

**YILDIZ TEKNİK ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

KISMEN SÖNÜMLÜ İYONİK SIVILARIN YAPISI

Güler ÖZDEMİR

**F.B.E Fizik Anabilim Dalında
Hazırlanan**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

95103

Tez Danışmanı : Doç. Dr. Hasan TATLIPINAR

Prof. Dr. Saifeddin Karagözü

Hasan Tatlıpınar

Prof. Dr. İdris Güneş
Özdemir

İSTANBUL, 2000

**T.C. YÜKSEKÖĞRETİM KURULU
DOKÜMANTASYON MERKEZİ**

İÇİNDEKİLER

	Sayfa
ŞEKİL LİSTESİ	ii
TEŞEKKÜR	iv
ÖZET	v
ABSTRACT	vi
1. GİRİŞ	1
1.1 İyonik Sıvıların Yapısal Özellikleri.....	1
1.2 Basit Sıvılar İçin Bölüşüm Fonksiyonları	2
1.3 Uzaysal Dağılım Fonksiyonu.....	5
2. UZAYSAL DAĞILIM FONKSİYONLARI.....	7
2.1 Çift Radyal Dağılım Fonksiyonu ve Bazı Özellikleri.....	7
2.2 Kısmen Sönümlü İyonik Sıvılar İçin Radyal Dağılım Fonksiyonlarının Elde Edilmesi	13
3. ÇİFT ETKİLEŞME POTANSİYELLERİ VE RADYAL DAĞILIM FONKSİYONLARI	16
3.1 Kısmen Sönümlü İyonik Sıvılar İçin Radyal Dağılım Fonksiyonlarının Elde Edilmesi	16
3.2 Çift Etkileşme Potansiyeli ve Potansiyel Parametreleri.....	16
4. SONUÇLAR ve TARTIŞMA.....	19
4.1 Koordinasyon Sayıları,Radyal Dağılım Fonksiyonları ve Yapı Faktörleri.....	19
4.2 Tartışma.....	42
KAYNAKLAR.....	43
ÖZGEÇMİŞ.....	44

ŞEKİL LİSTESİ

Sayfa

Şekil 4.1	NaCl için koordinasyon sayıları . Düz çizgi, denge durumunu, kesikli çizgi kısmen sönümlü durumu belirtmektedir. Diğer çizgiler ise metal iyonu (Na) sayı yoğunluğunun $n=2,3,4,5$ için $1/n^3$ şeklinde azaltılarak elde edilen durumları belirtmektedir	20
Şekil 4.2	CuCl sistemi için koordinasyon sayıları. Grafikteki çizgiler Şekil 1’de açıklandığı gibidir	21
Şekil 4.3	YCl ₃ sistemi için koordinasyon sayıları. Düz çizgi, denge durumunu, kesikli çizgi ise kısmen sönümlü durumu göstermektedir	22
Şekil 4.4	AlCl ₃ sistemi için koordinasyon sayıları. Düz çizgi, denge durumunu , kesikli çizgi kısmen sönümlü durumu göstermektedir	23
Şekil 4.5	Şekil 4.1’deki gösterime uygun olarak NaCl sistemi için Na-Cl radyal dağılım fonksiyonu	24
Şekil 4.6	Şekil 1’deki gösterime uygun olarak CuCl sistemi için Cu-Cl radyal dağılım fonksiyonu	25
Şekil 4.7	Şekil 4.3’deki gösterime uygun olarak YCl ₃ sistemi için Y-Cl radyal dağılım fonksiyonu	26
Şekil 4.8	Şekil 4.3’deki gösterime uygun olarak AlCl ₃ sistemi için Al-Cl radyal dağılım fonksiyonu	27
Şekil 4.9	Şekil 4.1’deki gösterime uygun olarak NaCl sisteminde Na-Na radyal dağılım fonksiyonu	28
Şekil 4.10	Şekil 4.1’deki gösterime uygun olarak CuCl sisteminde Cu-Cu radyal dağılım fonksiyonu	29
Şekil 4.11	Şekil 4.3’deki gösterime uygun olarak YCl ₃ sisteminde Y-Y radyal dağılım fonksiyonu	30
Şekil 4.12	Şekil 4.3’deki gösterime uygun olarak AlCl ₃ sisteminde Al-Al radyal dağılım fonksiyonu	31
Şekil 4.13	Şekil 4.3’deki gösterime uygun olarak NaCl sisteminde Cl-Cl radyal dağılım fonksiyonu	32
Şekil 4.14	Şekil 4.1’deki gösterime uygun olarak CuCl sisteminde Cl-Cl radyal dağılım fonksiyonu	33
Şekil 4.15	Şekil 4.3’deki gösterime uygun olarak YCl ₃ sisteminde Cl-Cl radyal dağılım fonksiyonu	34
Şekil 4.16	Şekil 4.3’deki gösterime uygun olarak AlCl ₃ sisteminde Cl-Cl radyal dağılım fonksiyonu	35
Şekil 4.17	Şekil 4.1’deki gösterime uygun olarak CuCl sisteminde Cu-Cl kısmi yapı faktörü	36
Şekil 4.18	Şekil 4.1’deki gösterime uygun olarak CuCl sisteminde Cu-Cu kısmi yapı faktörü	37
Şekil 4.19	Şekil 4.3’deki gösterime uygun olarak YCl ₃ sisteminde Y-Y kısmi yapı faktörü	38
Şekil 4.20	Şekil 4.3’deki gösterime uygun olarak AlCl ₃ sisteminde Al-Al kısmi yapı faktörü	39

TEŞEKKÜR

Tezimin danışmanlığını üstlenen ve çalışmalarım boyunca beni yönlendiren ve yardımlarını esirgemeyen sayın hocam Doç. Dr. Hasan TATLIPINAR'a çok teşekkür ederim.

Ayrıca öğrenim hayatım boyunca her konuda beni destekleyen sevgili aileme , bu çalışma sırasında yardımlarını gördüğüm arkadaşlarıma ve bölüm başkanımız sayın Prof. Dr. Emel ÇINGİ'ye teşekkür ederim.



ÖZET

Ergimiş NaCl , CuCl , AlCl_3 ve YCl_3 gibi iyonik sistemlerin denge durumu yapıları ve kısmen sönümlü yapıları, istatistik mekaniğe göre oluşturulmuş sıvıhal teorisi kullanılarak çalışıldı. İntegral denklemler teorisine uygun olarak Ornstein-Zernike integral denklemleri Hypernetted-Chain (İyi belirlenmiş zincir) Yaklaşımı (HNC) kullanılarak sayısal olarak çözüldü. NaCl ve CuCl için Tosi-Fumi ile Stafort ve arkadaşlarının kullandığı çift potansiyel, YCl_3 ve AlCl_3 için ise yüklü yumuşak küre çift potansiyeli kullanıldı. Denge durumu ve kısmen sönümlü durum için elde edilen bütün yapısal dağılım fonksiyonları karşılaştırıldı. Denge durumu yapısında YCl_3 altı, AlCl_3 dört komşuluğa sahiptir, bu yapı kısmen sönümlü durumdada yaklaşık olarak korunmaktadır, fakat klor bileşeninin sönümü, bütün sistemlerde komşuluk sayısını biraz azaltmaktadır. Klor bileşeninin sönümü, denge durumu yapısında var olan orta mesafedeki yapının yok olmasına ve metal bileşeninin hareketliliğinin artmasına da neden olmaktadır. Elde edilen sonuçlar kısmen sönümlü yapının, üstün iyonik camı yapıların genel davranışı ile uygunluk gösterdiğini belirtmektedir.



ABSTRACT

Structural correlations in molten and partly quenched ionic liquids such as NaCl, CuCl, AlCl₃, YCl₃ are studied by using liquid state theory which is based on statistical mechanics. According to integral equations theory, The Ornstein-Zernike integral equations are numerically solved with Hypernetted-Chain Approximation (HNC). NaCl and CuCl studied with pair potentials due to Tosi-Fumi and Staford at al. YCl₃ and AlCl₃ studied with charged soft sphere pair potentials. All the structural correlations obtained for both states are compared. YCl₃ has six fold coordination and AlCl₃ has four fold coordination in liquid at equilibrium, this tendency remain same in partly quenched state but coordination numbers decrease slightly for all systems by quenching chlorine components. Quenching of the chlorine component enhances the delocalisation of the metal component. The intermediate range order which is formed in molten state also disappear as a result of quenching of the chlorine. The results obtained indicate the rather general aspects of the behaviour of the super ionic glasses.

1. GİRİŞ

1.1 İyonik Sıvıların Yapısal Özellikleri

Sıvılar, mikroskobik ölçekte sahip oldukları yapıya göre sınıflandırılabilirler. Mikroskobik yapı, sıvıyı oluşturan moleküllerin, iyonların veya atomların, aralarındaki etkileşmelere göre farklı fiziksel özellikler gösterir. Bu etkileşmeler gözönüne alındığında, sıvıları; moleküler sıvılar, metalik sıvılar, sıvı alaşımları ve iyonik sıvılar gibi sınıflara ayırmak mümkündür.

İyonik sıvılar genel olarak ergimiş metal tuzlarının oluşturduğu sıvılardır. Bu sıvılar doğada yaygın olarak bulunan katı metal tuzlarının yüksek sıcaklıkta eritilmesinden elde edilirler. Bu tür sıvıların yapısı son yıllarda birçok araştırmanın konusu olmuştur. (Hansen ve Mc Donald, 1976; Mamantov ve Braunstein, 1981; March ve Tosi, 1984). Buna göre bir metal ve bir halojenden oluşan iyonik sıvı, metal iyonunun değerliğine göre, tek değerlikli (NaCl , CuCl , KBr , ...), iki değerlikli (MgCl_2 , ZnCl_2 , ZnBr_2 , SrI_2 , ...), üç değerlikli vb. ergimiş metal tuzu olarak adlandırılırlar. Bu sıvılarda kısa mesafedeki yapı Coulomb etkileşmelerine göre oluşur. Buna göre yerel yapı, bir iyon merkez alındığında onun birinci komşuluğunda zıt yüklü iyonlar ve ikinci komşuluğunda benzer yüklü iyonların yer alacağı bir sıralamanın olduğu bir yapı olacaktır. Bu tür bir dağılıma sahip iyonların oluşturduğu yapı, denge durumu istatistik mekaniğine göre incelenebilir.

İstatistik fiziğin denge durumu teorisi kullanılarak, mikroskobik yapının korelasyon fonksiyonları ve radyal dağılım fonksiyonları elde edilebilir. Bu denge durumu teorisi son yıllarda kısmen sönümlü yapıların incelenmesi için de kullanılmaya başlanmıştır. (Stell vd,1993; Madden vd.,1998) Kısmen sönümlü yapılara doğada birçok durumda karşılaşılmaktadır. İki bileşenli bir sıvı yapısı gözönüne alalım, bu yapının bir bileşeni belli fiziksel nedenlerden dolayı (büyük kütleli, düşük viskozite, düşük elektrik yükü vb.) kendi arasındaki etkileşme ile yaklaşık sabit bir yapı oluşturur ve kafes bileşen olarak adlandırılır. Diğer bileşen ise yine birtakım fiziksel özelliklerinden dolayı (küçük kütleli, yüksek viskozite, yüksek elektrik yükü vb.) kafes sistemi içinde rahatlıkla hareket edebilir. Bu bileşen ise genellikle akışkan (mobile,hareketli) bileşen olarak adlandırılır. Bu tür sistemler, iri taneli mühendislik malzemeleri , camsı yapılar, spin sistemleri gibi mikroskobik ölçekte

karşımıza çıkabilirler. İyonik sıvılar içinde, CuCl, AgI gibi üstün iyonik özelliğe sahip sıvılar da kısmen sönümlü iyonik yapılar olarak incelenebilirler.

Bu tezde, önce iyonik sıvıların denge durumu yapılarının incelenmesi için yapılan teorik çalışmalar incelenmektedir. Daha sonra bu teorilerin, kısmen sönümlü iyonik sıvıların yapısının incelenmesine nasıl uygulanacağı verilmektedir. CuCl, NaCl, AlCl₃, YCl₃ iyonik sıvıları alınarak, bu sıvılar için denge durumu yapıları ve kısmen sönümlü yapıları ele alındı. Kısmen sönümlü yapıyı elde etmek için kafes bileşeni olarak Cl¹⁻ iyonu alındı, akışkan bileşeni olarak Cu¹⁺, Na¹⁺, Al³⁺, Y³⁺ gibi metal iyonları alındı.

Günümüzde iyonik sıvıların yapısı deneysel olarakta incelenebilmektedir. (Price vd., 1991) Fakat kısmen sönümlü iyonik sıvıların yapısını ise henüz deneysel olarak incelemek mümkün değildir. Bu nedenle kısmen sönümlü sıvıların teorik olarak elde edilen yapıları, bu sıvıların denge durumu yapıları ile karşılaştırıldı.

1.2 Basit Sıvılar İçin Bölüşüm Fonksiyonları

Sıvıların termodinamik ve yapısal özellikleri, genel olarak sıvıyı oluşturan moleküllerin konumlarına bağlı olarak, sistemin potansiyel enerjisi, $\Phi(\vec{r}^N)$, biliniyor ise hesaplanabilir. Burada $\vec{r}^N$, N tane molekülün koordinatlarını belirtir. Yani, $\vec{r}^N = \vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3, \dots, \vec{r}_N$ ile ifade edilmektedir. $\Phi(\vec{r}^N)$ ise, 3N boyutlu uzay üzerinde potansiyel enerji yüzeyidir. Sabit V hacimli, T sıcaklıklı tek atomlu sıvıları (H, Ar, Kr) gözönüne alalım. Sistemin toplam enerjisi yani Hamiltoniyeni, K kinetik enerjisi ile sistemin uzaysal dağılımına bağlı U potansiyel enerjisinin toplamına eşittir.

$$E=K+U=H_N(\vec{r}^N, \vec{p}^N) = \sum_{i=1}^N \frac{p_i^2}{2m_i} + \Phi(\vec{r}^N) \quad (1.1)$$

Burada $\vec{p}^N$, N tane molekülün momentumunun dağılımıdır. $\vec{p}^N = \vec{p}_1, \vec{p}_2, \dots, \vec{p}_N$ dir. İstatistiksel mekanikte bir sistemi incelemek için, sistemin bölüşüm fonksiyonunu yazmak oldukça önemlidir. Çünkü bölüşüm fonksiyonu, sistemin mikroskopik özellikleri ile makroskopik özellikleri arasında bir geçiş sağlar. Yukarıda hamiltoniyeni verilen bir sistemin, sabit hacimli ve sabit molekül sayısından oluşan kanonik bölüşüm fonksiyonu, $\Xi_N(V, T)$ şöyle yazılabilir;

$$\Xi_N = \frac{1}{N!h^{3N}} \int \dots \int \exp(-\beta H_N(\vec{r}_N, \vec{p}_N)) d\vec{r}_N d\vec{p}_N \quad (1.2)$$

burada $\beta = \frac{1}{k_B T}$, $d\vec{r}^N = d\vec{r}_1, d\vec{r}_2, d\vec{r}_3, \dots, d\vec{r}_N$ ve $d\vec{p}^N = d\vec{p}_1, d\vec{p}_2, \dots, d\vec{p}_N$ dir.

(1.2) bağıntısındaki integral $6N$ boyutlu faz uzayı üzerinden alınmalıdır. Bölüşüm fonksiyonu, kinetik enerji kısmı ve etkileşme kısmı olmak üzere ikiye ayrılabilir.

$$\Xi_N = \Xi_N^K \Xi_N^E \quad (1.3)$$

burada Ξ_N^K kinetik enerji kısmı, Ξ_N^E ise etkileşme kısmıdır. Burada sistemi oluşturan moleküllerin eşit kütleli olduğunu varsayarsak ($m_i = m$) bölüşüm fonksiyonunun kinetik enerji kısmı şöyledir;

$$\begin{aligned} \Xi_N^K &= \frac{1}{N!h^{3N}} \int \dots \int \exp\left(-\sum_{i=1}^N \frac{p_i^2}{2mk_B T}\right) d\vec{p}^N \\ &= \frac{1}{N!h^{3N}} (2\pi mk_B T)^{\frac{3N}{2}} \\ &= \frac{1}{N! \Lambda^{3N}} \end{aligned} \quad (1.4)$$

burada $\Lambda = h/(2\pi k_B T)^{\frac{1}{2}}$ de Broglie dalga boyudur. Bölüşüm fonksiyonunun etkileşme kısmı ise şöyledir;

$$\Xi_N^E = \int \dots \int \exp(-\beta \Phi(\vec{r}^N)) d\vec{r}^N \quad (1.5)$$

Buna göre bölüşüm fonksiyonunu kullanarak sıvı sisteminin $(\vec{r}^N, \vec{p}^N)$ faz uzayı değişkenlerine bağlı X gibi bir büyüklüğün kanonik topluluk üzerinden ortalaması şöyle yazılabilir;

$$\langle X \rangle = \frac{1}{\Xi_N} \int \dots \int X(\vec{r}^N, \vec{p}^N) \exp(-\beta H_N(\vec{r}^N, \vec{p}^N)) d\vec{r}^N d\vec{p}^N \quad (1.6)$$

Sistemin bütün termodinamik özellikleri bölüşüm fonksiyonu ve onun türevleri cinsinden yazılabilir. Örneğin Helmholtz serbest enerjisi A ve sistemin iç enerjisi E ;

$$A = \frac{-\ln \Xi_N}{\beta} \quad (1.7)$$

ve

$$E = \left(\frac{\partial(\beta A)}{\partial \beta} \right)_V = - \left(\frac{\partial \ln(\Xi_N)}{\partial \beta} \right)_V \quad (1.8)$$

şeklinde yazılabilir. Yukarıda adı geçen etkileşme potansiyel enerjisi $\Phi(\vec{r}^N)$, sıvı sistemini oluşturan parçacıklar arasındaki ikili, üçlü ve daha fazla terimli etkileşmeleri içermektedir ve genel olarak şöyle yazılmaktadır;

$$\Phi(\vec{r}^N) = \sum_{i=1}^{N-1} \sum_{j=i+1}^N \Phi_{ij}(\vec{r}_{ij}) + \sum_{i=1}^{N-2} \sum_{j=i+1}^{N-1} \sum_{k=j+1}^N \Phi_{ijk}(\vec{r}_{ij}, \vec{r}_{ik}) + \dots \quad (1.9)$$

burada $\vec{r}_{ij} = \vec{r}_i - \vec{r}_j$ dir. (1.9) bağıntısındaki ilk terim sıvıyı oluşturan parçacıkların ikili etkileşmelerini, ikinci terim ise üçlü etkileşmeleri belirtmektedir. Genel olarak bu seriyi ikinci terimden sonra kesmek iyi bir yaklaşımdır. Böylece potansiyel enerjideki Φ_{ijk} üçlü etkileşme terimini bilmek yeterlidir. (1.9) bağıntısındaki üçlü ve daha çok terimli etkileşme potansiyel enerjileri ancak kuramsal olarak yazılabilir, bu terimleri deneysel olarak oluşturmak henüz mümkün değildir. Günümüzde her ne kadar bilgisayarlardaki gelişmeler sonucu basit sıvılar (bir bileşenli) için üçlü etkileşme potansiyelleri kullanılsada genel olarak

ikili etkileşmeleri içeren potansiyel enerji terimi kullanılır. Üçlü ve daha çoklu etkileşmelerin katkısı etkin bir ikili potansiyel enerji terimi tanımlanarak hesaba katılır. Buna göre sıvı sisteminin Hamiltoniyeni şöyle yazılır;

$$H_N(\vec{r}^N, \vec{p}^N) = \sum_{i=1}^N \frac{p_i^2}{2m_i} + \sum_{i=1}^{N-1} \sum_{j=i+1}^N \Phi_{ij}(\vec{r}_{ij}) \quad (1.10)$$

Moleküllerin verilen bir dağılımı için (1.10) bağıntısındaki çift toplam terimi $N(N-1)$ tane etkileşmeyi verir.

1.3 Uzaysal dağılım fonksiyonu

Sıvılar gibi akışkan maddelerin mikro ölçekteki yapıları, uzaysal dağılım fonksiyonları ile tanımlanabilir. Düzgün bir akışkanın sayı yoğunluğu $\rho=N/V$ dir. Sistemin faz uzayında $\vec{r}^N \pm d\vec{r}^N/2$, $\vec{p}^N \pm d\vec{p}^N/2$ de bulunma olasılığı $f^{(N)}(\vec{r}^N, \vec{p}^N)d\vec{r}^N d\vec{p}^N$ dir. Burada $f^{(N)}(d\vec{r}^N, d\vec{p}^N)$ fonksiyonu , N parçacık olasılık yoğunluğu dağılımı fonksiyonudur ve şöyle tanımlanır :

$$f^{(N)}(\vec{r}^N, \vec{p}^N) = \frac{1}{\Xi_N} \exp(-H_N \beta) \quad (1.11)$$

momentum üzerinden integral alınırsa ,

$$\begin{aligned} n^{(N)}(\vec{r}^N) &= \int f^{(N)}(\vec{r}^N, \vec{p}^N) d\vec{p}^N \\ &= \frac{1}{\Xi_N^E} \exp(-\Phi(\vec{r}^N)\beta) \end{aligned} \quad (1.12)$$

bulunur. Böylece $n^{(N)}$, 1 molekülünün $\vec{r}_1$ ' de , 2 molekülünün $\vec{r}_2$ ' de , vb. N molekülünün $\vec{r}_N$ 'de bulunma olasılık yoğunluğunu verir.

Sistemde m tane molekülün $\vec{r}_m = \vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_m$ gibi noktalarda bulunma olasılık yoğunluğu, geri kalan N-m molekül gözönüne alındığında

$$n^{(m)}(\vec{r}^m) = \int_{\vec{r}_{m+1} \dots \vec{r}_N} \frac{\exp(-\Phi(\vec{r}^N)\beta) d\vec{r}_{m+1} \dots d\vec{r}_N}{\Xi_N^E} \quad (1.13)$$

şeklinde yazılır. Bu ifade daha genelleştirildiğinde, N tane molekülün herhangi birinin $\vec{r}_m = \vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_m$ gibi konumlarda bulunma olasılığını bulmak için $N! / (N-m)!$ dejenerasyon faktörü ile çarpmak gerekir. Buna göre bu olasılığın daha büyük olacağı açıktır. Böylece m molekül dağılım fonksiyonu $g^{(m)}$ şöyle tanımlanır;

$$\rho^m g^{(m)}(\vec{r}^m) = \frac{N!}{(N-m)!} n^{(m)}(\vec{r}^m) \quad (1.14)$$

burada $g^{(m)}$ fonksiyonu, $n^{(m)}$ ile karşılaştırıldığında boyutsuz olduğu görülür. Örneğin $m=2$ alındığında $\rho^2 g^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) d\vec{r}_1 d\vec{r}_2$ büyüklüğü bir molekülün $\vec{r}_1 \pm d\vec{r}_1 / 2$ de bulunma olasılığını verir. Burada $g^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ iki parçacık dağılım fonksiyonu olarak adlandırılır. $m \ll N$ durumu için $N! n^{(m)} / (\rho^m (N-m)!) \approx V^m (1 + O((m-1)/N))$ dir. Buna göre (1.13) ve (1.14) bağıntılarını kullanarak m molekül dağılım fonksiyonu şöyle tanımlanır;

$$g^{(m)}(\vec{r}^m) \approx V^m \int_{\vec{r}_{m+1} \dots \vec{r}_N} \frac{\exp(-\Phi(\vec{r}^N)\beta) d\vec{r}_{m+1} \dots d\vec{r}_N}{\Xi_N^E} \quad (1.15)$$

2. UZAYSAL DAĞILIM FONKSİYONLARI

2.1 Çift Radyal Dağılım Fonksiyonu ve Bazı Özellikleri

Çift radyal dağılım fonksiyonu $g(r)$, iki parçacık dağılım fonksiyonu $g^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ 'den elde edilebilir. $g(r)$ çift radyal dağılım fonksiyonu uzaysal dağılım fonksiyonlarının en basit fakat en önemli fonksiyonlarından biridir. $g^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ ifadesini (1.14) bağıntısını kullanarak şöyle yazabiliriz.

$$g^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \frac{N(N-1)n^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2)d\vec{r}_1d\vec{r}_2}{\rho(\vec{r}_1)d\vec{r}_1\rho(\vec{r}_2)d\vec{r}_2} \quad (2.1)$$

Bu bağıntı homojen olmayan sistemler için ($\rho(\vec{r}) \neq \rho$) eş zamanlı olarak iki molekülün birinin $\vec{r}_1$ 'de, diğerinin $\vec{r}_2$ 'de bulunma olasılığını verir. İki moleküle ait koordinat sistemini kütle merkezi ve bağıl koordinat sistemi olarak alacak olursak ve yalnızca bağıl koordinatı göz önüne alacak olursak $\vec{r}_{21} = \vec{r}_2 - \vec{r}_1$ ve $d\vec{r}_2d\vec{r}_1 \rightarrow d\vec{r}_1d\vec{r}_{21}$ dönüşümleri ile ;

$$g^{(2)}(\vec{r}_{21}) = \frac{n(\vec{r}_{21})d\vec{r}_{21}}{\rho(\vec{r}_{21})d\vec{r}_{21}} \quad (2.2)$$

bulunur. Burada ; $n(\vec{r}_{21}) = Vn^{(2)}(\vec{r}_{21})$ ve $\int_V \rho(\vec{r}_1)d\vec{r}_1 = N$ bağıntıları kullanıldı.

Homojen bir sistemde küresel simetriden dolayı, küresel koordinatları kullanacak olursak, yaygın olarak kullanılan çift radyal dağılım fonksiyonu (yada kısaca radyal dağılım fonksiyonu) $g(r)$;

$$g(r) = \frac{n(r)}{4\pi\rho r^2dr} \quad (2.3)$$

şeklinde elde edilir. Burada $r \rightarrow r_{21}$ ve $n(r)$ ise orijinde seçilen herhangi bir molekülden (atomdan veya iyondan) $r \pm dr/2$ mesafede bulunan moleküllerin sayısıdır. Sıvılarda $(4\pi\rho r^2dr)g(r)$ büyüklüğü, bir parçacık orijin olarak seçilir ise, bu parçacıktan r kadar

mesafede, dr küresel kabuğu içindeki moleküllerin sayısını verir. Sabit sayıda molekül içeren düzgün yoğunluklu bir sistemde r değeri için, $g(r)$;

$$\lim_{r \rightarrow \infty} g(r) = 1 - \frac{1}{N} \quad (2.4).$$

(N, sistemdeki parçacık sayısı olmak üzere) değerine yaklaşır. $g(r)$ radyal dağılım fonksiyonu sıvıların yapısının anlaşılmasında hayati öneme sahiptir. Bu nedenle sıvıların yapısının anlaşılması için yapılan hesaplamalarda, $g(r)$ radyal dağılım fonksiyonu elde edilmeye çalışılır. $g(r)$ elde edildikten sonra, sıvı sisteminin yapısal ve termodinamik özellikleri de hesaplanabilir.

Radyal dağılım fonksiyonu biliniyor ise, seçilen bir (molekülün, atomun yada iyonun) birinci komşuluğundaki moleküllerin sayısı (kısaca koordinasyon veya komşuluk sayısı), radyal dağılım fonksiyonunun birinci maksimumu altında kalan alana eşittir. Bu nedenle koordinasyon sayısını N ile gösterecek olursak şu şekilde ifade edebiliriz;

$$N = 4\pi\rho \int_0^r g(r)r^2 dr \quad (2.5)$$

Radyal dağılım fonksiyonu $g(r)$ biliniyor ise sıvı sisteminin iç enerjisi şöyle bulunabilir. N parçacıktan oluşmuş sistemin iç enerjisi ;

$$E = \frac{3}{2} Nk_B T + U(\vec{r}^N) \quad (2.6)$$

şeklindedir. Burada ilk terim kinetik enerji, ikinci terim ise potansiyel enerji olup N tane molekülün uzaysal dağılımına bağlıdır. N parçacıklı sistem için oldukça karmaşık olan bu potansiyel enerji terimi, radyal dağılım fonksiyonu kullanılarak şöyle yazılabilir;

$$U(\vec{r}^N) = \int \Phi(\vec{r}^N) n^{(N)}(\vec{r}^N) d\vec{r}^N \quad (2.7)$$

ve buradaki $\Phi(\vec{r}^N)$ terimi,

$$\Phi(\vec{r}^N) = \Phi^{(2)}(\vec{r}_2) + \Phi^{(3)}(\vec{r}_3) + \dots \quad (2.8)$$

olarak tanımlanılır. Bu son iki bağıntı kullanılarak ;

$$\begin{aligned}
 U(\vec{r}^N) &= \frac{N(N-1)}{2} \int_{\vec{r}^2} \Phi^{(2)}(\vec{r}_{21}) n^2(\vec{r}_1, \vec{r}_2) d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 + \dots \\
 &= \frac{\rho^2}{2} \int_{\vec{r}^2} g^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \Phi(\vec{r}_{21}) d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 + \dots \\
 &= 2\pi N \rho \int_0^\infty g(r) \Phi(r) r^2 dr + \dots
 \end{aligned} \tag{2.9}$$

yazılabilir. Buna göre örneğin sıvının basıncı,

$$\begin{aligned}
 P &= k_B T \left(\frac{\partial}{\partial V} \ln \Xi_N \right) \\
 &= k_B T \left(\frac{\partial}{\partial V} \ln(\Xi_N^K \Xi_N^E) \right) \\
 &= \rho k_B T - \int \left(\frac{\partial}{\partial V} \Phi(\vec{r}^N) \right)_T n^{(N)}(\vec{r}^N) d\vec{r}^N
 \end{aligned}$$

yazılabilir. Eğer Φ için çift etkileşimleri göz önüne alınacak olursa,

$$\begin{aligned}
 P &= \rho k_B T - \frac{N(N-1)}{2} \int \left(\frac{\partial}{\partial V} \Phi^{(2)}(\vec{r}_{21}) \right)_T n^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \\
 &= \rho k_B T - \frac{2\pi\rho^2}{3} \int_0^\infty g(r) \frac{\partial\Phi(r)}{\partial r} r^3 dr
 \end{aligned} \tag{2.10}$$

bulunur.

Sıvıların yapısının anlaşılmasında diğer önemli bir büyüklükte radyal dağılım fonksiyonunun Fourier dönüşümü olan $S(k)$ yapı faktörüdür ve $g(r)$ ye bağlı olarak şöyle tanımlanır;

$$\begin{aligned}
S(k) &= 1 + \rho \int_V e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} (g(r) - 1) d^3\vec{r} \\
&= 1 + 4\pi\rho \int_0^\infty dr r^2 \frac{\sin(kr)}{kr} (g(r) - 1)
\end{aligned} \tag{2.11}$$

Sıvıların yapısının incelenmesinde çoğu zaman $g(r)$ yerine $S(k)$ kullanılır, çünkü deneysel olarak elde edilen sonuçlar $S(k)$ yapı faktörleridir, bu nedenle yapılan kuramsal hesabı deneyle karşılaştırmak için $S(k)$ ları kullanmak daha pratiktir. $S(k)$ yapı faktörünün başka bir özelliği de $\lim_{k \rightarrow 0}$ değeri için $S(0)$ ile sıvının sıkışabilirliği (kompresibilitesi) arasında bir bağıntı yazılabilmektedir. Sıvının T sıcaklığındaki sıkışabilirliği K_T , ideal gazın izotermal (eş-ısıllı) sıkışabilirliği ise K_T^0 olmak üzere,

$$\begin{aligned}
S(0) &= 1 + 4\pi\rho \int_0^\infty r^2 (g(r) - 1) dr \\
&= \frac{K_T}{K_T^0} = \frac{\rho K_T}{\beta}
\end{aligned} \tag{2.12}$$

şeklinde, $S(0)$ ile K_T arasında bir bağıntı yazılabilir. Sıkışabilirlik deneysel olarak daha kolay ölçülen bir büyüklük olduğu için $\lim_{k \rightarrow 0}$ değerlerinde $S(0)$ değerlerinin doğruluğunun kontrol edilmesini sağlar.

Görüldüğü gibi eğer $g(r)$ radyal dağılım fonksiyonu biliniyor ise sıvının yapısal veya termodinamik özellikleri elde edilebilir. Bu nedenle $g(r)$ nin nasıl elde edileceği oldukça önemlidir. Bunun bir yolu deneysel olarak elde etmektir. Eğer bir sıvının $S(k)$ yapı faktörü biliniyor ise (2.11) bağıntısına göre ters Fourier dönüşümü alınarak $g(r)$ elde edilir. Bu yöntemin tamamen yeterli olmayacağı açıktır, çünkü birçok sıvı için ergime noktaları oldukça yüksektir. (Örneğin tipik iyonik sıvı olan ergimiş tuzların erime sıcaklığı 1000 °K civarındadır). Bu nedenle bu yüksek sıcaklıklarda deneysel olarak yapı faktörünü elde etmek hem pahalı hemde zor bir işlemdir. Bunun yanında deneysel olarak elde edilen değerinde doğruluğu başka bir yöntemle test edilmelidir. Bu nedenle $g(r)$ nin kuramsal olarak elde edilmesi çok faydalıdır. Bu konuda istatistik fizik kuramı kullanılarak oldukça yoğun çalışmalar yapılmıştır. Bu çalışmalar Born-Green-Yvon (BGY) ve Kirkwood tarafından oldukça

kullanışlı bir şekilde formülüze edilmiştir (Hansen ve Mc Donald, 1976; Tosi ve March, 1984 Heyes, 1994). Başka bir yöntem ise Ornstein-Zernike (O-Z) integral denklem yöntemidir, bu yöntem ile BGY teorisi birbiriyle uyum içindedir. Ornstein-Zernike yöntemi günümüzde yaygın olarak kullanılmaktadır. Buna göre sıvıda toplam korelasyon fonksiyonu olarak adlandırılan $h(r)$ şöyle tanımlanır;

$$h(\vec{r}) = c(\vec{r}) + \rho \int c(\vec{r} - \vec{r}') h(\vec{r}') d\vec{r}' \quad (2.13)$$

Bu denklem Ornstein-Zernike integral denklemi olarak adlandırılır. Bu bağıntıda birinci terim $c(\vec{r})$, doğrudan korelasyon terimi olarak adlandırılır ve seçilen bir molekül ile (atom yada iyon) sıvının geri kalan molekülleri arasındaki ikili korelasyonları verir. (burada korelasyon teriminden, bir iyonun başka bir iyonla etkileşmesi sonucu sahip olduğu uzaysal dağılım anlaşılmalıdır.) İkinci terim ise dolaylı korelasyonların katkısını vermektedir. Ornstein – Zernike denklemi genel olarak homojen olmayan sistemleri de temsil eder ve bu sistemler için çözümü oldukça zordur. Çünkü bu tür sistemler için parçacıklar arası etkileşmeleri (ikili,üçlü,vs.) tanımlamak oldukça zordur. Sistem homojen ise, etkileşmeler yalnızca r mesafesine bağlıysa $h(\vec{r}) \equiv h(|\vec{r}|) = h(r)$ ise O-Z deklemini, bazı kapalılık bağıntıları yardımıyla çözülebilir. Bu kapalılık bağıntılarından en yaygın olarak kullanılanı, Percus-Yevick (P-Y) (Percus ve Yevick,1958) ve Hypernetted-Chain (HNC) kapalılık bağıntılarıdır. PY kapalılık bağıntısı, sıvıyı oluşturan parçacıklar arası etkileşme, kısa mesafeli ise iyi sonuç verir , HNC ise sıvıyı oluşturan parçacıklar arası etkileşmeler Coulomb etkileşmeleri gibi uzun mesafeli etkileşmeler ise iyi sonuç vermektedir.Bu iki kapalılık bağıntısı şöyle yazılabilir:

$$C^{PY}(r) = [1 - \exp(\Phi(r)\beta)]g(r) \quad (2.14)$$

$$C^{HNC}(r) = -\beta\Phi(r) + h(r) - \ln[1 + h(r)] \quad (2.15)$$

Burada $\beta = 1/k_B T$ dir. Yukarıda $\Phi(r)$, parçacıklar arası çift etkileşme fonksiyonudur. $\Phi(r)$ sıvıların yapısının incelenmesinde anahtar rol oynamaktadır. $\Phi(r)$ genel olarak (1.9) bağıntısında tanımlandığı gibi, sıvıyı oluşturan parçacıklar arası tüm ikili ve çoklu etkileşmeleri içermektedir, fakat pratikte bu çok karmaşık olduğu için bu üçlü ve daha çoklu terimlerin katkısı etkin bir çift potansiyeli tanımlanarak hesaba katılır.

Buraya kadar anlatılanlar tek tür parçacıktan (molekülden, atomdan, iyondan) oluşmuş sıvı sistemleri içindi. Eğer sıvıyı iki tür (molekül, atom, iyon) oluşturuyor ise (örneğin NaCl, AlCl₃ vb.) yukarıda tanımladığımız, büyüklükleri bu iki bileşenli sisteme kolayca genelleleyebiliriz. Buna göre $g(r)$ radyal dağılım fonksiyonu yerine, $g_{ij}(r)$, kısmi radyal dağılım fonksiyonunu almak gerekir. Örneğin, bir bileşenli Na sıvısı için, $g(r)$, orijinde seçilen bir Na atomundan, r mesafede bulunan atomların dağılımını verecektir. Halbuki iki bileşenli NaCl sıvısı için, $g_{ij}(r)$; g_{NaNa} , g_{NaCl} , g_{ClCl} olmak üzere üç tane kısmi değer alacaktır. Bu nedenle bu üç durum , $g_{ij}(r)$ kısmi radyal dağılım fonksiyonu olarak adlandırılır. Buna göre Ornstein-Zernike integral denklemi ;

$$h_{ij}(\vec{r}) = C_{ij}(\vec{r}) + \sum_k \rho_k \int d\vec{r}' C_{ik}(\vec{r} - \vec{r}') h_{kj}(\vec{r}') \quad (2.16)$$

şeklinde yazılır. Aynı zamanda $h_{ij}(\vec{r})$ kısmi toplam korelasyon fonksiyonu , $g_{ij}(\vec{r})$ kısmi radyal dağılım fonksiyonuna ,

$$h_{ij}(\vec{r}) = g_{ij}(\vec{r}) - 1 \quad (2.17)$$

şeklinde bağlıdır. Burada açıkça görüleceği gibi $\lim_{r \rightarrow \infty} g_{ij}(r) \rightarrow 1$ olduğundan $h_{ij}(r) \rightarrow 0$ olacaktır. Bu tanımlamaya uygun olarak O-Z denklemi için kısmi kapalılık bağıntıları şöyle yazılabilir.

$$C_{ij}^{PY}(r) = (1 - \exp(\Phi_{ij}(r)\beta)) g_{ij}(r) \quad (2.18)$$

$$C_{ij}^{HNC}(r) = -\beta \Phi_{ij}(r) + h_{ij}(r) - \ln[1 + h_{ij}(r)] \quad (2.19)$$

Aynı zamanda, kısmi yapı faktörü, $S_{ij}(\vec{k})$, kısmi koordinasyon sayısı da, $N_{ij}(r)$ şöyle tanımlanır.

$$S_{ij}(\vec{k}) = \delta_{ij} + \rho(x_i x_j)^{1/2} \int d^3 \vec{r} e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} [g_{ij}(r) - 1] \quad (2.20)$$

$$N_{ij}(r) = 4\pi n x_j \int_0^r g_{ij}(r') r'^2 dr' \quad (2.21)$$

(2.21) bağıntısı ile verilen koordinasyon sayısı, orijinde seçilen i tipi bir parçacığın birinci yada ikinci komşuluktaki j türü parçacıkların sayısını vermektedir. (r 'nin seçimine bağlı olarak, eğer r , $g(r)$ 'nin birinci maksimumu olarak alınırsa birinci komşuluktaki, j türü parçacıkların sayısını, eğer r , $g(r)$ 'nin ikinci maksimumu olarak alınırsa ikinci komşuluktaki j türü parçacıkların sayısını vermektedir.) Yukarıdaki bağıntılarda $n x_i$, i türü parçacıkların kısmi sayı yoğunluğunu vermektedir.

Buraya kadar anlatılan kavramlar, bir yada iki bileşenli sıvıların, denge durumundaki yapısını vermektedir. Sıvıyı oluşturan iyonlar, aralarındaki etkileşmelere göre denge durumuna gelirler ve sıvı sıcaklığı değişmediği sürece, bu denge durumu etrafında küçük değişimlerle yapılarını korurular. Bu tezde incelenen kısmen sönümlü iyonik sıvılar için elde edilen sonuçlar, buraya kadar anlatılan sıvının denge durumu sonuçları ile karşılaştırılacaktır.

2.2 Kısmen Sönümlü İyonik Sıvılar İçin Korelasyon Fonksiyonlarının Elde Edilmesi

Kısmen sönümlü sıvıların yapılarının incelenmesi için, bu yapılara ait korelasyon fonksiyonlarının ve radyal dağılım fonksiyonlarının elde edilmesi denge durumu sıvılarının teorisinden biraz farklıdır. Kısmen sönümlü sistemde sıvının bir bileşeni kendisi arasındaki etkileşmelerle denge konumuna gelerek bir kafes yapı oluşturur ve bu bileşenin, sıvının diğer bileşeni ile etkileşerek termodinamik denge durumuna gelmesi engellenir. Bu kafes yapı katılarda olduğu gibi sabit bir yapı değilde daha çok bir bileşenli bir sıvının oluşturduğu yapıya benzetilebilir. İkinci bileşen ise donmuş kafes yapının içinde hareket etme yeteneğine sahip olup hem kendi arasında hemde hemde kafes yapı ile etkileşerek termodinamik dengeye gelir ve akışkan bileşen olarak adlandırılır. Bu tür bir sistemin korelasyon fonksiyonlarını elde etmek için “replika” (tekrar, kopya) yöntemi kullanılır. (Stell vd., 1993).

Bu yöntemle elde edilen Ornstein –Zernike integral denklemine, Replika Ornstein-Zernike denklemi denir (RO-Z). Sıvı içinde kafes bileşenini 1, akışkan bileşeni de 2 ile gösterecek olursak, 1 bileşeni belli bir T sıcaklığında $\Phi_{11}(ij)$ çift etkileşmesine sahip olacaktır. 2 bileşeni ise $\Phi_{22}(ij)$ ve $\Phi_{12}(ij)$ çift etkileşmesine sahip olacaktır. Buna göre bu iki bileşenli sistemin

Serbest enerjisi F , Z bölüşüm fonksiyonuna bağlı olarak $\beta = \frac{1}{k_B T}$ olmak üzere,

$$-\beta F = \ln Z_{\text{toplaml}} = \frac{1}{Z'} \int e^{-\beta H_{11}} \ln Z_2 d\vec{l} \quad (2.22)$$

şeklinde yazılır. Burada,

$$Z' = \int e^{-\beta H_{11}} d\vec{l} \quad (2.23)$$

ve

$$Z_2 = \int e^{-\beta [H_{12} + H_{22}]} d\vec{2} \quad (2.24)$$

şeklindedir. Yukarıdaki H_{ij} , i ve j gibi iki parçacık arasındaki çift etkileşmeyi vermektedir. $d\vec{l}$, 1 türü parçacıkların tüm konumları üzerinden integrali, $d\vec{2}$, 2 türü parçacıkların tüm konumları üzerinden integrali belirtmektedir. (2.22) bağıntısında integralin içinde logaritma olduğundan bu integralin analitik olarak alınması zordur. Bu zorluktan kurtulmak için 'replika' kolaylığı (replica trick) olarak adlandırılan bir yaklaşıklık kullanılır. Buna göre

$$\ln Z \equiv \lim_{n \rightarrow 0} \frac{1}{n} [Z^n - 1] \quad (2.25)$$

alınır. Buna göre (2.22) deki toplam bölüşüm fonksiyonu için,

$$\ln Z_{\text{toplaml}} = \lim_{n \rightarrow 0} \frac{1}{n} \int \left\{ \exp \left[-\beta \sum_{i=1}^n [H_{12}^{(i)} + H_{22}^{(i)}] \right] - 1 \right\} \exp[-\beta H_{11}] d\vec{2} d\vec{l} \quad (2.26)$$

şeklinde ifade edilebilir. Bu yaklaşım altında ikinci bölümde anlatılan yöntem kullanılarak kısmen sönümlü sıvının korelasyon fonksiyonları elde edilir (Stell vd., 1993).

Kısmen sönümlü sistemde akışkan bileşeni için doğrudan korelasyon fonksiyonu $c_{22}(r)$ ve toplam korelasyon fonksiyonu $h_{22}(r)$ iki kısma ayrılır.

$$c_{22}(12) = c_e(12) + c_b(12) \quad (2.27)$$

$$h_{22}(12) = h_c(12) + h_b(12) \quad (2.28)$$

Burada $c_c(12)$ aynı düzlem (tabaka) içindeki akışkan bileşeninin doğrudan korelasyonu, $c_b(12)$ ise farklı iki tabakada bulunan akışkan bileşenleri arasındaki doğrudan korelasyonu vermektedir. Bu tanımlamaya uygun olarak, kısmen sönümlü iyonik sıvının Referans Ornstein-Zernike integral denklemleri k uzayında (Fourier uzayında) şöyle yazılır;

$$h_{11} = c_{11} + n_1 c_{11} \otimes h_{11} \quad (2.29)$$

$$h_{21} = c_{21} + n_1 c_{21} \otimes h_{11} + n_2 c_c \otimes h_{21} \quad (2.30)$$

$$h_{22} = c_{22} + n_1 c_{21} \otimes h_{12} + n_2 c_c \otimes h_{22} + n_1 c_b \otimes h_c \quad (2.31)$$

$$h_c = c_c + n_1 c_c \otimes h_c \quad (2.32)$$

yukarıdaki bağıntılarda $c_{12} = c_{21}$ ve $h_{12} = h_{21}$ simetrisi göz önüne alınırsa h_{12} şöyle yazılır;

$$h_{12} = c_{12} + n_1 c_{11} \otimes h_{12} + n_2 c_{12} \otimes h_c \quad (2.33)$$

bu bağıntılardaki n_i terimleri, i yinci bileşenin sayı yoğunluğunu vermektedir.

(2.27)-(2.33) denklemleri çözüldüğünde kısmen sönümlü iyonik sıvılara ait korelasyon fonksiyonları elde edilir. Bu denklemler denge durumu sıvıları için kullanılan yöntemlere benzer şekilde çözülür. (2.27) bağıntısında $c_{22}(12)$, c_c ve c_b olmak üzere ikiye ayrılmıştı. Bu ifadede eğer, farklı iki tabakadaki akışkan bileşeni arasındaki, doğrudan korelasyon terimi c_b yi ihmal ederek çözüm buluyorsak bu yaklaşıma Fanti yaklaşımı (Fanti vd.,1990), c_b ihmal edilmeden yapılan çözümler ise Given ve Stell yaklaşımı (Given vd.,1991) olarak adlandırılır.

Kısmen sönümlü iyonik sıvıların yapısı RO-Z denklemleri tanımlandıktan sonra, denge durumundaki iyonik sıvılarda olduğu gibi uygun kapalılık bağıntısı ve çift etkileşme potansiyeli tanımlanarak RO-Z denklemleri çözülerek elde edilir.

3. ÇİFT ETKİLEŞME POTANSİYELLERİ VE RADYAL DAĞILIM FONKSİYONLARI

3.1 Kısmen Sönümlü İyonik Sıvılar İçin Radyal Dağılım Fonksiyonlarının Elde Edilmesi.

Kısmen sönümlü sıvı sistemleri olarak NaCl, CuCl, LaCl₃, YCl₃ ve AlCl₃ sistemleri alındı. Bu sistemlerde Cl¹⁻ iyonu kafes bileşen olarak, metal (Na¹⁺, Cu¹⁺, La³⁺, Y³⁺, Al³⁺) iyonları ise akışkan bileşen olarak alındı. Bu sistemler iyonik yapıya sahip oldukları için yapının oluşmasında uzun mesafeli Coulomb etkileşmeleri önemli rol oynar, bu nedenle (2.27)-(2.33) eşitlikleri ile tanımlanan Ornstein-Zernike integral denklemlerinin çözümü için, Hypernetted-Chain(HNC) (çok iyi belirlenmiş zincir yaklaşımı) kapalılık bağıntısı kullanıldı. Yine bu sistemler için $\Phi_{ij}(r)$ çift etkileşme potansiyeli olarak, literatürde bu sistemleri en iyi temsil eden potansiyeller alındı. Herbir sistem için radyal dağılım fonksiyonları, koordinasyon sayıları ve yapı faktörleri elde edildi. Elde edilen bu büyüklükler aynı sistemlerin denge durumu sıvı yapısı için elde edilen değerleri ile karşılaştırıldı.

3.2 Çift Etkileşme Potansiyelleri ve Potansiyel Parametreleri

Ergimiş NaCl sistemi iyonik sıvılara iyi bir örnektir. Yüksek erime sıcaklığına sahiptir (1073 °K). İyonik iletkenliği yüksektir (3.6 Ω⁻¹ cm⁻¹). Ergimiş NaCl iyonik sıvısında Coulomb etkileşmelerine göre bir yapı oluşur. Bu sistem Tosi-Fumi potansiyeli olarak bilinen çift potansiyeli ile temsil edilir. Bu potansiyelin genel formu ve parametreleri şöyledir;

$$\Phi_{\alpha\beta}(r) = \frac{z_{\alpha}z_{\beta}e^2}{r} + B_{\alpha\beta} \exp(-\alpha r) - \frac{C_{\alpha\beta}}{r^6} - \frac{D_{\alpha\beta}}{r^8} \quad (3.1)$$

şeklinde. B, C, D potansiyel parametrelerinin değerleri çizelge 1 de verilmiştir.

Çizelge 1: NaCl çift potansiyel parametrelerinin, B için 10⁻¹² erg birimindeki, C için 10⁻¹² ergÅ⁶ birimindeki, D için 10⁻¹² ergÅ⁸ birimindeki değerleri. ($\alpha = 3.15 \text{ Å}^{-1}$)

B ₊₊	B ₊₋	B ₋₋	C ₊₊	C ₊₋	C ₋₋	D ₊₊	D ₊₋	D ₋₋
537.16	1985.3	733.8	1.68	11.2	116.0	0.8	13.9	233.0

Ergimiş CuCl sistemi üstün iyonik iletken yapı olarak bilinir ($3.7 \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$). Bu sistem deneysel olarak (Page ve Mika, 1971; Eisenberg vd., 1982) ve kuramsal olarak (Staford vd., 1990) çokça çalışılmış bir sistemdir. İyonik sıvı yapısı iyi bilinmektedir, ergimiş CuBr, CuI ve AgI yapılarıda, CuCl yapısı ile benzerlik göstermektedir. Bu nedenle bu sistemler benzer çift potansiyeli ile temsil edilebilirler. Eğer metel iyonunu M ile Halojen iyonunu X ile belirtecek olursak bu sistemler için çift potansielin genel yapısı şöyledir (Staford vd., 1990);

$$\Phi_{MM}(r) = \frac{H_{MM}(r)}{r^7} + \frac{z^2 e^2}{r} \quad (3.2)$$

$$\Phi_{XX}(r) = \frac{H_{XX}}{r^7} + \frac{z^2 e^2}{r} - \frac{\alpha_X z^2 e^2}{r^4} - \frac{C_{XX}}{r^6} \quad (3.3)$$

$$\Phi_{MX}(r) = \frac{H_{MX}}{r^7} - \frac{z^2 e^2}{r} - \frac{1}{2} \frac{\alpha_X z^2 e^2}{r^4} \quad (3.4)$$

yukarıdaki bağıntılarda z etkin valans değeri olup CuCl için 0.501 alınmıştır. CuCl nin ergime sıcaklığı 773°K olup bu sıcaklık civarında çift etkileşme potansiyelindeki parametreler çizelge 2 de verilmiştir.

Çizelge 2: CuCl çift potansiyel parametrelerinin değerleri. Burada uzunluk Angström ($\text{\AA}$), enerji birimi ise $e^2 / \text{\AA} = 14.39 \text{ eV}$ olacak şekilde alınmıştır.

H_{MM}	H_{XX}	H_{MX}	α_X	C_{XX}
0.00389	132.614	4.292	3.45	5.773

LaCl_3 , YCl_3 , ve AlCl_3 gibi üç değerlikli ergimiş metal tuzları son yıllarda gerek deneysel (Salmon vd., 1999), gerekse kuramsal olarak (Tatlıpınar vd., 1992; Maden vd., 1999) çalışılmaktadır. Bu sistemlerde iyonik yapı, metal iyonu yarıçapı değiştikçe değişim gösterir. Buna göre metel iyonu La^{3+} gibi büyük yarıçapa sahip olan sistemlerde yerel yapı tamamen iyoniktir ve iyonik iletkenlik büyüktür. Birinci komşuluk sayısı 9 civarındadır ve yerel yapı tamamen kararsızdır. Metal iyonu Y^{3+} gibi orta büyüklükte yarıçapa sahip ise yerel yapı birinci komşuluk sayısı 6 civarında olacak şekilde kısmen kararlı bir yapıya sahip olur. Metal iyonu Al^{3+} gibi küçük yarıçapa sahip sistemlerde ise birinci komşuluk sayısı 4 olacak şekilde bir

yerel yapı oluşur ve bu yapı daha kararlı bir yapıdır. Bu üç tür sistem yüklü yumuşak küre olarak adlandırılan çift potansiyeli ile tanımlanabilir. (Akdeniz vd.,1991) Bu çift potansiyel şu şekilde tanımlanır.

$$\Phi_{ij}(r) = \frac{Z_i Z_j e^2}{r} + f(\rho_i + \rho_j) \exp\left[\frac{(R_i + R_j) - r}{(\rho_i + \rho_j)}\right] \quad (3.5)$$

Burada ilk terim iyonlararası uzun mesafe Coulomb etkileşmesi, ikinci terim ise iyonlar arası kısa mesafe itici terimidir. Z_i , iyonların valans değerini ; f , iyonların üst-üste gelme parametresini ; ρ_i , i iyonlarının sertliğini ; R_i ise , bu iyonların yarıçapını belirtmektedir. Potansiyel parametrelerinin aldığı değerler ise YCl_3 için çizelge 3'te verilmiştir.

Çizelge 3: YCl_3 sistemi için çift potansiyel parametrelerinin değerleri.

Z_Y	Z_{Cl}	f	R_{Cl}	R_Y	ρ_{Cl}	ρ_Y	$T(^{\circ}K)$	n
3	-1	0,05	1.71	1.20	0.238	0.007	1020	0.0316

Çizelge 3'te, R 'ler Angström , f , $e^2 A^{-2}$, ρ 'ler Angström , n ise A^{-3} boyutundadır. $AlCl_3$ için çizelge 3'te yalnızca metal iyonu yarıçapı değişecektir. Buna göre $R_{Al} = 0,82 A^{\circ}$ dir.

$CuCl$, $NaCl$, YCl_3 ve $AlCl_3$ için yukarıda tanımlanan çift potansiyeller, Hypernetted-Chain (HNC) kapalılık bağıntısı ile beraber kullanılarak, Ornstein-Zernike integral denklemi ile çözüldü. Nümerik çözümler için Abernethy ve Gillan'ın oluşturduğu algoritma ve fortran programı kullanıldı. (Abernethy vd. ,1980) Bu program iyonik sıvılar için oluşturulmuştur. Kısmen sönümlü iyonik sıvılar için ise bu programın geliştirilmiş hali kullanıldı. (Tatlıpınar ve Pastore, 1993) Bütün sistemler için denge durumu yapıları ile kısmen sönümlü yapıları karşılaştırıldı.

4. SONUÇLAR VE TARTIŞMA

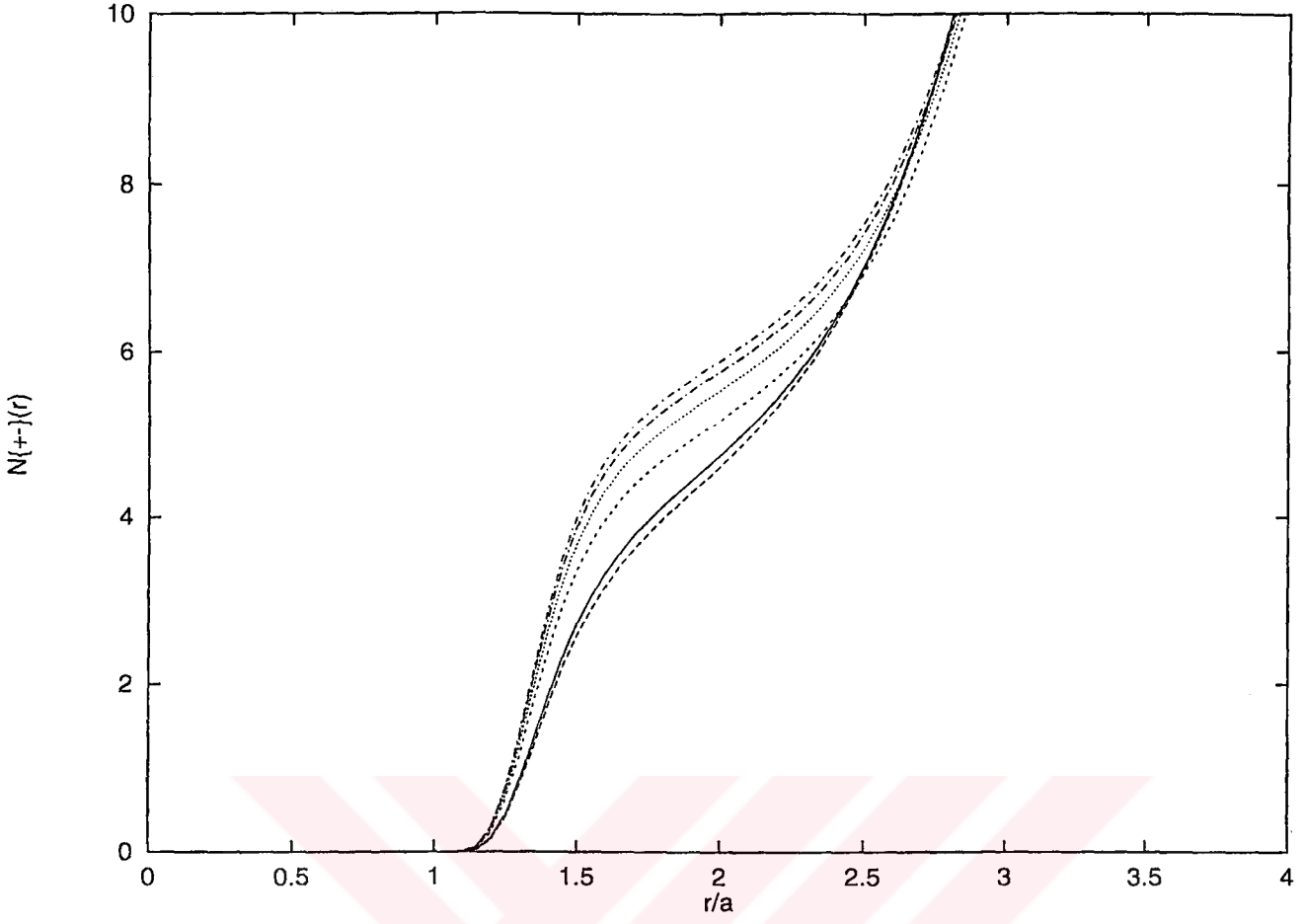
4.1 Koordinasyon Sayıları, Radyal Dağılım Fonksiyonları ve Yapı Faktörleri

NaCl , CuCl, YCl₃ ve AlCl₃ sistemleri için, bölüm 3’de verilen çift potansiyeller ile HNC yaklaşıklığı kullanılarak, Ornstein-Zernike denklemlerinin nümerik çözümlerinden elde edilen koordinasyon sayıları, radyal dağılım fonksiyonları ve yapı faktörleri aşağıdaki grafiklerde verildi. Bu sistemlerden bazıları, denge durumu için H. Tatlıpınar, Z.Akdeniz, G.Pastore ve M.P. Tosi tarafından, kısmen sönümlü sistemler için ise H. Tatlıpınar, G.Pastore ve M.P. Tosi tarafından çalışılmış sistemlerdir.

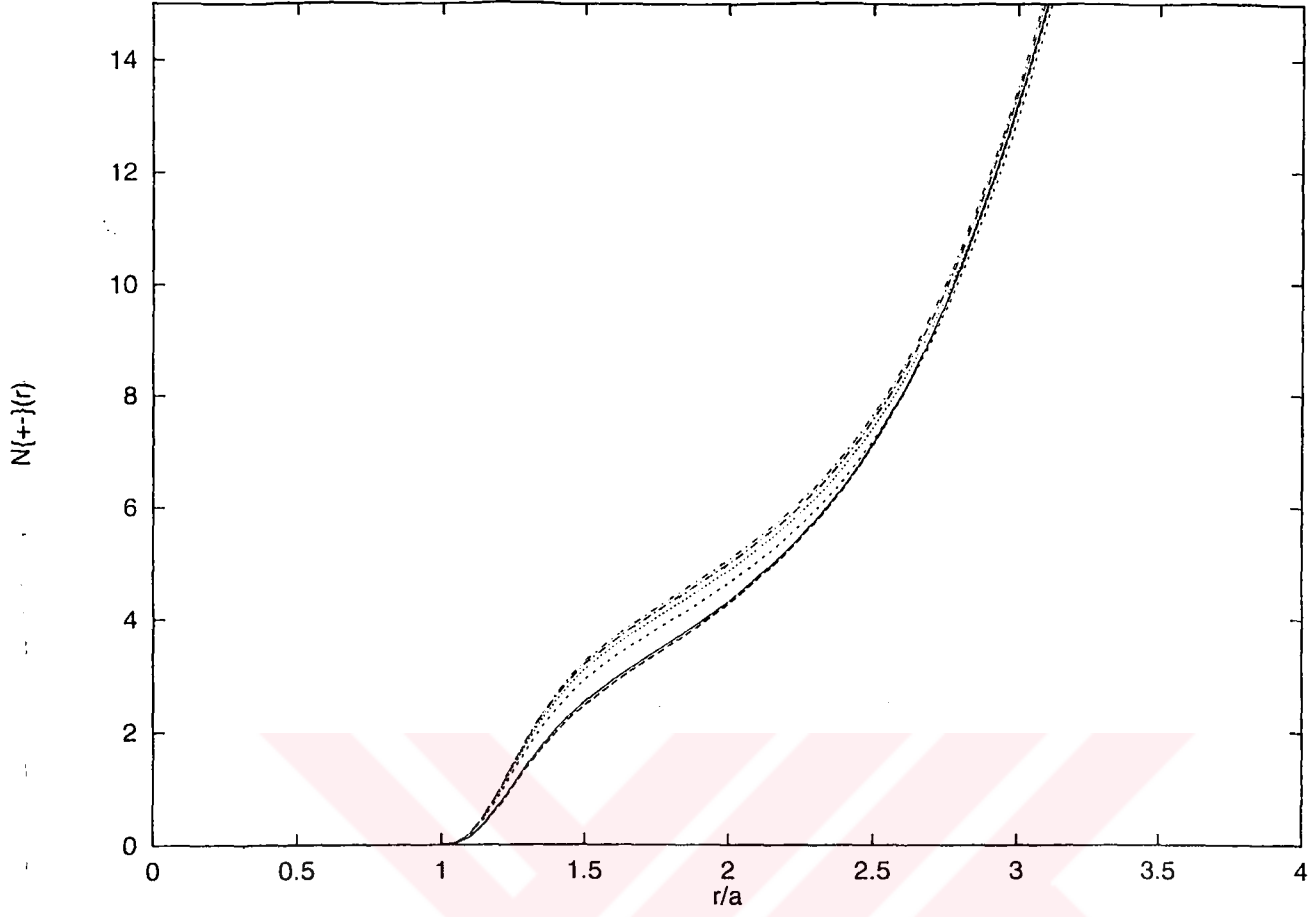
Şekil 4.1, NaCl sistemi için, (2.21) bağıntısı ile verilen koordinasyon sayısını göstermektedir. Düz çizgi denge durumu sistemini, kesikli çizgi ise kısmen sönümlü sistemi belirtmektedir. Diğer çizgiler ise kısmen sönümlü sistemde, Na bileşeninin sayı yoğunluğunun, sırasıyla $n=2,3,4,5$ değerleri için ρ_{Na} / n^3 şeklinde azaltılarak elde edilmiş değerleri belirtmektedir. Şekil 4.2 ise benzer durumda CuCl sisteminini belirtmektedir. Denge durumu yapısı için metal iyonu etrafındaki klorların oluşturduğu koordinasyon sayısı, NaCl sisteminde 4-5 arasında, CuCl sistemi için ise 3-4 arasında değişmektedir. Bu değişim, yapının kararlı olmadığını belirtmektedir. Kesikli çizgi ile belirtilen kısmen sönümlü durumda ise bu değerler biraz azalmakla beraber genel davranış değişmemektedir. Metal iyonu yoğunluğunu azalttığımızda ise bu komşuluk sayıları NaCl sistemi için 6 ya doğru, CuCl sistemi için ise 4 civarında sabit kalmakta ve azda olsa yapı daha kararlı olmaktadır.

Şekil 4.3 ve 4.4, YCl₃ ve AlCl₃ sistemlerinde metal iyonu etrafındaki klor iyonlarının oluşturduğu koordinasyon sayısını belirtmektedir. Düz çizgi denge durumunu, kesikli çizgi ise kısmen sönümlü durumu belirtmektedir. Denge durumunda YCl₃ için koordinasyon sayısı 6, AlCl₃ için ise 4 civarındadır. Her iki sistem için de koordinasyon sayısındaki platonun uzunluğu, metal iyonunun birinci komşuluğunda oluşan yapının kararlılığını belirtmektedir. Buna göre AlCl₃ sisteminde oluşan yerel yapı daha kararlı bir yapıdır. Kısmen sönümlü durumda ise her iki sistem için koordinasyon sayıları biraz azalmakta ve yerel yapıdaki kararlılık ta biraz azalmaktadır.

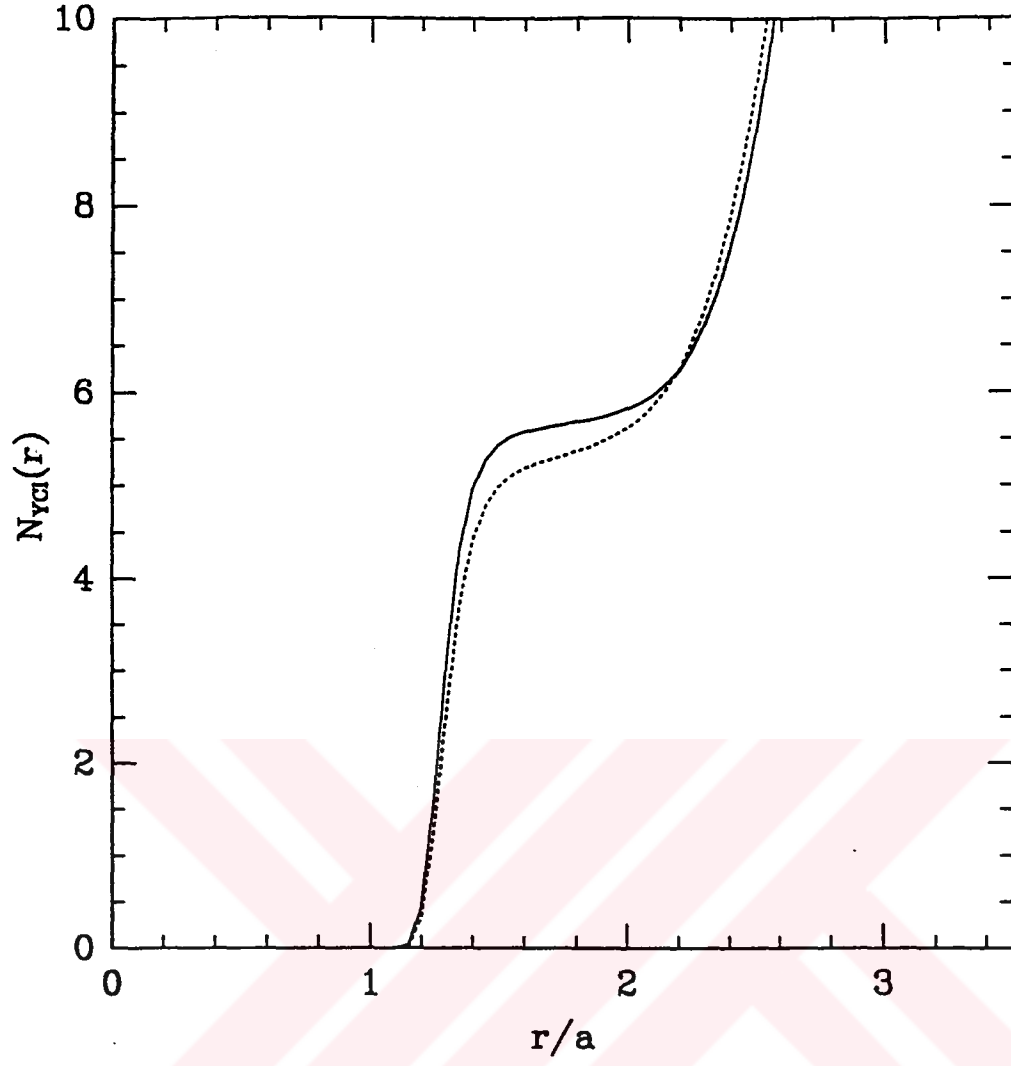
Şekil 4.5 , Şekil 4.1’deki gösterime uygun olarak NaCl sistemi için Na-Cl radyal dağılım



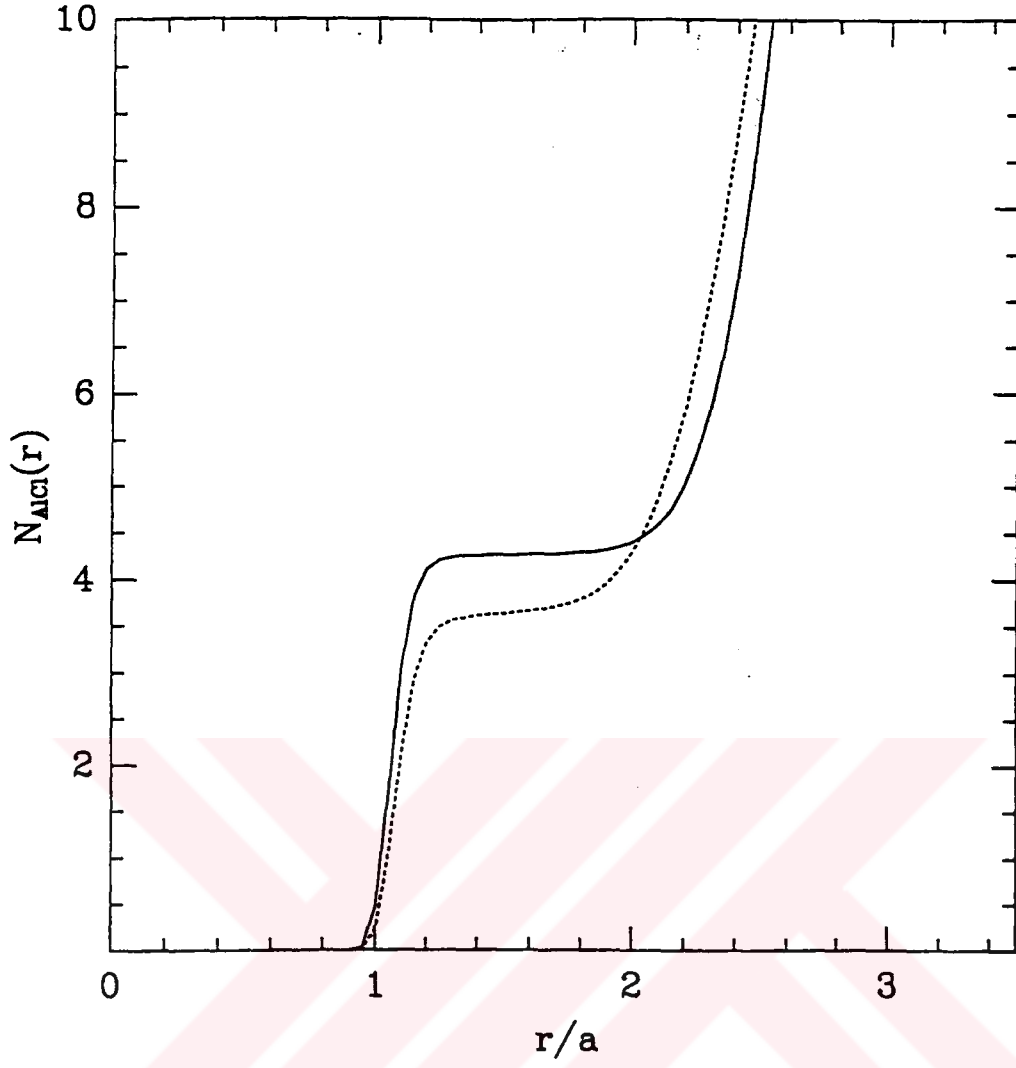
Şekil 4.1 NaCl için koordinasyon sayıları . Düz çizgi, denge durumunu, kesikli çizgi kısmen sönümlü durumu belirtmektedir. Diğer çizgiler ise metal iyonu (Na) sayı yoğunluğunun $n=2,3,4,5$ için $1/n^3$ şeklinde azaltılarak elde edilen durumları belirtmektedir. a ortalama iyonik yarıçaptır.



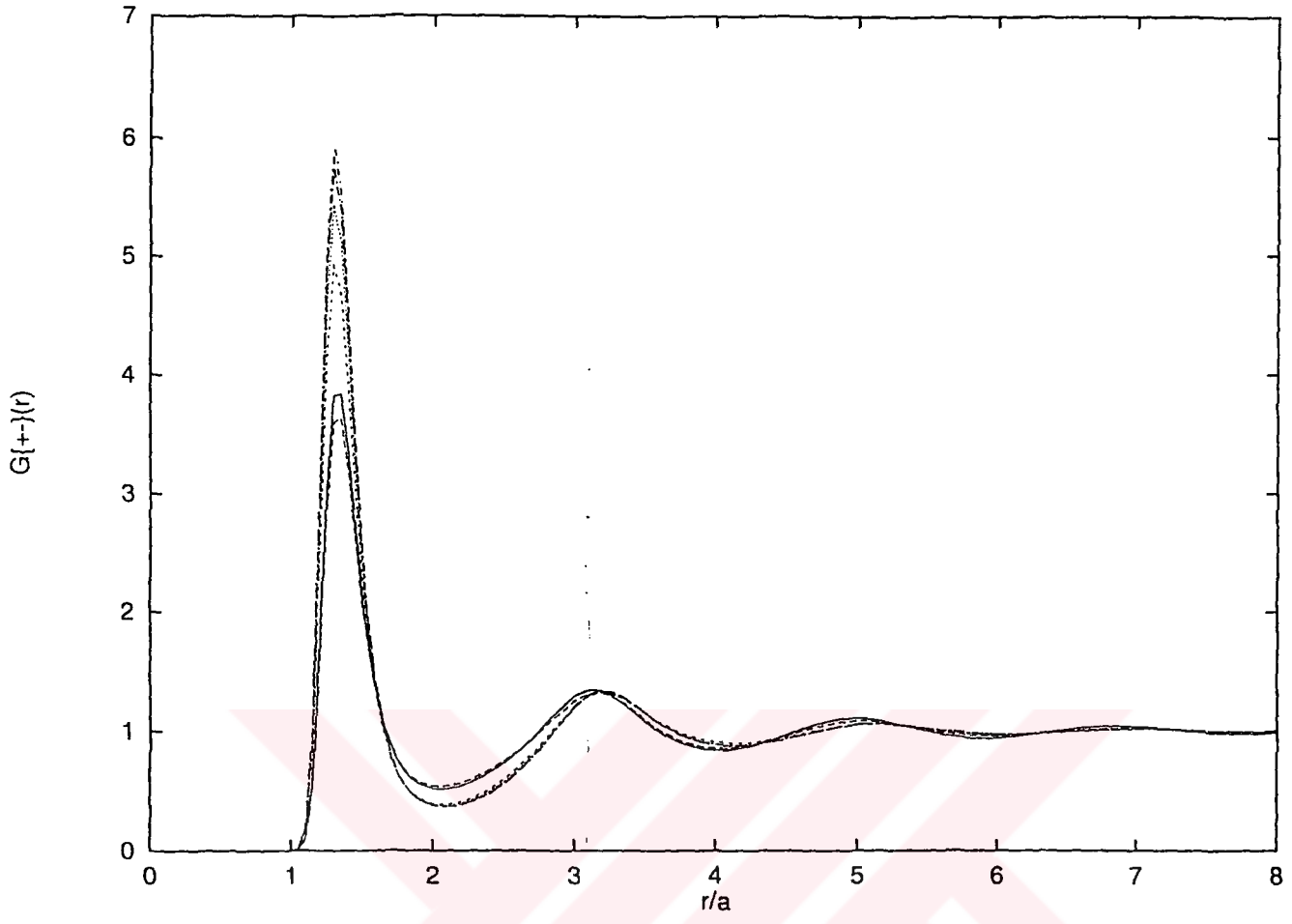
Şekil 4.2 CuCl sistemi için koordinasyon sayıları. Grafikteki çizgiler Şekil 4.1’de açıklandığı gibidir.



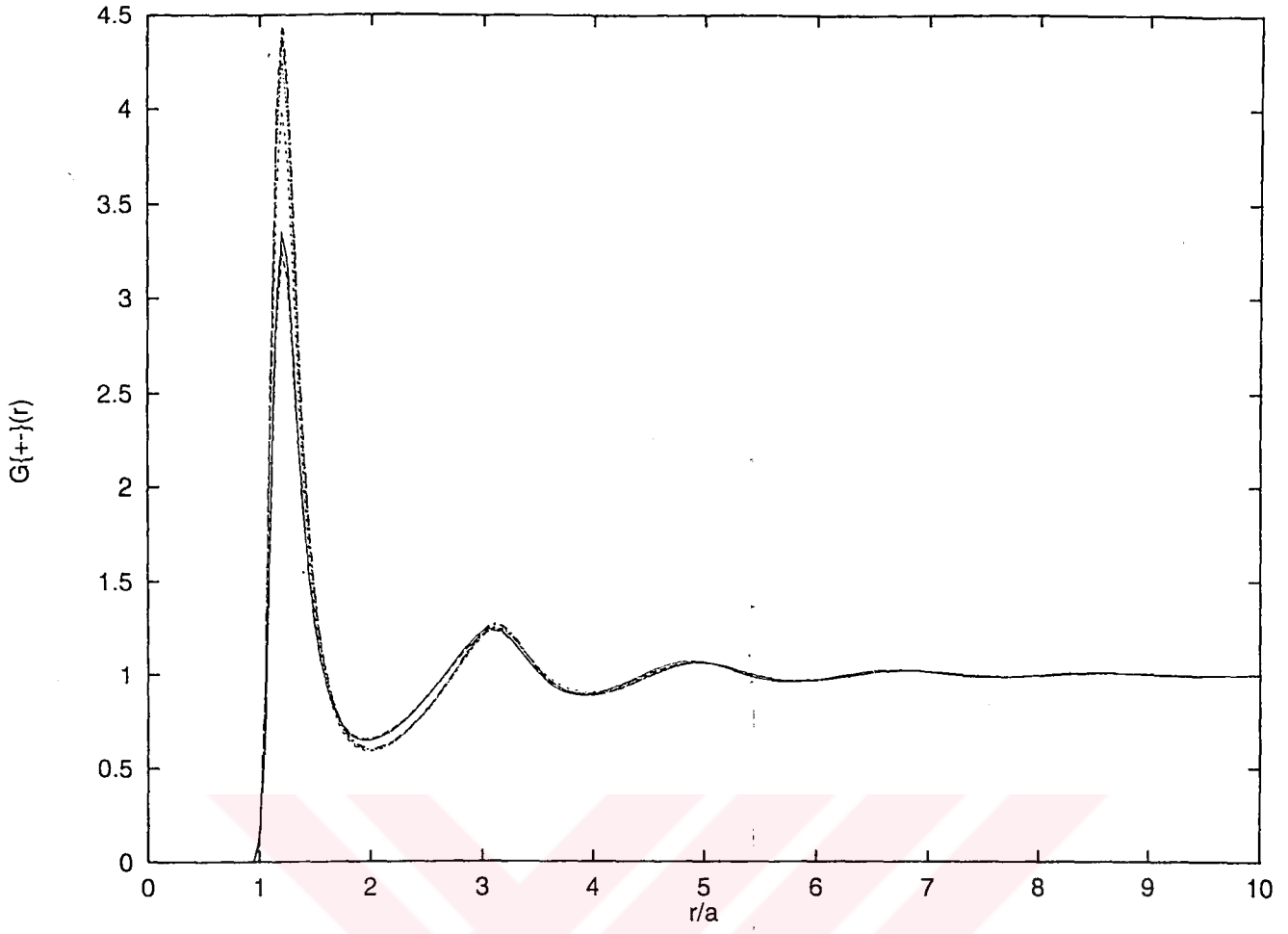
Şekil 4.3 YCl_3 sistemi için koordinasyon sayıları. Düz çizgi, denge durumunu, kesikli çizgi ise kısmen sönümlü durumu göstermektedir.



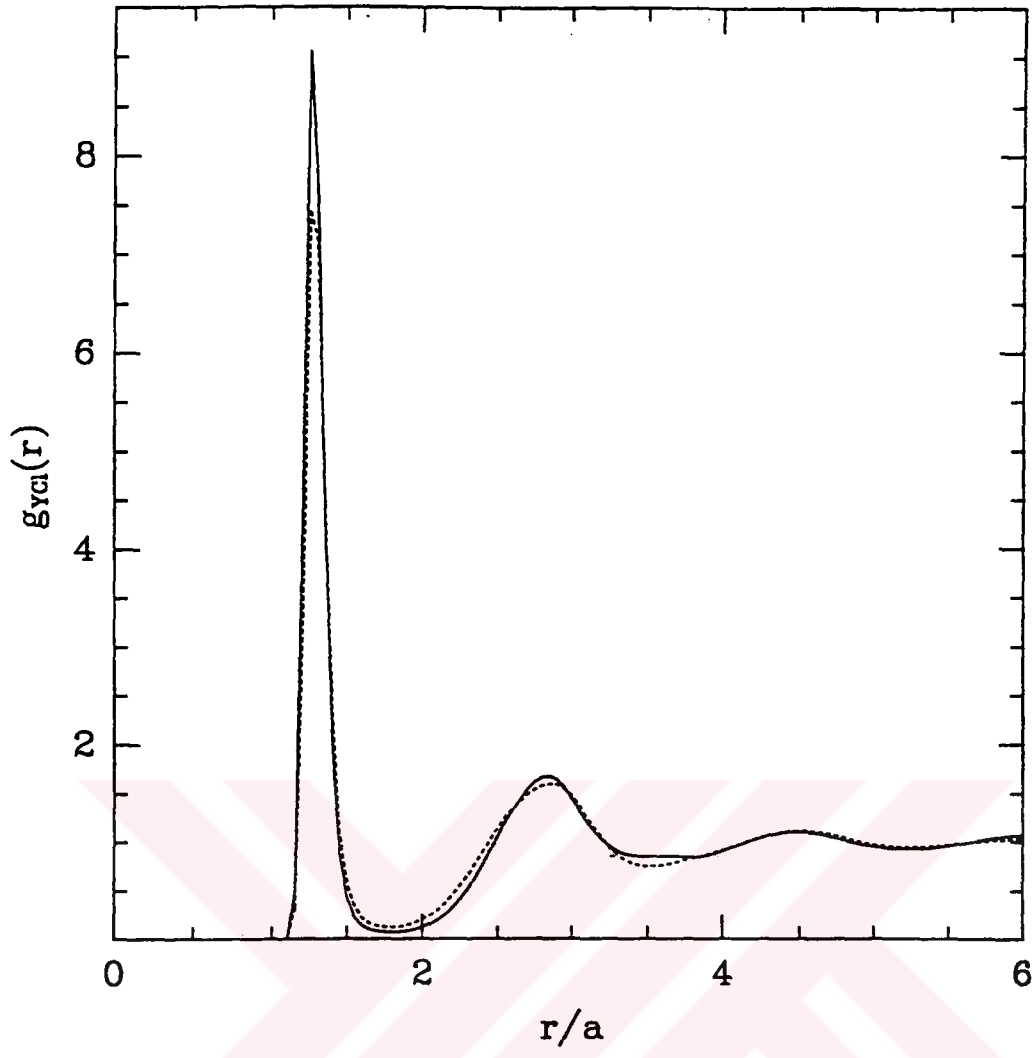
Şekil 4.4 AlCl_3 sistemi için koordinasyon sayıları. Düz çizgi, denge durumunu , kesikli çizgi kısmen sönümlü durumu göstermektedir.



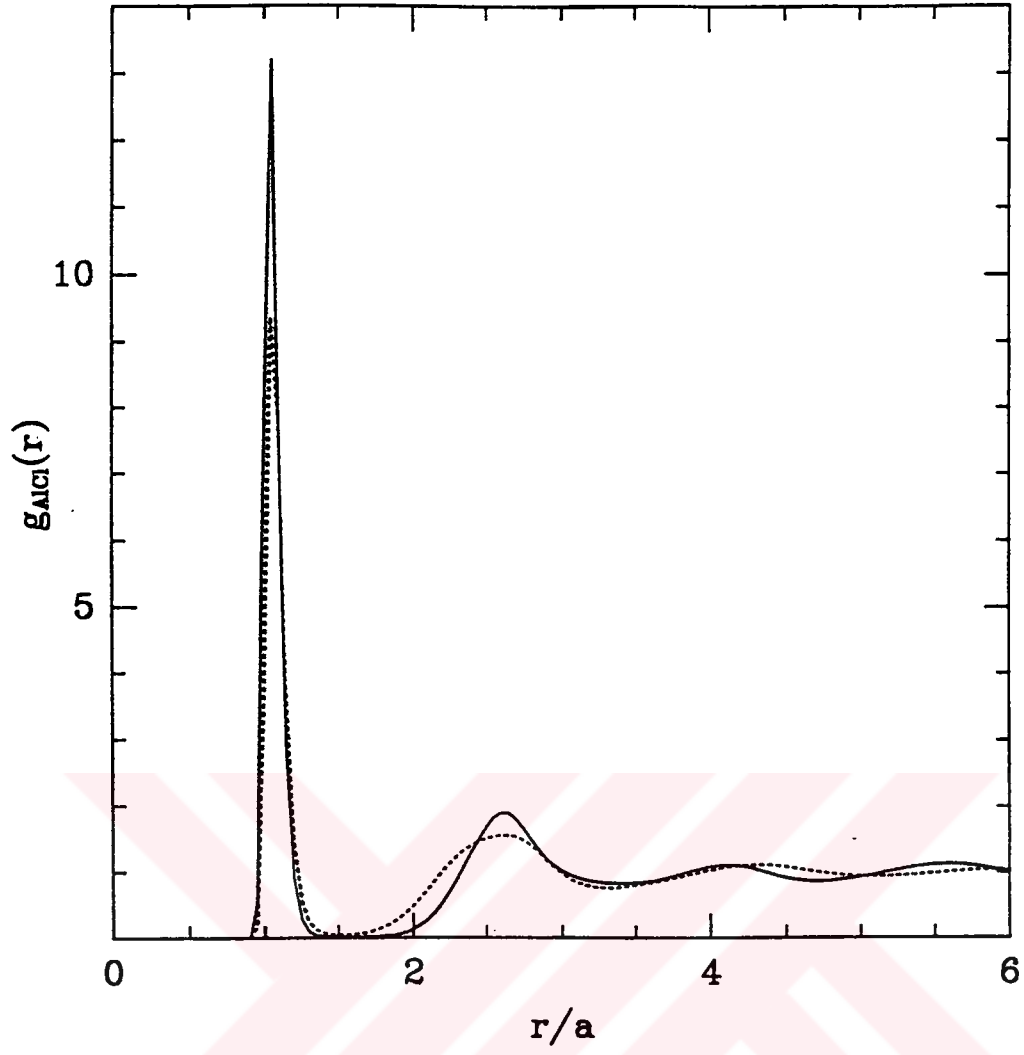
Şekil 4.5 Şekil 4.1'deki gösterime uygun olarak NaCl sistemi için Na-Cl radyal dağılım fonksiyonu.



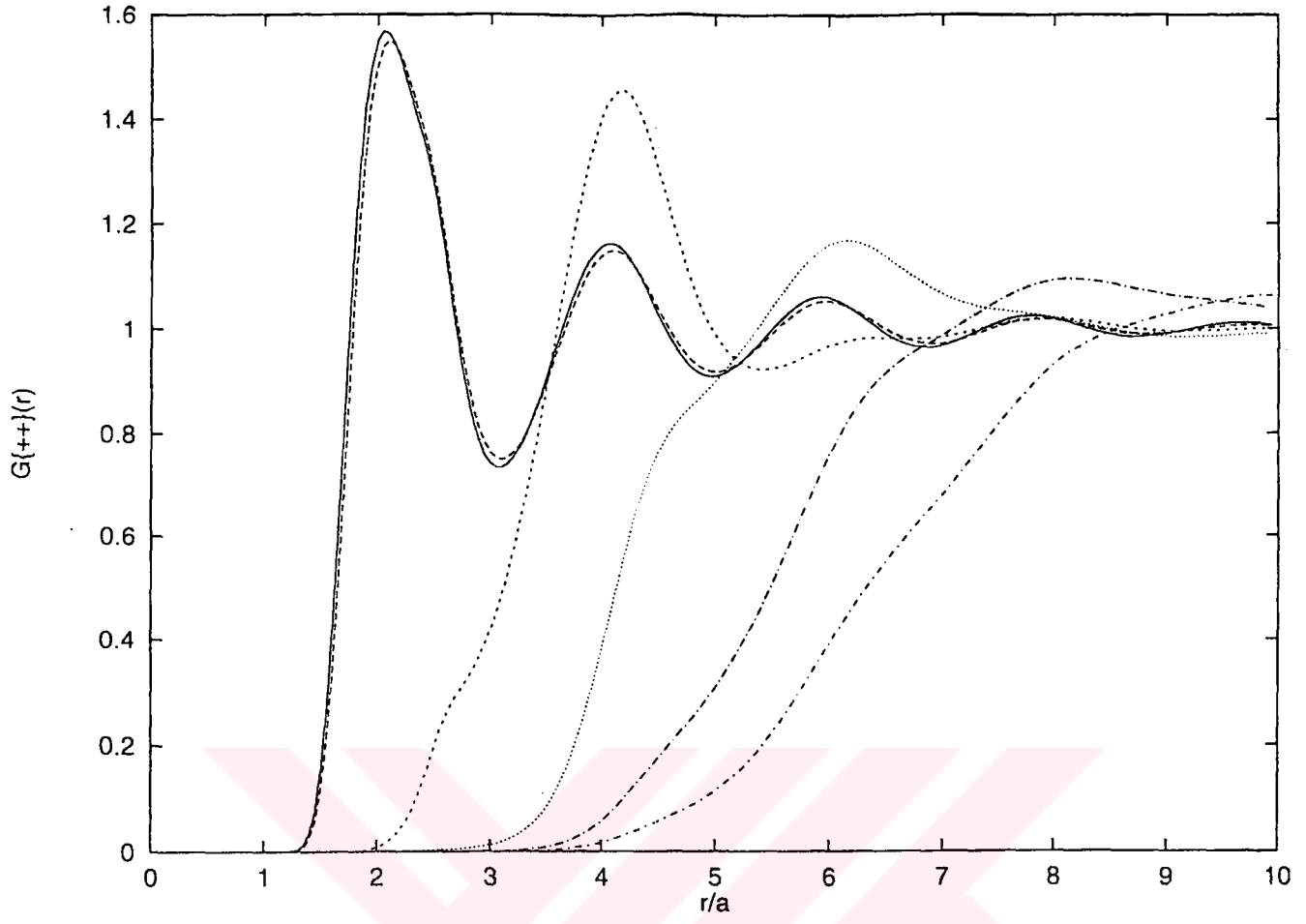
Şekil 4.6 Şekil 4.1' deki gösterime uygun olarak CuCl sistemi için Cu-Cl radyal dağılım fonksiyonları.



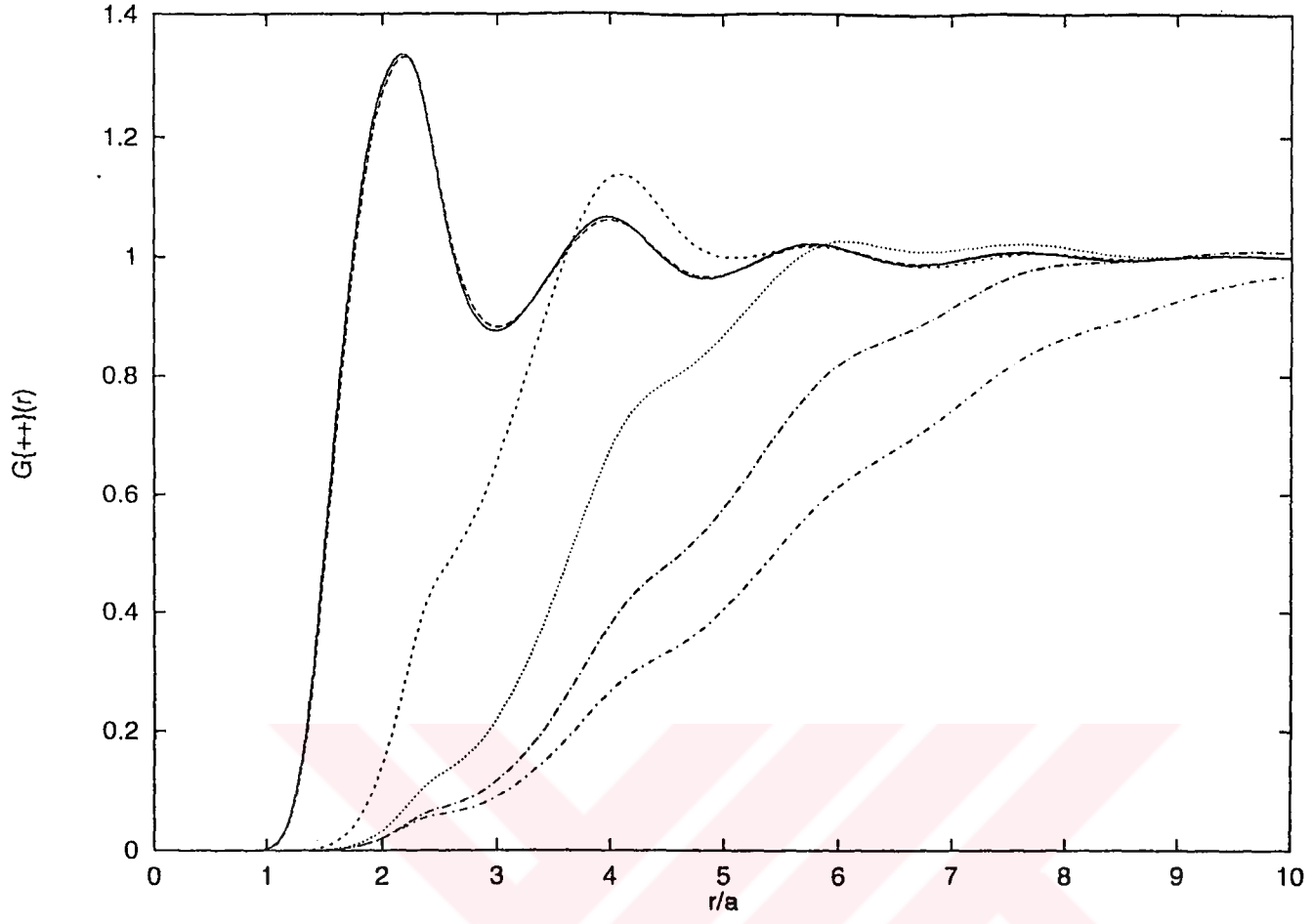
Şekil 4.7 Şekil 4.3' deki gösterime uygun olarak YCl_3 sistemi için Y-Cl radyal dağılım fonksiyonu.



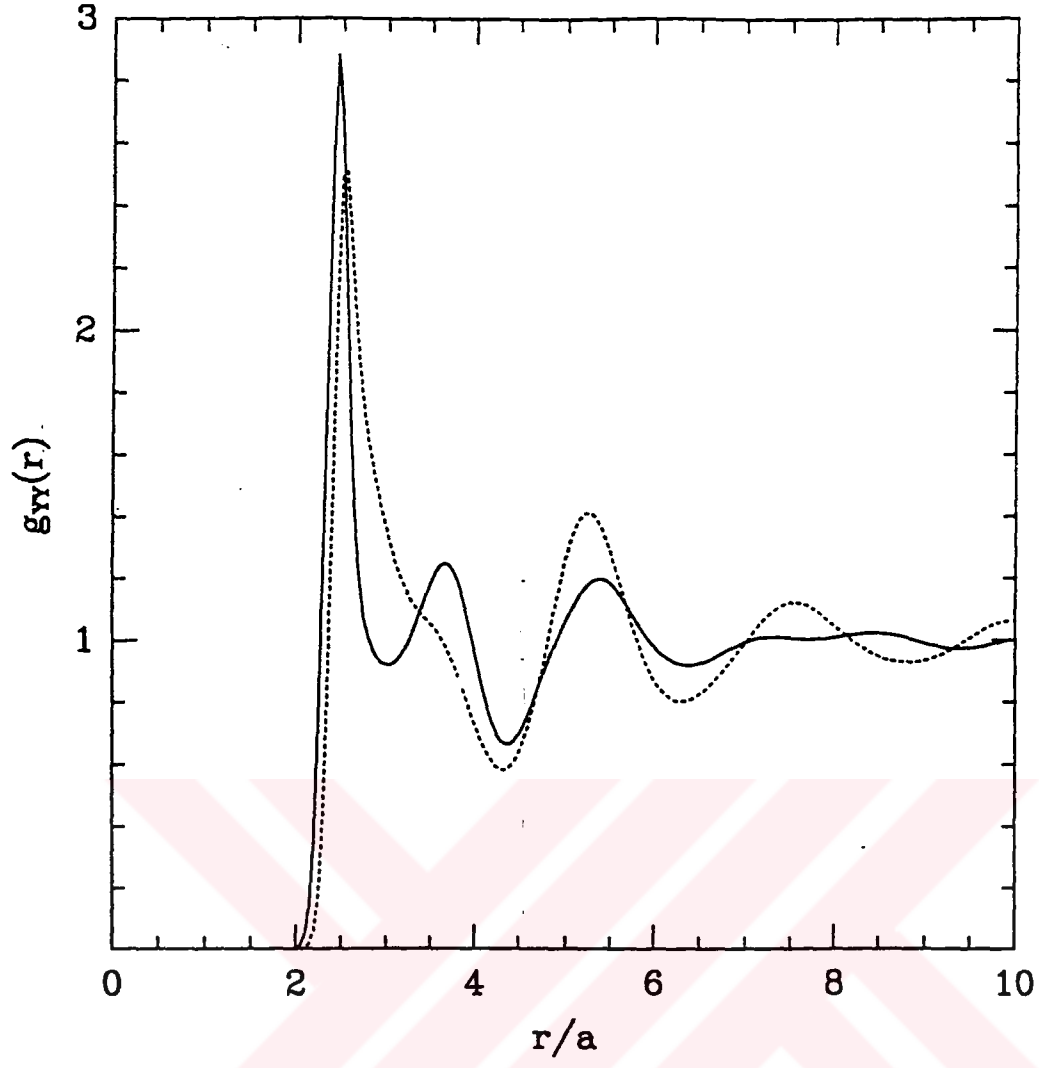
Şekil 4.8 Şekil 4.3'deki gösterime uygun olarak AlCl_3 sistemi için Al-Cl radyal dağılım fonksiyonu.



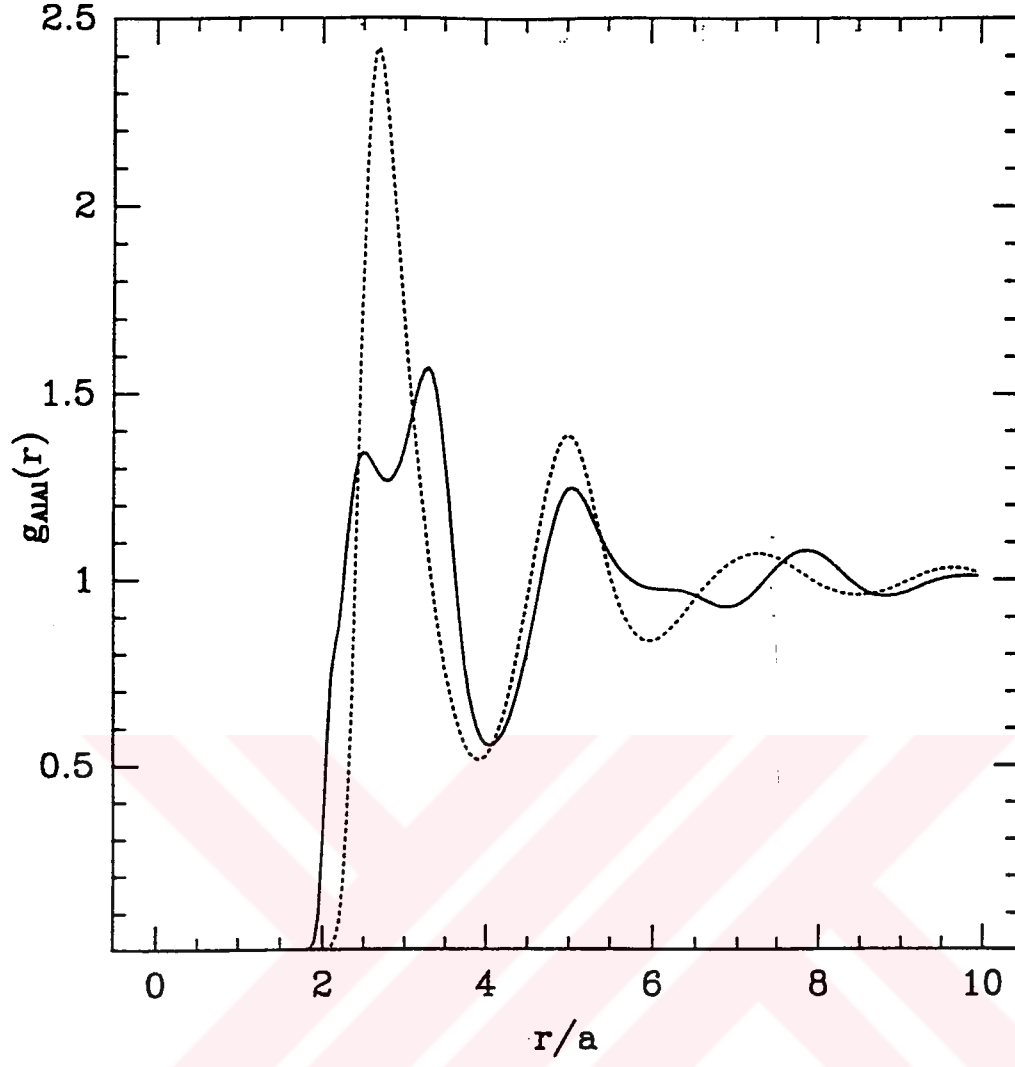
Şekil 4.9 Şekil 4.1'deki gösterime uygun olarak NaCl sisteminde Na-Na radyal dağılım fonksiyonu.



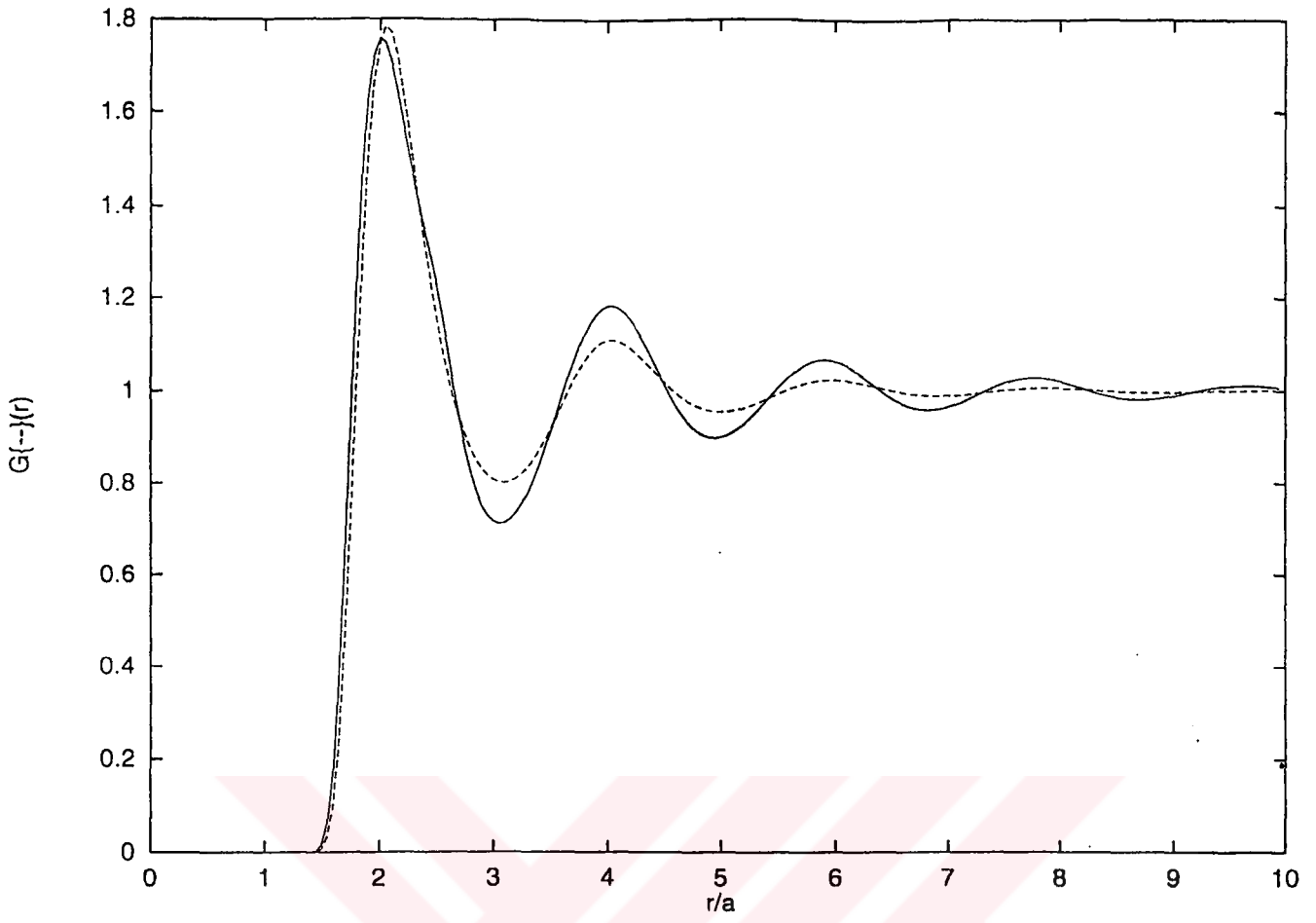
Şekil 4.10 Şekil 4.1'deki gösterime uygun olarak CuCl sisteminde Cu-Cu radyal dağılım fonksiyonu.



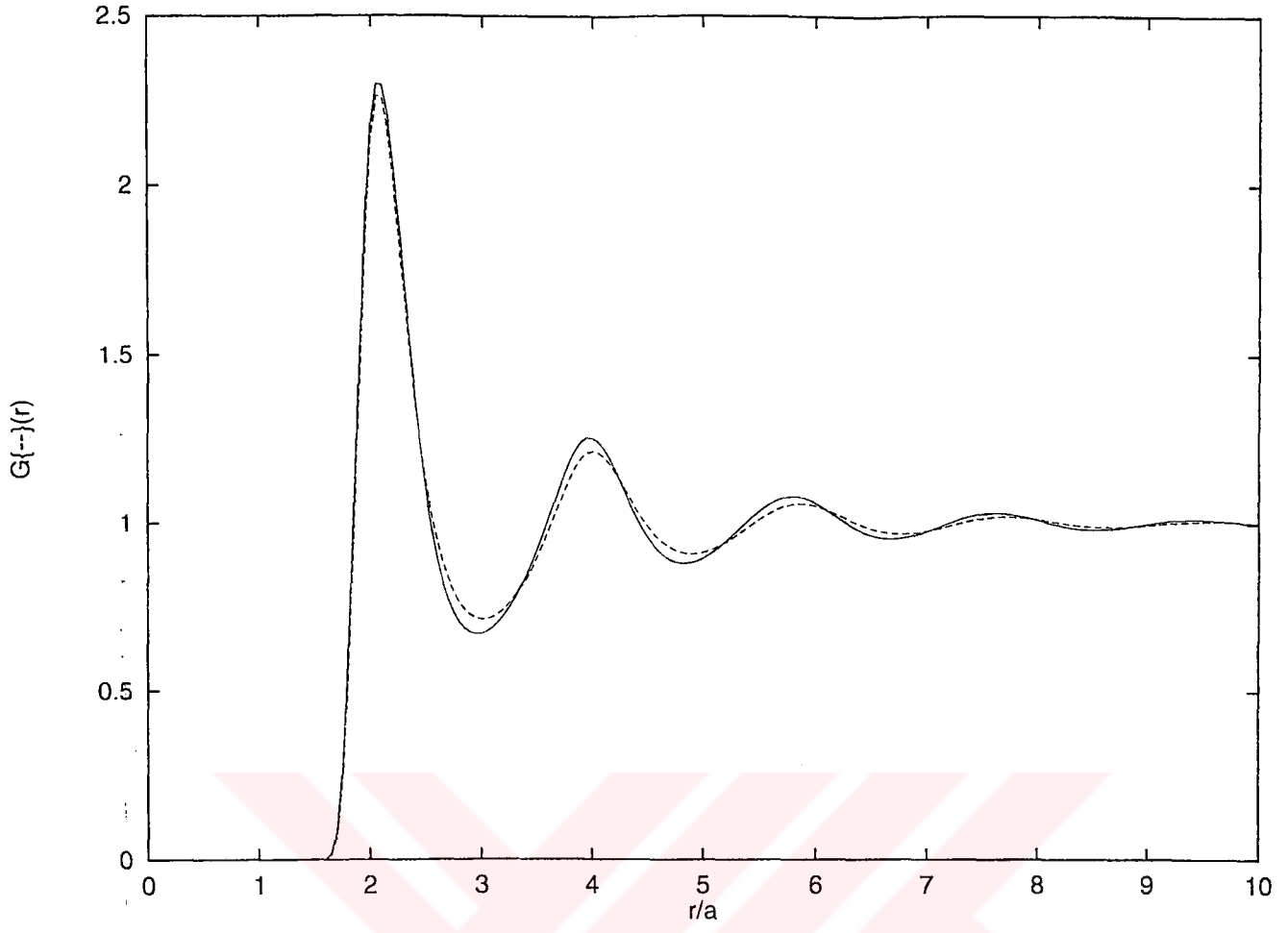
Şekil 4.11 Şekil 4.3'deki gösterime uygun olarak YCl_3 sisteminde Y-Y radyal dağılım fonksiyonu.



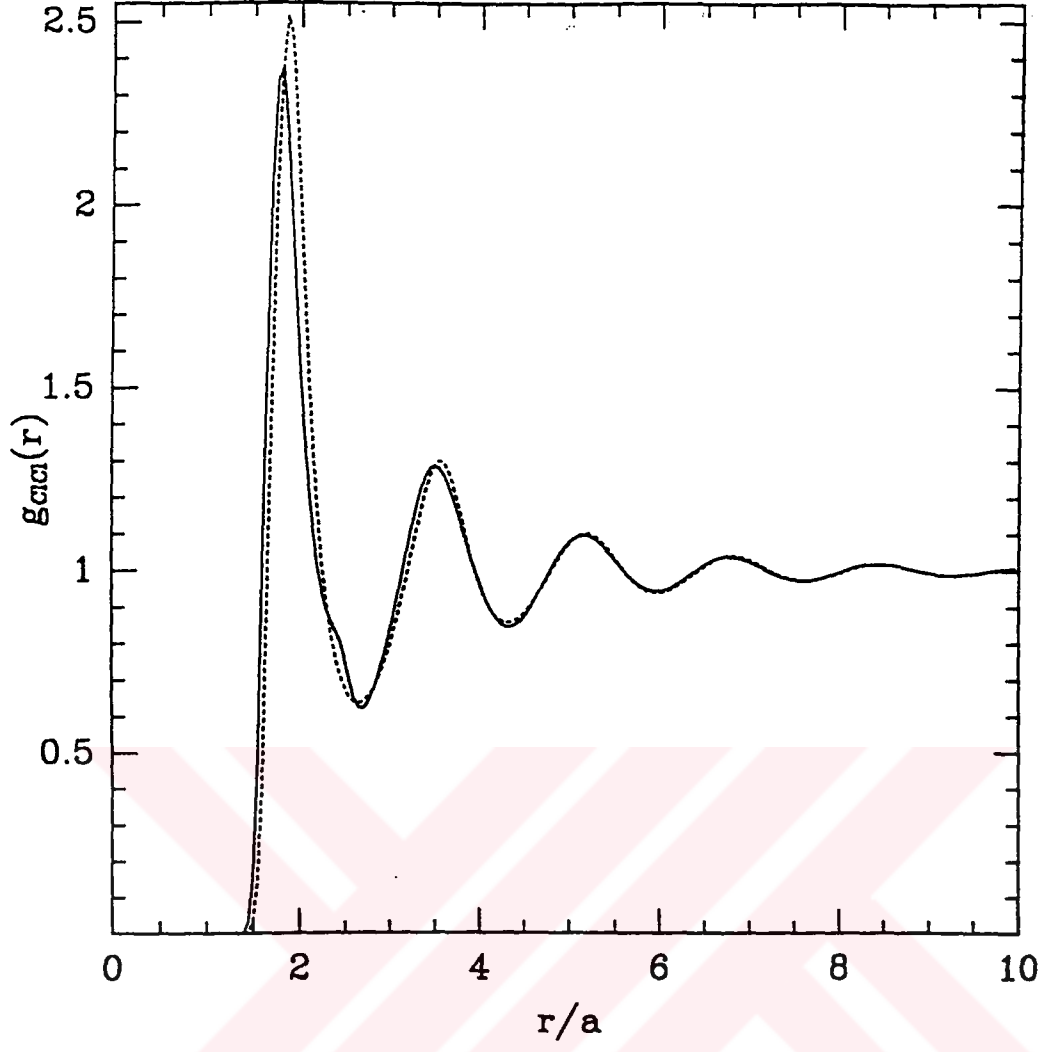
Şekil 4.12 Şekil 4.3'deki gösterime uygun olarak AlCl_3 sisteminde Al-Al radyal dağılım fonksiyonu.



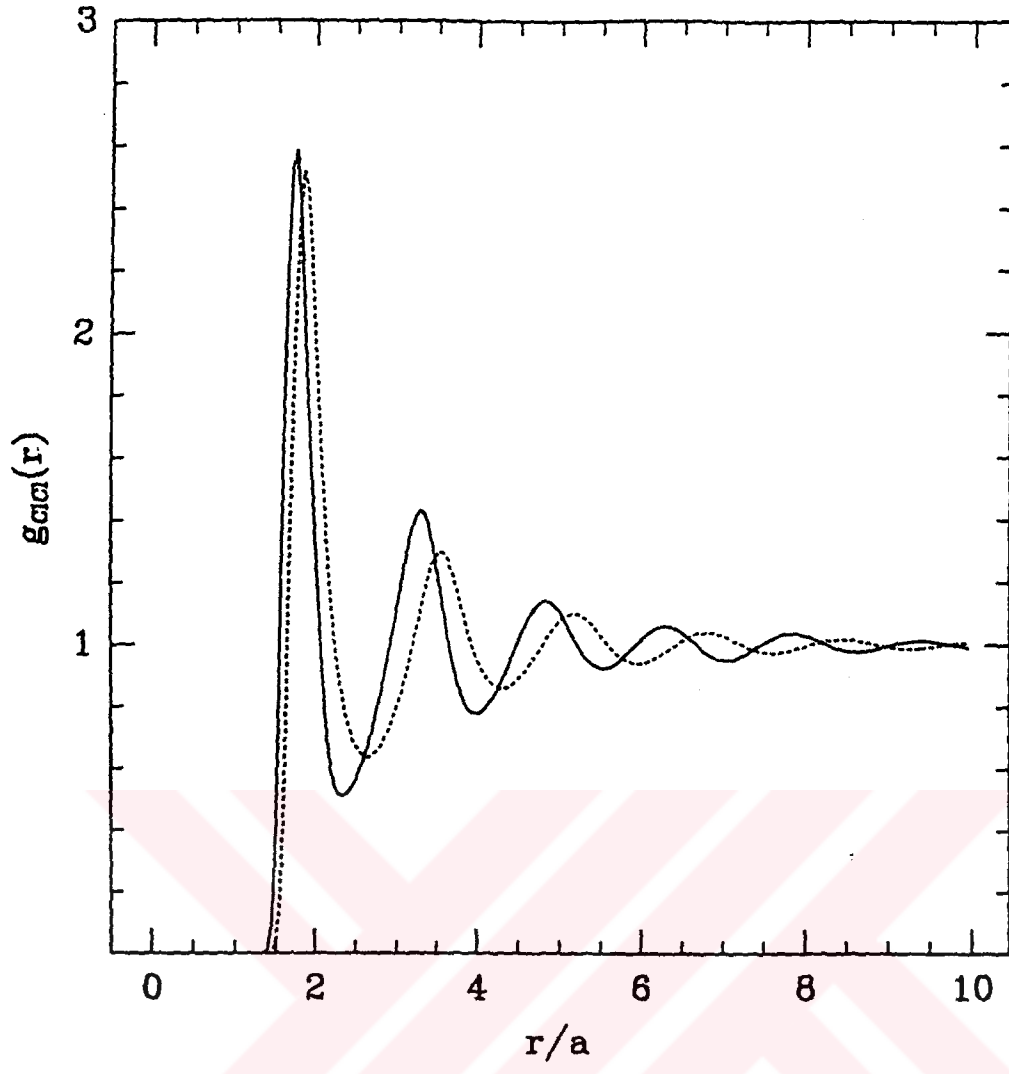
Şekil 4.13 Şekil 4.3'deki gösterime uygun olarak NaCl sisteminde Cl-Cl radyal dağılım fonksiyonu.



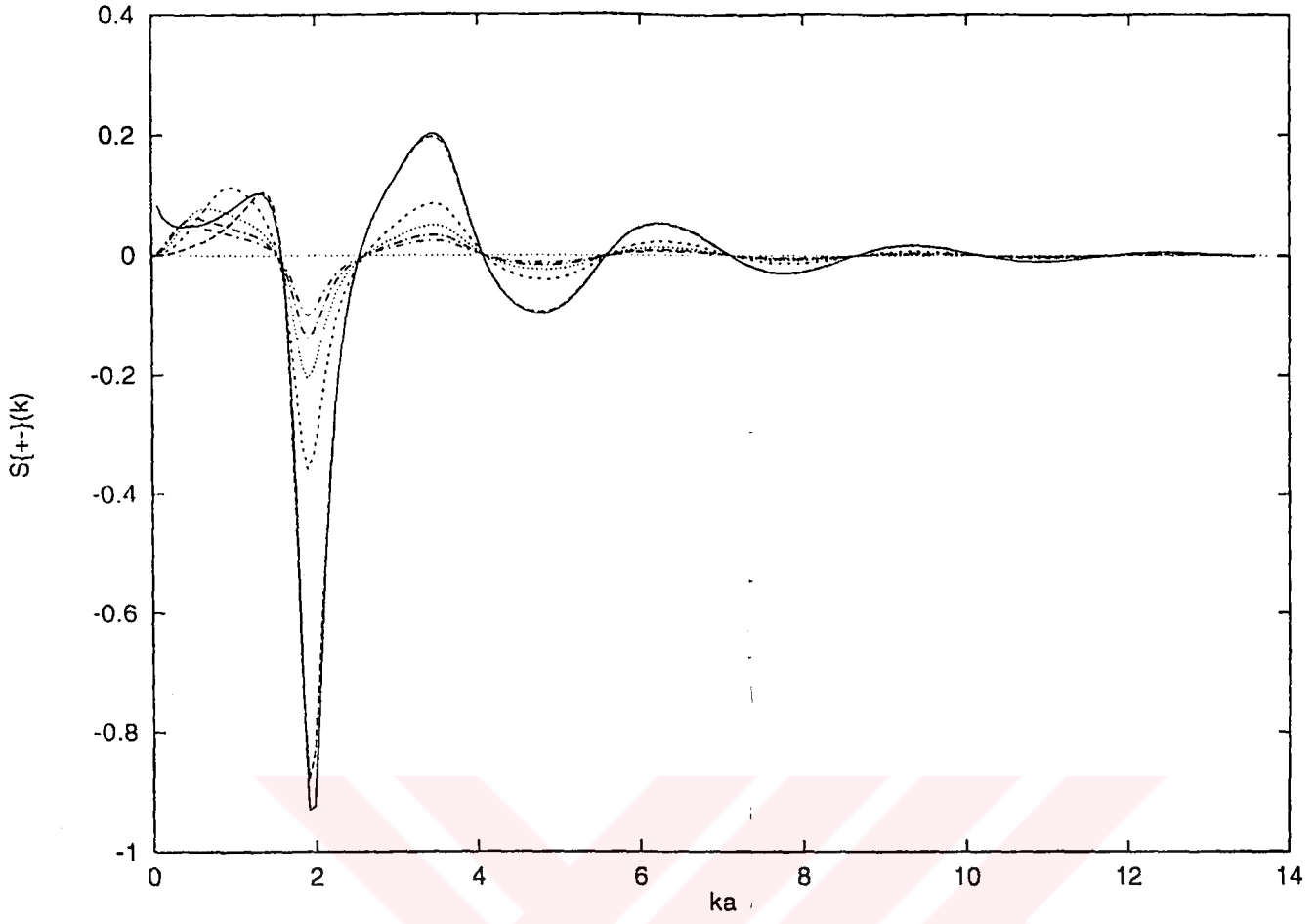
Şekil 4.14 Şekil 4.1'deki gösterime uygun olarak CuCl sisteminde Cl-Cl radyal dağılım fonksiyonu.



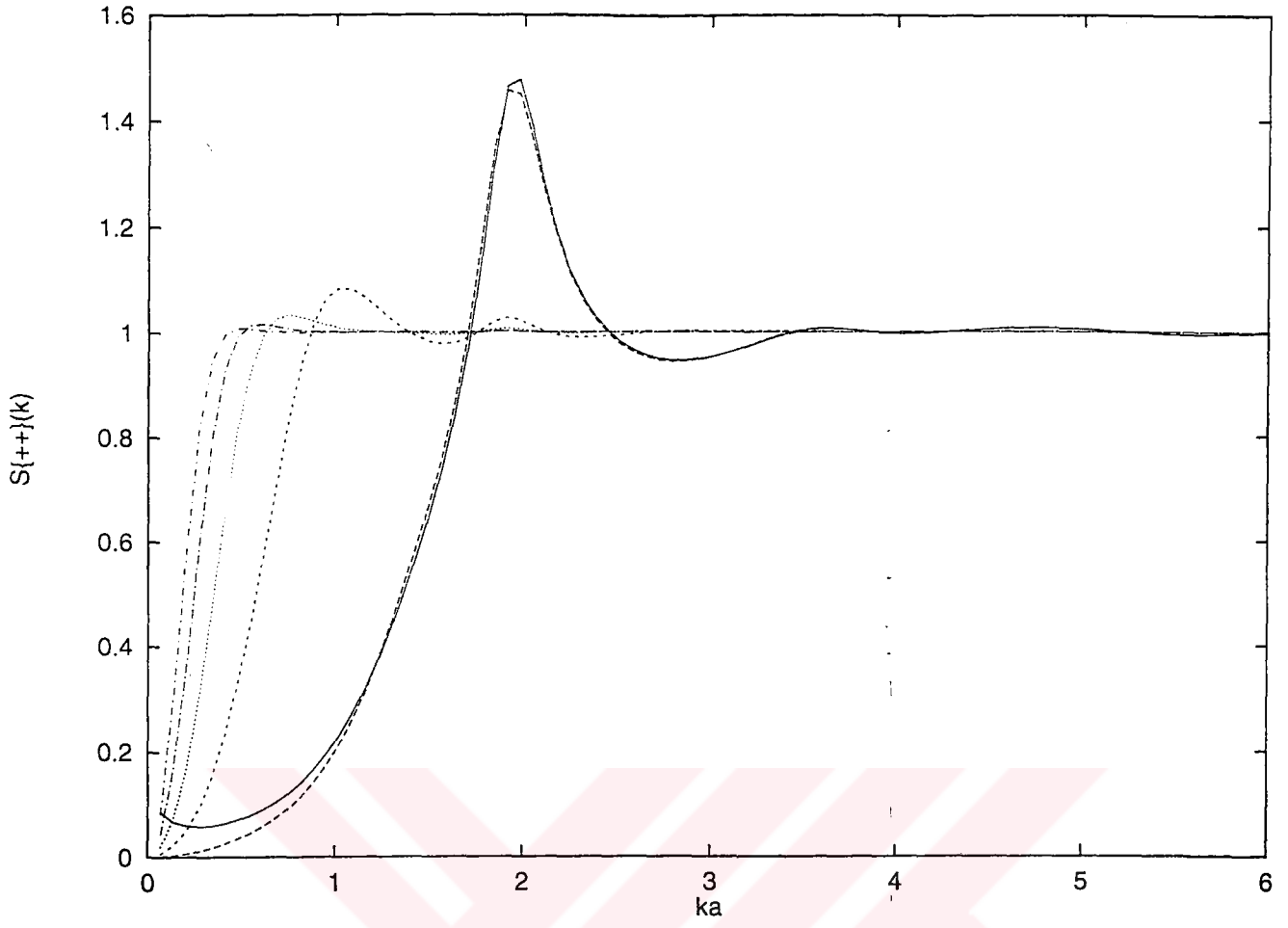
Şekil 4.15 Şekil 4.3'deki gösterime uygun olarak YCl_3 sisteminde Cl-Cl radyal dağılım fonksiyonu.



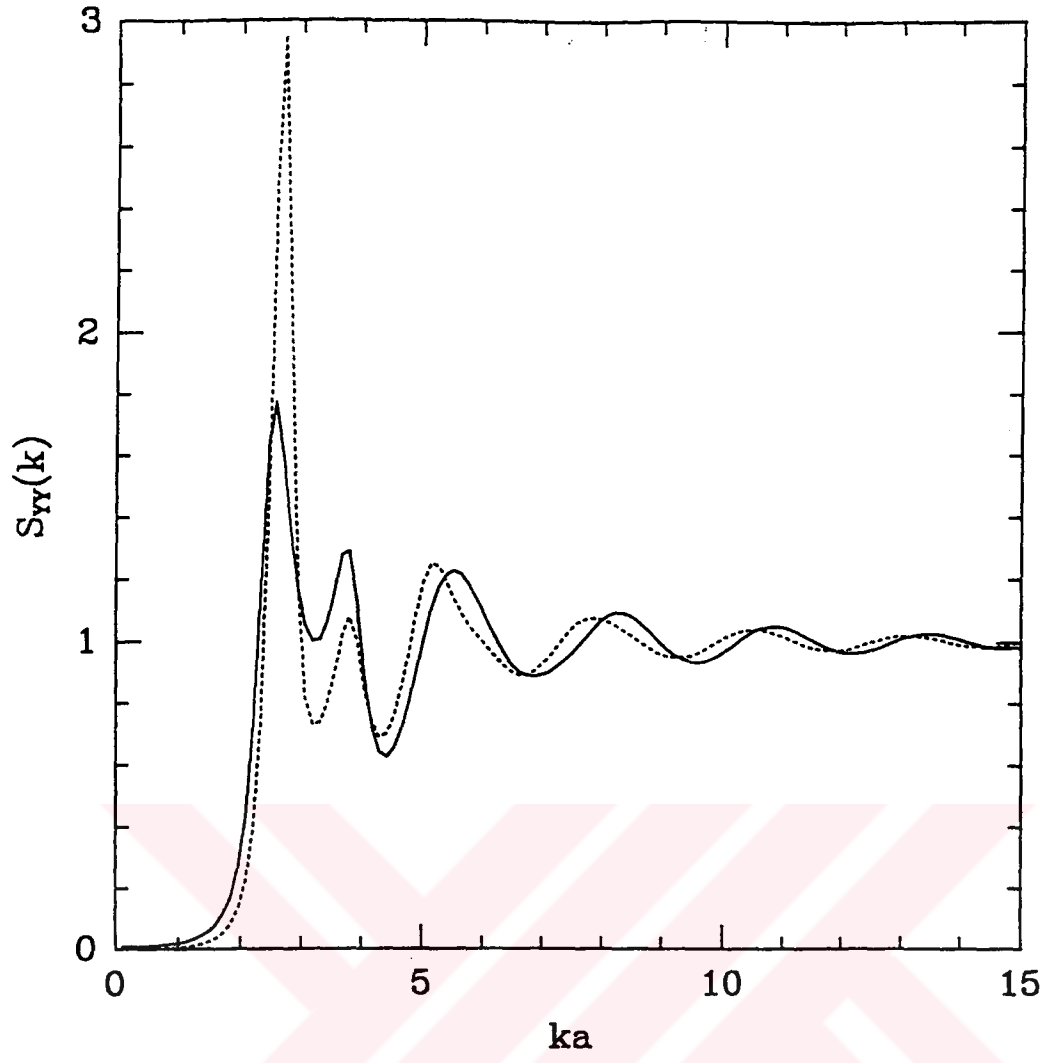
Şekil 4.16 Şekil 4.3'deki gösterime uygun olarak AlCl_3 sisteminde Cl-Cl radyal dağılım fonksiyonu.



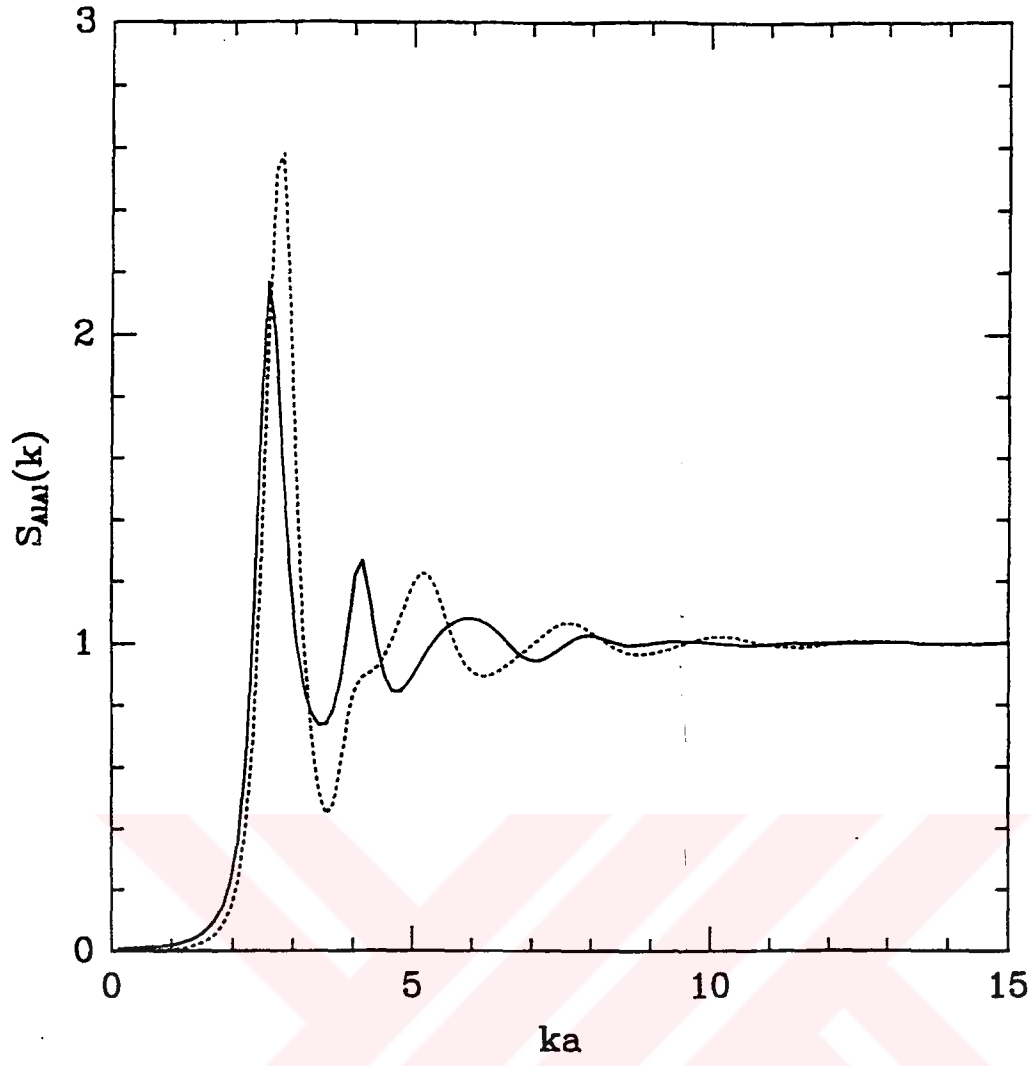
Şekil 4.17 Şekil 4.1'deki gösterime uygun olarak CuCl sisteminde Cu-Cl kısmi yapı faktörü.



Şekil 4.18 Şekil 4.1'deki gösterime uygun olarak CuCl sisteminde Cu-Cu kısmi yapı faktörü.



Şekil 4.19 Şekil 4.3'deki gösterime uygun olarak YCl_3 sisteminde Y-Y kısmi yapı faktörü.



Şekil 4.20 Şekil 4.3'deki gösterime uygun olarak $AlCl_3$ sisteminde Al-Al kısmi yapı faktörü.

fonksiyonunu belirtmektedir. Denge durumu ile karşılaştırıldığında kısmen sönümlü durumda birinci maksimumun yüksekliği biraz azalmakta , birinci minimumun değeri ise biraz artmaktadır. Birinci maksimum ve minimumların konumları ise değişmemektedir. Metal iyonu yoğunluğunu azalttığımızda ise birinci maksimumun giderek arttığını, birinci minimumun ise fazla değişmediğini görmekteyiz. Şekil 4.6'da görüleceği gibi benzer davranış CuCl sisteminde, Cu-Cl radyal dağılım fonksiyonunda da görülmektedir.

Şekil 4.7 ve 4.8, Şekil 4.3'teki gösterime uygun olarak YCl_3 ve $AlCl_3$ sistemleri için metal-klor radyal dağılım fonksiyonlarını göstermektedir. İki sistemde de denge durumu ile kısmen sönümlü durum karşılaştırıldığında , kısmen sönümlü durum için radyal dağılım fonksiyonlarının birinci maksimumları azalmakta, birinci minimumlarının derinliği ise biraz azalmaktadır. Radyal dağılım fonksiyonunda birinci minimumun derinliği, birinci komşuluktaki yapının kararlılığını verir, buna göre kısmen sönümlü yapıda her iki sistem içinde birinci komşuluktaki yapı az da olsa kararsız duruma gelmektedir. $AlCl_3$ sistemi için bu daha da belirgindir.

Şekil 4.9 ve 4.10, Şekil 4.1'deki gösterime uygun olarak NaCl ve CuCl sistemleri için metal-metal radyal dağılım fonksiyonlarını göstermektedir. NaCl sisteminde daha belirgin olmak üzere, her iki sistemde de kısmen sönümlü durum için , birinci maksimumun değeri azalmakta ve metal-metal iyonları bağ uzunluğunu veren birinci maksimumun yeri ise biraz artmaktadır. Birinci minimumun değeri ve konumu da biraz artmaktadır. Metal iyonu yoğunluğunun azaltılması ile her iki şekilde görüleceği gibi, metal-metal radyal dağılım fonksiyonunun birinci maksimum ve minimumlarının değerleri gittikçe azalmakta ve konumları ise gittikçe artmaktadır. Metal iyonu yoğunluğu iyice azaltıldığında, metal-metal radyal dağılım fonksiyonu, sıvı durumu yerine, gaz durumu radyal dağılım fonksiyonu gibi davrandığı görülmektedir.

Şekil 4.11 ve 4.12, Şekil 4.3'deki gösterime uygun olarak YCl_3 ve $AlCl_3$ sistemleri için metal-metal radyal dağılım fonksiyonlarını göstermektedir. Tatlıpınar ve arkadaşlarının yaptığı çalışmalardan bilindiği gibi, denge durumu sıvı yapısında, YCl_3 oktahedral (altılı koordinasyona sahip yapı) ve $AlCl_3$ ise tetrahedral (dörtlü koordinasyona sahip yapı) yapıya sahiptirler. Kısmen sönümlü durumda bu moleküler yapılar özellikle $AlCl_3$ sistemi için tamamen yok olduğundan, metal-metal radyal dağılım fonksiyonları denge durumu ile karşılaştırıldığında tamamen farklı oldukları görülmektedir.

Şekil 4.13 ve 4.14, Şekil 4.1'deki gösterime uygun olarak NaCl ve CuCl sistemleri için, klor-klor radyal dağılım fonksiyonlarını göstermektedir. Kısmen sönümlü durum için NaCl sisteminde birinci maksimum biraz artmakta , CuCl sisteminde ise biraz azalmaktadır. Bu Na ve Cu iyonlarının büyüklük farkından kaynaklanmaktadır. Birinci minimumun değeri ise her iki sistem için artmaktadır. Klor bileşeni kısmen sönümlü durumda sabit bir kafes yapısı oluşturduğu için, metal iyonunun yoğunluğunun azaltılması , klor-klor radyal dağılım fonksiyonunu değiştirmemektedir.

Şekil 4.15 ve 4.16, Şekil 4.3'deki gösterime uygun olarak YCl₃ ve AlCl₃ sistemlerinde klor-klor radyal dağılım fonksiyonlarını göstermektedir. Daha öncede belirtildiği gibi bu iki sistemin denge durumu sıvı yapısı birbirinden farklı olduğu için, kısmen sönümlü durumda da iki sistemin davranışı farklıdır. Fakat özellikle AlCl₃ için kısmen sönümlü durumda birinci maksimumun konumu belirgin şekilde artmıştır, bu ise kısmen sönümlü durum için klor bileşeninin oluşturduğu yapıda klor-klor bağ uzunluğunun , denge durumu yapısındaki klor-klor bağ uzunluğundan daha büyük olduğunu belirtmektedir. Böylece kısmen sönümlü durumda klorlar arasındaki mesafe arttığı için metal iyonları daha rahat hareket edebileceklerdir böylece metal bileşeninin mobilitesi artacaktır.

Şekil 4.17 ve 4.18, Şekil 4.1'deki gösterime bağlı olarak CuCl sisteminde bakır-klor kısmi yapı faktörü ve bakır-bakır kısmi yapı faktörünü göstermektedir. Bakır-klor kısmi yapı faktöründe kısmen sönümlü durum için birinci çukurun derinliği azalmaktadır, bu ise kısmen sönümlü durumda oluşan yerel yapının kararlılığının azaldığını belirtmektedir. Metal iyonunun sayısal yoğunluğunun azaltılması ile bu çukurun giderek azalması yapının giderek zayıflamasının göstergesidir. Bakır-bakır kısmi yapı faktöründe de yine birinci maksimumun değeri kısmen sönümlü durumda azalmaktadır. Metal iyonu sayı yoğunluğu azaltıldığında, yapı faktörünün değeri azalarak sıvı yapısından gaz yapısına doğru değişme göstermektedir.

Şekil 4.19 ve 4.20 , Şekil 4.3'deki gösterime bağlı olarak YCl₃ ve AlCl₃ sistemleri için metal-metal kısmi yapı faktörlerini belirtmektedir. Bu iki sistemin denge durumu yapıları moleküler yapıya yakın olduğu için, denge durumunda metal iyonlarının mobilitesi düşüktür. Kısmen sönümlü durumda ise bu moleküler yapı bozulduğu için metal iyonları daha mobildir (hareketlidir). Bu nedenle kısmen sönümlü durum için her iki sistemde de metal-metal kısmi yapı faktörünün birinci maksimumunun değeri artmaktadır.

4.2 Tartışma

Buraya kadar anlatılanların ışığında , yukarıda ele alınan iyonik sıvı sistemlerin, kısmen sönümlü durumları ile dengedeki durumları karşılaştırıldığında aşağıdaki genel farklar ortaya çıkmaktadır. Kısmen sönümlü durumda NaCl ve CuCl sistemlerinde klor bileşeninin sönümü metal iyonunun mobilitesini, dolayısı ile iyonik iletkenliğini artırmaktadır. Kısmen sönümlü durumda klor bileşeninin oluşturduğu yapının arasındaki boşluklar dahada büyüktür, bu ise metal bileşeninin bu boşluklarda daha rahat hareket etmesine olanak sağlamaktadır. YCl_3 ve $AlCl_3$ sistemleri denge durumunda altılı ve dörtlü koordinasyona sahiptirler, kısmen sönümlü durumda bu koordinasyon sayıları biraz azalmakta ve yerel yapının kararlılığı da azalmaktadır. Yerel yapının kararlılığının azalması metal iyonunun mobilitesinin artmasına neden olmaktadır.

Bütün bunların doğrultusunda kısmen sönümlü iyonik sıvıların yapısal davranışları, kuramsal olarak çalışılması zor olan camı yapılardan , üstün iyonik camı yapılar için bir model olarak kullanılabilir. Bunun yanında yukarıda verilen sistemlerden özellikle NaCl ve CuCl sistemleri için denge durumunda metal ve klor bileşenlerinin iyonik iletkenlikleri bilinmektedir, fakat kısmen sönümlü durumda özellikle etkin olan metal iyonunun iyonik iletkenliği kuramsal olarak henüz çalışılmamıştır. Bu nedenle bu tez bu tür bir hesaplama da faydalı olacaktır.

KAYNAKLAR

- Abernethy, G.M. and Gillan, M.J., (1980), *Molecular Physics*, 39, 839-841.
- Akdeniz, Z. and Tosi, M.P., (1992), *Proc. R. Soc. A*, 437, 85-89.
- Dixon, M. and Gillan, M.J., (1980), *Phil. Mag. B* 43, 1099-1103.
- Einsenberg, S.F. Dupuy, J., Chieux, P. and Knoll, W. (1982), *Phil. Mag. A*, 46, 195-197.
- Fanti, L.A., Glandt, E.D., and Madden W.G. (1990), *J. Chem. Phys.* 93, 5945-5960.
- Given, J.A. and Stell, G., (1991), *J. Chem. Phys.*, 94, 3060-3064.
- Hansen, J.P. and McDonald, I.R. (1976) "Theory of Simple Liquids", Academic Press, 556, London.
- Heyes, D.M., (1997), "The Liquid State: Application of Molecular Simulations", John Wiley and Sons, 240, New York.
- Lomba, E., Given, J.A. and Stell, G. (1993), *Physical review E*. 48, 223-225.
- Madden, G.W. and Glandt, E.D. (1988), *Journal of Statistical Physics*, 51, 537-542.
- Mamantov, G. and Braunstein, J. (1981), "Advances in Molten Salt Chemistry " Vol.4, Plenum, New York.
- March, N.H. and Tosi, M.P. (1984), "Coulomb Liquids", Academic Press, 280, New York.
- Page, D.I. and Mika, K. (1971), *J. Phys. C: Solid State Phys.* 4, 3034-3038.
- Price, D.L., Saboungi, M.L., Scamehorn, C. and Tosi, M.P., (1991), *Europhys. Letter*, 15, 283-287.
- Tatlıpınar, H., Akdeniz, Z., Pastore, G. and Tosi, M.P., (1992), *J. Phys.: Condens. Matter*, 4, 8933-8944.
- Tatlıpınar, H., Pastore, G., and Tosi, M.P., (1993), *Phil. Mag. Letter*, 68, 357-362.
- Tosi, M.P., Pastore, G., Saboungi, M-L. and Price, D.L., (1991), *Phys. Scr. T.*, 39, 367-372.

ÖZGEÇMİŞ

Doğum tarihi 08.02.1973

Doğum yeri Afyon-Şuhut

Lise 1987-1990 Afyon Lisesi

Lisans 1990-1996 Yıldız Teknik Üniversitesi
Fen-Edebiyat Fakültesi
Fizik Bölümü

Yüksek Lisans 1997-2000 Yıldız Teknik Üniversitesi
Fen Bilimleri Enstitüsü
Fizik Anabilim Dalı

