~0.3nA
Fark	~0.03nA	~0.1nA	~0.1nA
<b>260nm</b>	~0.21nA	~0.4nA	~0.4nA
Fark	~0.04nA	~0.1nA	~0nA
<b>280nm</b>	~0.25nA	~0.5nA	~0.4nA

**Tablo III.** Konik, Tek-Tip Çift-Konik ve Çift-Tip Çift-Konik Geometrilili Gözeneklerden 240nm-260nm-280nm Çaplı Parçacık Geçişlerinde Elde Edilen Akım Sinyal Farkları

Birbirine yakın boyutlardaki parçacıkların gözeneklerden geçtikleri varsayılarak elde ettiğimiz sinyal sonuçlarına göre *konik* geometrilili gözenekte akım farkları 240nm çaplı parçacık için ~0.18nA, 260nm çaplı parçacık için ~0.21nA ve 280nm çaplı parçacık için ~0.25nA olarak oluşmuştur. *Tek-tip çift-konik* geometrilili gözenekte oluşan direnç sinyallerini 240nm çaplı parçacık için ~0.3nA, 260nm çaplı parçacık için ~0.4nA ve 280nm çaplı parçacık için ~0.5nA'lık akım farklarıyla elde ettik. *Çift-tip çift-konik* geometrilili *nanogözenek* simülasyon sonuçlarımız ise 240nm çaplı parçacık için ~0.3nA, 260nm çaplı parçacık için ~0.4nA 280nm çaplı parçacık için ~0.4nA'lık akım farkı verdi. Her üç geometrideki gözeneklerin oluşturduğu sinyallere baktığımızda, özellikle küçük parçacıklarla diğer iki boyuttaki parçacıkların arasında, birbirine yakın boyuttaki parçacıkların ayırımını net bir şekilde yapabildikleri görülmektedir. Ancak elde ettiğimiz akım farkları nümerik olarak incelendiğinde, her ne kadar **Bölüm 5.3.1**'de küçük parçacık için en zayıf hassasiyeti gösterse de, birbirine yakın orta boyuttaki parçacıklar için en net boyut ayırımının *tek-tip çift-konik* geometrilili gözenekte olduğu görülüyor. Bu da bu geometrik yapının parçacık algılama duyarlılığının daha yüksek olduğunu gösteriyor. *Tek-tip çift-konik* ve *çift-tip çift-konik* geometrilili gözeneklerin küçük ve orta parçacıklar için yaklaşık aynı miktarda akım farkı oluşturdukları görülmekte. Ancak *çift-tip çift-konik* gözenekten elde ettiğimiz sinyaller ayrıca incelendiğinde orta boyuttaki parçacığın *rezistif* sinyalinin büyük parçacıktan biraz daha fazla

olduğu görülmüştür. Büyük çaplı parçacığın oluşturduğu *kondaktif* sinyalin daha fazla olmasından dolayı sinyallere *kondaktif* ve *rezistif* toplamı olarak birlikte bakıldığında orta ve büyük boyutlu parçacıkların her ikisinden de  $\sim 0.4nA$ 'lık sinyal farkı elde edildiği görülür. Bu durumda *çift-tip çift-konik* gözenek geometrisinin birbirine yakın boyutlardaki parçacıkları algılamak için yeterli duyarlılığa sahip olmadığını söyleyebiliriz. Benzer durum hem birbirine çok yakın, hem de diğer iki geometrideki gözeneğe göre daha düşük miktarda sinyal üretmesinden dolayı *konik* geometrili gözenek için de geçerlidir.

## 5.4 Tartışma

*Nanogözeneklerin* en önemli kullanım alanlarından birisi parçacık analizidir. Parçacıkların gözeneklerden geçişleri sırasında gözeneğin göstereceği hassasiyet ve duyarlılıkta en önemli parametreler parçacığın boyutu, gözeneğin geometrisi (uç çapı), uygulanan basınç ve potansiyel farklar, gözeneğin ve parçacığın yüzey yükleridir. Bu çalışmada gözeneğin tip çapının 430nm, geniş girişinin çapının 7.27 $\mu m$ , uzunluk-kalınlık-genişlik ölçülerinin 20 $\mu m$ , potansiyel farkın -0.4V, basıncın -4mmHg, gözenek yüzey yükünün  $-0.005C/m^2$  ve parçacık yüzey yükünün  $-0.015C/m^2$  olduğu ortam parametre değerleriyle yaptığımız gözenek simülasyonlarında *konik*, *tek-tip çift-konik* ve *çift-tip çift-konik nanogözenek* geometrilerinin farklı boyutlardaki parçacıkların gözenekten geçişleri sırasında gösterdikleri hassasiyet ve duyarlılığı inceledik.

Parçacık boyutlarına göre sinyal analizini incelediğimiz ilk durumda 120nm-260nm-360nm çaplarında sırasıyla Küçük-Orta-Büyük tanımlarına karşılık gelen üç tip parçacık oluşturduk. Parçacıkların, *Comsol Multiphysics*<sup>TM</sup> programını kullanarak simüle ettiğimiz *nanogözeneklerden MATHEMATICA*<sup>TM</sup> programında bulunan *Random Choice* fonksiyonu ile elde ettiğimiz rastgele geçiş sırası ile geçtiklerini varsaydık. Farklı geometrilerdeki *konik*, *tek-tip çift-konik* ve *çift-tip çift-konik nanogözeneklerden* elde ettiğimiz akım sinyallerini *MATLAB*<sup>TM</sup>'de çalıştırarak sinyal okumamızı gerçekleştirdik. Aynı süreci gözenek geometrilerinin hassasiyetini ölçmek için 120nm boyutundaki küçük parçacığı kullanarak ve gözenek geometrileri arasındaki duyarlılık farkını belirleyebilmek için birbirine yakın boyutlardaki 240nm-260nm-280nm çaplarındaki parçacık geçişleri için tekrarladık.

Küçük-Orta-Büyük ölçekteki 120nm-260nm-360nm çaplı parçacıkların geçişini simüle ettiğimiz ilk durum sonucunda elde ettiğimiz sinyallerde en iyi direnç sinyalini *tek-tip çift-konik* geometrili gözeneğin oluşturduğunu gördük. Gözeneğin yukarıdaki girişinden gelen

iyonik akışın aşağıdaki birikim bölgesine geçerken gözeneğin orta kısmında yer alan tip bölgesinde yığılma meydana getirerek parçacık geçişi sırasında elektrostatik etkileşimi ve parçacığın hacim dışlama etkisini arttırdığı düşünülebilir. Bu geometriden elde ettiğimiz sonuçlara yakın değerlerde sinyal elde ettiğimiz ikinci konik gözenek geometrisi ise *çift-tip çift-konik*'tir. Bu geometrinin *tek-tip tek-konik* gözeneğe kıyasla düşük sinyal vermesinin sebebi yukarıdaki uçtan geçen parçacığın aşağıdaki uca doğru ilerlerken gözeneğin ortasında geniş kısımla karşılaşmasından kaynaklanabilir. Buradaki geniş çaplı bölge EÇT'nin incelendiği dolayısıyla parçacık ile gözenek yüzey yüklerinin elektrostatik etkileşiminin zayıflayacağı bölgedir. Negatif yüklü parçacık üzerindeki karşıt yüklerin bir kısmı serbest kalan negatif yüklerle etkileşime geçerek gözeneğin bu bölgesinde kalmış ve bu sebepten birikim bölgesinden geçerken daha düşük hacim dışlama etkisi oluşturmuş olabilirler. Diğer gözenek geometrilerine nispetle daha zayıf direnç sinyali oluşturan gözenek ise *konik* geometri olmalıdır. Parçacığın algılanma bölgesi tip kısmıdır ve bu gözenekte tükenim bölgesi tiptedir. Diğer iki geometrik yapıya baktığımızda birikim bölgesinin oluştuğu tip kısımları mevcuttur. Bu da parçacığın daha fazla elektrostatik etkileşime maruz kalarak daha uzun direnç sinyali oluşturması demektir. Muhtemelen *konik* gözenekteki fark bu durumun oluşmamasından kaynaklanmaktadır.

120nm çaplı küçük boyuttaki parçacıkla hassasiyet ölçümü yaptığımız simülasyon sonuçlarında en iyi sonucu *çift-tip çift-konik* geometri parçacıktan elde ettik. Başlangıç akımlarına baktığımızda daha düşük akımın görüldüğü bu geometride gözeneğin her iki girişinin de tip olması küçük çaplı parçacıklar için daha fazla hassasiyet sağlamış olabilir. *Tek-tip çift-konik* geometride başlangıç akımının daha yüksek olması gözeneğin her iki girişinin geniş çaplı olmasından kaynaklanabilir. Bu yüksek iyonik akış tipten geçen parçacığın hızını arttırıp sinyali azaltmış olabilir.

Gözenek geometrileri arasındaki duyarlılık farkını tespit edebilmek için yaptığımız simülasyonlarda birbirine yakın boyutlu 240nm-260nm-280nm çaplarındaki parçacıkların geçişi ile oluşan sinyallere baktığımızda en iyi direnç sinayallerini *tek-tip çift-konik* geometriyle elde ettiğimizi gördük. Başlangıç akımının yüksek olmasının küçük parçacığın algılanmasını zorlaştırmış olabileceğini düşünüyoruz, ancak çapları birbirine yakın orta ölçekli parçacıkların boyut ayırımında bu geometrik yapıdaki gözeneğin duyarlılığının daha yüksek olduğu görülüyor. Bu sonuçlarda 120nm-260nm-360nm çapındaki parçacıkların geçişiyle elde ettiğimiz sonuçları doğruluyor. *Çift-tip çift-konik* geometri gözenekten elde ettiğimiz sinyallere baktığımızda beklenmedik bir sonuç olarak orta boyuttaki (260nm)

parçacığın *rezistif* sinyali büyük çaplı (280nm) parçacığın direnç sinyalinden yüksek ölçülmüştür. Ancak *kondaktif* ve *rezistif* sinyaller birlikte değerlendirildiğinde beklenildiği gibi büyük parçacıktan daha fazla *kondaktif* sinyal elde edildiğinden 260nm ve 280nm çaplı parçacıkların geçişiyle oluşan sinyaller yaklaşık olarak aynı değerleri almıştır ( $\sim 0.4nA$ ), bu da *çift-tip çift-konik* gözenek geometrisinin parçacık analizinde yeterli duyarlılığa sahip olmadığını gösterir. *Konik* geometrili gözenekten elde ettiğimiz sinyallerde ise dalga boylarından parçacıkların ayırımı yapılabilse bile numerik olarak hem değerlerin birbirine yakın olması hem de sinyallerin yeterince kuvvetli olmaması bu gözenek geometrisinin duyarlılığının da yeterli olmadığını belirtir.

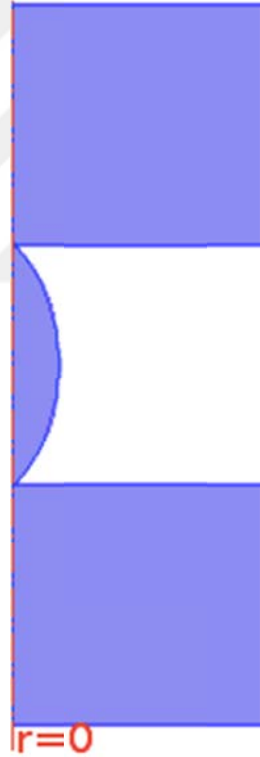
Bütün bu simülasyonlardan elde ettiğimiz sinyal analizleri ışığında parçacık analizi uygulamaları için bir geometrik tercihte bulunmamız gerekirse *tek-tip çift-konik* geometrili *nanogözenek* yapısının uygun sinyali elde etmekte muhtemelen daha iyi sonuç sağlayacağını söyleyebiliriz. Geometrik yapıyı daha da idealize etmek için **Şekil 16**' da görüldüğü gibi gözenek gövde kısmında tek tip yerine içe doğru kavislenen bir yapının oluşturulması önerilebilir.



**Şekil 16.** Gövde kısmı içe doğru kavisli olarak idealize edilmiş tek-tip çift-konik nanogözenek geometrisi

Önceki bölümlerde bahsettiğimiz gibi parçacığın algılanmasında en büyük sorunlardan biri bu yapılarda parçacığın algılanma bölgesinin çok kısa olmasıdır. *Nano* ölçekteki parçacıkların hızlarının da çok yüksek olduğunu göz önünde bulundurursak algılama bölgesinin boyu daha önemli hale gelir. Gözenekte içe doğru kavisli dar bir gövde oluşturmak algılama bölgesini nispeten uzatacaktır. Ayrıca gözenek boyunca dar bir gövdeden geçen parçacık daha fazla elektrostatik etkileşime maruz kalacağından bu durum hem parçacığın geçiş süresini uzatır ve daha uzun sinyal alınmasını sağlar hem de *çift-tip çift-konik* gözenekte olduğunu tahmin ettiğimiz gibi üzerindeki yükleri geniş kısımda bırakma durumuyla karşılaşmayacağından daha kuvvetli direnç sinyali elde edilmesi beklenir.

*Tek-tip çift-konik* geometrili *nanogözenekten* sonra ikinci olarak iyi sinyal elde ettiğimiz *çift-tip çift-konik* geometrili *nanogözeneği* idealize etmek için modifiye ettiğimizde **Şekil 17**'deki geometrik yapıyı elde ettik.



**Şekil 17.**Gövde kısmı dışarı doğru kavisli Çift-Tip Çift-Konik Nanogözenek Geometrisi

**Şekil 17**'de görüldüğü gibi gözeneğin gövde kısmı dışarı doğru kavisli olarak elde edilmiştir. Gözeneğin tip kısmı yeterince küçük olduğunda her iki taraftaki **EÇT** üst üste biner (overlapping), difüzyon tabakası neredeyse kaybolur ve burada yüzey yüküne karşıt yükteki iyonların yoğunluğu görülür. Gözenek çapı genişledikçe **EÇT**'den sonra görülen difüzyon

tabakası da genişler. Pozitif yüklü iyonlar gözenek yüzeyinde toplanırken difüzyon tabakasında yüzey tarafından reddedilen negatif yüklü iyonların yoğunluğu görülür. Negatif yüklü parçacık gözenek boyunca yukarıdaki tipten aşağıdaki tipe ilerlerken üzerindeki karşıt yüklü iyonların bir kısmını bu dışa doğru kavislenmiş bölgede yoğunlaşan negatif yüklü iyonlara bırakabilir. Bu gözenek geometrisinde orta kısımdaki genişlemenin tip bölgelerinin hemen bitiminde başlamasından dolayı parçacığın kavisli bölgeden geçişi sırasında kaybedeceği yüzeyindeki karşıt yüklü iyonların miktarı simülasyonlarımızda kullandığımız *çift-tip çift-konik* geometrili *nanogözenek*ten daha fazla olabilir. Bu sebeple parçacık iyonik birikimin görüldüğü ikinci tipe geldiğinde hacim dışlama etkisinden kaynaklanacak olan direnç sinyalini biraz daha zayıf elde etmemiz olasıdır. Bu açıklamalarımıza dayanarak gövde kısmından dışa doğru kavisle simüle edilmiş *çift-tip çift-konik nanogözenek* geometrisinin parçacık analizlerinde yeterli kuvvette sinyal elde etmede uygun geometri olmadığını tahmin ediyoruz.



## 6. SONUÇ

Bu çalışmada öncelikle *nanogözenek*lerden parçacık geçişi sırasında oluşan akım sinyallerinin şekil ve boylarına etki eden parametreleri inceledik. Yüzey yükleri, potansiyel fark, basınç farkı durumları için literatürde yer alan önceki verilerin validasyonunu yaparak çalışmamızda oluşturacağımız simülasyonlar için motivasyon elde ettik.

Literatüre yeni bir katkı olarak sunacağımız bölümde *konik* ve *çift-konik* geometrili *nanogözenek*lerin parçacık geçişi sırasındaki duyarlılık ve hassasiyetlerini karşılaştırdık. Bu ölçümleri üç aşamada gerçekleştirdik. Birinci aşamada 120nm-260nm-360nm çaplarında üç tip parçacık grubu oluşturduk ve bu parçacıkların *MATHEMATICA™ Random Choice* fonksiyonuyla oluşturduğumuz rastgele bir sıralamayla her üç *nanogözenek*ten de geçtiklerini varsaydık. *Comsol Multiphysics™* programıyla oluşturduğumuz *konik*, *tek-tip çift-konik* ve *çift-tip çift-konik* geometrili *nanogözenek*lerden parçacık geçişleri sırasında oluşan direnç sinyallerini *MATLAB™*'da okutarak sinyal analizini gerçekleştirdik. Elde ettiğimiz sonuçlarda farklı çaplardaki parçacıklar için en iyi boyut analizini sağlayan gözenek geometrisinin *tek-tip çift-konik* olduğunu gördük. İkinci aşamada gözenek geometrilerinin parçacık algılamadaki hassasiyetlerini belirleyebilmek için her üç gözenekten de 120nm çaplı küçük parçacık geçişini simüle ettik. Simülasyon sonuçları *çift-tip çift-konik nanogözenek* geometrisinin hassasiyetinin daha yüksek olduğunu gösterdi. Son olarak gözenek geometrilerinin duyarlılıklarını kıyaslayabilmek için çapları birbirine yakın olan 240nm-260nm-280nm ölçekli parçacıkların yine *MATHEMATICA™ Random Choice* fonksiyonuyla oluşturduğumuz başka bir rastgele bir sıralamayla gözeneklerden geçişlerini simüle ettik. İlk aşamadan elde ettiğimiz sonuçlarla tutarlı olarak en iyi hassasiyeti *tek-tip çift-konik* gözenegın gösterdiğini gördük. Bütün simülasyon sonuçlarını karşılaştırdığımızda *nanogözenek*lerle parçacık analizi yaparken hata payını en aza indirmek için simüle ettiğimiz üç gözenek geometrisi arasında *tek-tip çift-konik* gözenegın en doğru seçenek olduğunu söyleyebiliriz.

Netice olarak *tek-tip çift-konik* gözenegın geometrik yapısından yola çıkarak gövde kısmı içeri doğru kavislendirilerek oluşturulmuş yeni bir geometriyi öneriyoruz. *Nanogözenek*lerde

algılama bölgesinin çok kısa oluşu yüksek hızlı *nanoparçacıkların* algılanmasını zorlaştıran bir durumdur. Gövde kısmından içeri doğru kavisle oluşturulmuş geometrik yapıdaki *nanogözeneğin* parçacık geçişinde elektrostatik etkileşimi arttıracak dolayısıyla parçacığın geçiş süresini uzatacağını öngörüyoruz. Bu da daha net sinyal edinimi sağlayacaktır. Bu duruma ek olarak bir de parçacık analizi için uygun olmadığını düşündüğümüz bir gözenek geometrisi belirledik. Bu geometriyi *çift-tip çift-konik* gözeneği gövde kısmından dışa doğru kavislendirerek oluşturduk. Gövde kısmında oluşan kavis difüzyon tabakasının genişlemesine ve burada yüzey tarafından reddedilen negatif yüklerin fazlalaştığı bir bölgenin oluşmasına sebep olacaktır. Parçacık gözenek boyunca ilerlerken üzerindeki karşıt yükler kavisli bölgedeki negatif yüklerle etkileşime geçecektir ve bir kısmı burada kalacaktır. Parçacık ikinci tipe geldiğinde daha az iyonik yük getirdiğinden hacim dışlama etkisinden kaynaklı sinyal diğer geometrilerden elde edilen direnç sinyallerine nispetle zayıflayacaktır. Bu sebeplerden ötürü dışa doğru kavisli *çift-tip çift-konik* geometrili gözeneğin parçacık analizi için uygun olmadığını düşünüyoruz.

## KAYNAKÇA

- [1] De Blois, R.W. & Wesley, K.A., (1977). *Sizes and concentrations of several type Concornavirus and bacteriophage T2 by the resistive-pulse technique*. J. Virol., 227–233, 23.
- [2] Kasianowicz, J.J., Brandin, E. & Branton D., et al., (1996). *Characterization of individual polynucleotide molecules using a membrane channel*. Proc. Natl Acad. Sci., 13770–13773.
- [3] Sivakumaran, M. & Platt, M., (2016). *Tunable resistive pulse sensing: potential applications in nanomedicine*, Future Medicine, 2197-2214.
- [4] Varenne, F., et al., (2016). *Multimodal dispersion of nanoparticles: a comprehensive evaluation of size distribution with 9 size measurement methods*, Pharmaceutical Research, 1220-1234.
- [5] Willmott G. R. & Parry, B. E. T., (2011). *Resistive pulse a symmetry for nanospheres passing through tunable submicron pores*, Journal of Applied Physics, 109, 094307.
- [6] Weatherall, E., et al., (2016). *Pulse Size Distributions in Tunable Resistive Pulse Sensing*, Anal. Chem., 8648–8656, 88.
- [7] Chen, K., et al., (2015). *Biphasic Resistive Pulses and Ion Concentration Modulation during Particle Translocation through Cylindrical Nanopores*, J. Phys. Chem., 8329–8335, 119.
- [8] Constantin, D. & Siwy, Z.S., (2007). *Poisson Nernst-Planck Model of Ion Current Rectification through a Nanofluidic Diode*, Physical Review E, 76, 041202.
- [9] German, S. R., (2013). *Controlling Nanoparticle Dynamics in Conical Nanopores*, Phys. Chem., 703–711, 117.
- [10] Chen, K., (2017). *Direction- and Salt-Dependent Ionic Current Signatures for DNA Sensing with Asymmetric Nanopores*, Biophys J. 674-682, 112(4).

- [11] Sheng, Q., et al. (2016). *Capacitive-pulse model for nanoparticle sensing by single conical nanochannels*, Royal Soc. of Chem. 1565-71, 8(3).
- [12] Lan, W.-J. et al., (2014). *Effect of Surface Charge on the Resistive Pulse Wave shape during Particle Translocation through Glass Nanopores*, J. Phys. Chem., 2726–2734, 118,
- [13] S. Siwy, Z., (2006). *Ion-Current Rectification in Nanopores and Nanotubes with Broken Symmetry*, Adv. Funct. Mater., 735–746, 16.
- [14] Wang, D. & Wang, G., (2016). *Dynamics of Ion Transport and Electric Double Layer in Single Conical Nanopores*, J. Electroanal. Chem., 779.
- [15] Weatherall, E., et al., (2015). *Conductive and Biphasic Pulses in Tunable Resistive Pulse Sensing*, J. Phys. Chem., 5328–5335, 119.
- [16] Lan, W.-J., et al., (2011). *Pressure-Dependent Ion Current Rectification in Conical-Shaped Glass Nanopores*, J. Am. Chem. Soc., 13300–13303, 133.
- [17] Rems L., et al., (2016). *Flow of DNA in micro/nanofluidics: From Fundamentals to applications*, Biomicrofluidics 10, (043403).
- [18] Long, L., et al., (2012). *Tunable Negative Differential Electrolyte Resistance in a Conical Nanopore in Glass*, ACS Nano, 6507–6514, VOL. 6, NO. 7.
- [19] Kozak D., et al., (2012). *Tuning Particle Velocity and Measurement Sensitivity by Changing Pore Sensor Dimensions*, Chem. Lett., 1134-1136, 4.
- [20] Lan, W.-J., (2011). *Pressure-Driven Nanoparticle Transport across Glass Membranes Containing a Conical-Shaped Nanopore*, J. Phys. Chem. C, 18445–18452, 115.
- [21] Lee, S., (2004). *Electrophoretic Capture and Detection of Nanoparticles at the Opening of a Membrane Pore Using Scanning Electrochemical Microscopy*, Analytical Chemistry, 6108-6115, Vol.76, No.20.
- [22] Qiu Y., (2016). *Highly Charged Particles Cause a Larger Current Blockage in Micropores Compared to Neutral Particles*, ACS Nano, 8413–8422, 10.
- [23] Menestrina J.; Yang C.; Schiel M.; Vlassioux I.; Siwy Z.S., (2014). *Charged Particles Modulate Local Ionic Concentrations and Cause Formation of Positive Peaks in Resistive-Pulse-Based Detection*. J. Phys. Chem. C. 118, 2391-2398.

[24] Jiang, Z. & Stein, D., (2011). *Charge regulation in nanopore ionic field-effect transistors*, Phys. Rev. E. 83, 031203.

[25] Kaya, D., Dinler, A., N. & Kececi, K., (2016). *Effect of Pore Geometry on Resistive-Pulse Sensing of DNA Using Track – Etched PET Nanopore Membrane*. *Electrochimica Acta*, 202, 157-165.

[26] M. Tsutsui, S. Hongo, Y.H. He, M. Taniguchi, N. Gemma, T. Kawai, (2012). *Single- Nanoparticle Detection Using a Low-Aspect-Ratio Pore*, *AcsNano* 6, 3499–3505.

[27] <https://en.wikipedia.org/wiki/Coulter>.



# ÖZGEÇMİŞ

## KİŞİSEL BİLGİLER

Adı Soyadı: Durdane YILMAZ

Uyruğu: T.C.

Doğum Tarihi ve Yeri: 21 Haziran 1984, İstanbul

Elektronik Posta: drdnylmz@hotmail.com

## EĞİTİM

Derece	Kurum	Mezuniyet Yılı
Lisans	FÜ, Fen-Edebiyat Fakültesi, Matematik Böl.	2009
Önlisans	AÜ, AÖF, Elektrik Enerjisi Üretim-İletim ve Dağıtım Bölümü	2017
Yüksek Lisans	İMU, Fen Bilimleri Enstitüsü, Nanobilim ve Nanomühendislik Anabilim Dalı	2017

## YABANCI DİLLER

İleri düzeyde İngilizce, orta düzey Osmanlıca, başlangıç düzeyinde Almanca ve Japonca.

## HOBİLER

Ney üflemek, bulmaca çözmek.