

T.C.

MUĞLA SITKI KOÇMAN ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

KİMYA ANABİLİM DALI

$\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ MANYETİK MALZEME SENTEZİ,
ADSORPSİYON VE ELEKTROOKSİDASYON
YÖNTEMİYLE ATIK SULARDAN ORGANİK VE
İNORGANİK MADDELERİN GİDERİMİ

DOKTORA TEZİ

HUSEYN OSMAN

MART 2025

MUĞLA

HUSEYN OSMAN

KİMYA ANABİLİM DALI

DOKTORA TEZİ

MUĞLA 2025

T.C.
MUĞLA SITKI KOÇMAN ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

KİMYA ANABİLİM DALI

**$\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ MANYETİK MALZEME SENTEZİ,
ADSORPSİYON VE ELEKTROOKSİDASYON
YÖNTEMİYLE ATIK SULARDAN ORGANİK VE
İNORGANİK MADDELERİN GİDERİMİ**

DOKTORA TEZİ

HUSEYN OSMAN

MART 2025
MUĞLA

MUĞLA SITKI KOÇMAN ÜNİVERSİTESİ

Fen Bilimleri Enstitüsü

TEZ ONAYI

HUSEYN OSMAN tarafından hazırlanan **Fe₃O₄/SiO₂/PAM manyetik malzeme sentezi, adsorpsiyon ve elektrooksidasyon yöntemiyle atık sulardan organik ve inorganik maddelerin giderimi** başlıklı tezinin, 19/03/2025 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından Kimya Anabilim Dalı'nda doktora derecesi için gerekli şartları sağladığı oybirliği ile kabul edilmiştir.

TEZ SINAV JURİSİ

Prof.Dr. Hamza Korkmaz ALPOĞUZ (Jüri Başkanı)

İmza:

Kimya Anabilim Dalı,
Pamukkale Üniversitesi, Denizli

Prof.Dr. Mehmet UĞURLU (Danışman)

İmza:

Kimya Anabilim Dalı,
Muğla Sıtkı Koçman Üniversitesi, Muğla

Doç.Dr. Ali İmran VAİZOĞULLAR (Üye)

İmza:

Tıbbi Hizmetler ve Teknikler Bölümü,
Muğla Sıtkı Koçman Üniversitesi, Muğla

Doç. Dr. Ahmet KAYA (Üye)

İmza:

Kimya Anabilim Dalı,
Pamukkale Üniversitesi, Denizli

Doç. Dr. Oğuz AKPOLAT (Üye)

İmza:

Kimya Anabilim Dalı,
Muğla Sıtkı Koçman Üniversitesi, Muğla

ANA BİLİM DALI BAŞKANLIĞI ONAYI

Prof. Dr. Mehmet UĞURLU

İmza:

Kimya Ana Bilim Dalı Başkanı,
Muğla Sıtkı Koçman Üniversitesi, Muğla

Prof.Dr. Muhammet Hamdi KARAOĞLU

İmza:

Fiziko Kimya Anabilim Dalı,
Muğla Sıtkı Koçman Üniversitesi, Muğla

Savunma Tarihi: 19/03/2025

Tez alıřmalarım sırasında elde ettiėim ve sunduėum tm sonu, dokman, bilgi ve belgelerin tarafımdan bizzat ve bu tez alıřması kapsamında elde edildiėini; akademik ve bilimsel etik kurallarına uygun olduėunu beyan ederim. Ayrıca, akademik ve bilimsel etik kuralları gereėi bu tez alıřması sırasında elde edilmemiř bařkalarına ait tm orijinal bilgi ve sonulara atıf yapıldıėını da beyan ederim.

Huseyn OSMAN

19/03/2025

(İmza)

ÖZET

Fe₃O₄/SiO₂/PAM MANYETİK MALZEME SENTEZİ, ADSORPSİYON VE ELEKTROOKSİDASYON YÖNTEMİYLE ATIK SULARDAN ORGANİK VE İNORGANİK MADDELERİN GİDERİMİ

Huseyn OSMAN

Doktora Tezi

Fen Bilimleri Enstitüsü

Kimya Anabilim Dalı

Danışman: Prof. Dr. Mehmet UĞURLU

Mart 2025, 118 sayfa

Çevre kirleticileri, insan sağlığı ve çevre üzerindeki zararlı etkileri nedeniyle ciddi tehdit oluşturmaktadır. Bu nedenle, uygun bir arıtma yöntemi ile bu kirleticilerin atık sulardan arıtılması kritik öneme sahiptir. Sunulan tez çalışmasında adsorpsiyon ve elektrooksidasyon yöntemleriyle organik ve inorganik çevre kirleticilerinin giderimi gerçekleştirildi. Adsorpsiyon çalışmalarında, manyetik özellik, porozite ve yüzeye fonksiyonel gruplar kazandırmak için Fe₃O₄/SiO₂/PAM nanomalzemesi sentezlendi. Nanomalzemelerin nasıl kaplandığını tespit etmek için FTIR, XRD, BET, Zeta Potansiyeli ve TEM görüntüleri son derece önemli olduğundan karakterizasyona yönelik çalışmalar yürütüldü. Çalışma sonucunda elde edilen bulgulara göre adsorpsiyon izotermi, adsorpsiyon kinetiği, adsorpsiyon mekanizması ve termodinamik modelleme çalışmaları yapıldı. Elektrooksidasyon çalışmalarında, sol-jel yöntemiyle aktif karbon destekli TiO₂/AC katalizörü başarıyla sentezlendi. Bu katalizörler SEM, TEM, XRD, BET ve DSC gibi çeşitli analitik yöntemlerle karakterize edildi. Antibiyotiklerin elektrokimyasal bozunmasındaki oluşan ürünler HRMS analiziyle belirlendi. UV-Vis Spektrofotometre ve Döngüsel voltametri (CV) analizleri, çözültide bulunan elektroaktif bileşenlerin konsantrasyon ve elektrokimyasal özelliklerini belirlemek için yapıldı. CCD-RSM optimizasyon modeli ile ağır metal (Pb²⁺, Cd²⁺) ve antibiyotik (FLQ, OTC) kirleticilerinin ana parametreleri dikkate alınarak deney tasarım uygulandı. Değişkenlerin etkileşimlerini ve istatistiksel olarak parametreleri değerlendirmek için varyans analizi (ANOVA) uygulandı. Pb²⁺ ve Cd²⁺ ağır metal giderim çalışmalarında, maksimum adsorpsiyon kapasiteleri sırasıyla 66,54 ve 13,22 mg/g olarak belirlendi. EO ve ECO deneylerinin sonuçlarına göre sırasıyla, FLQ atığı üzerinde %81 ve %98 giderim verimliliği, OTC atığı üzerinde ise %79 ve %86 oranında giderim verimliliği elde edildi. Bu durum, üç fazlı elektrokimyasal sistemin performansının geleneksel iki fazlı sistemlere göre daha iyi olduğunu gösterdi. Sunulan çalışma, CCD-RSM optimizasyon modeline dayalı bir

yaklaşımı dikkate alarak, adsorpsiyon ve elektrooksidasyon yöntemlerinin organik ve inorganik kirleticilerin giderimi üzerindeki etkinliğini ortaya koydu. Bu tez çalışmasının atık su arıtımında çeşitli çevre kirleticilerinin giderilmesi için oldukça umut verici bir potansiyele sahip olacağı ve gelecekte yapılabilecek benzer çalışmalara önemli katkılar sağlayacağı düşünülmektedir.

Anahtar Kelimeler: Adsorpsiyon, Elektrooksidasyon, Su arıtma, Atık su, Yanıt yüzey metodolojisi (CCD-RSM)



ABSTRACT
**REMOVAL OF ORGANIC AND INORGANIC SUBSTANCES FROM
WASTEWATER BY Fe₃O₄/SiO₂/PAM MAGNETIC MATERIAL
SYNTHESIS, ADSORPTION AND ELECTROOXIDATION METHOD**

Huseyn OSMAN

Doctor of Philosophy (Ph.D.)

Graduate School of Natural and Applied Sciences

Department of Chemistry

Supervisor: Prof. Dr. Mehmet UGURLU

March 2025, 118 pages

Environmental pollutants pose a serious threat due to their harmful effects on human health and the environment. Therefore, it is critical to treat these pollutants from wastewater with an appropriate treatment method. In the presented thesis study, the removal of organic and inorganic environmental pollutants by adsorption and electrooxidation methods was carried out. In adsorption studies, Fe₃O₄/SiO₂/PAM nanomaterial was synthesised to impart magnetic properties, porosity and functional groups to the surface. Since FTIR, XRD, BET, Zeta Potential and TEM images are very important to determine how the nanomaterials are coated, characterisation studies were carried out. According to the findings obtained as a result of the study, adsorption isotherms, adsorption kinetics, adsorption mechanism and thermodynamic modelling studies were carried out. In electrooxidation studies, activated carbon supported TiO₂/AC catalyst was successfully synthesised by sol-gel method. These catalysts were characterised by various analytical methods such as SEM, TEM, XRD, BET and DSC. The products formed in the electrochemical degradation of antibiotics were determined by HRMS analysis. UV-Vis Spectrophotometer and Cyclic voltammetry (CV) analyses were performed to determine the concentration and electrochemical properties of the electroactive components present in the solution. The CCD-RSM optimisation model was used to design the experiment considering the main parameters of heavy metal (Pb²⁺, Cd²⁺) and antibiotic (FLQ, OTC) pollutants. Analysis of variance (ANOVA) was applied to evaluate the interactions of variables and parameters statistically. In Pb²⁺ and Cd²⁺ heavy metal removal studies, the maximum adsorption capacities were determined as 66.54 and 13.22 mg/g, respectively. According to the results of EO and ECO experiments, removal efficiencies of 81% and 98% were obtained on FLQ effluent and 79% and 86% on OTC effluent, respectively. This indicated that the performance of the three-phase electrochemical system was better than the conventional two-phase system. The presented study demonstrated the effectiveness of adsorption and electrooxidation methods on the removal of organic

and inorganic pollutants, considering an approach based on the CCD-RSM optimisation model. It is thought that this thesis study will have a very promising potential for the removal of various environmental pollutants in wastewater treatment and will provide important contributions to similar studies in the future.

Keywords: Adsorption, Electrooxidation, Water treatment, Wastewater, Response Surface Methodology (CCD-RSM).





AILEME...

ÖNSÖZ

Doktora çalışmalarım sırasında bilgi birikimi, tecrübesi, yapıcı yaklaşımı, yerinde yönlendirmeleriyle beni her zaman destekleyen ve kendimi geliştirmemde büyük pay sahibi olan tez danışmanım Prof. Dr. Mehmet UĞURLU'a,

Tez süresince değerli vakitlerini ayırarak yaptıkları önerileri ve yorumlarıyla tez çalışmasını iyileştiren değerli hocalarım Doç. Dr. Ali İmran VAİZOĞULLAR ve Doç. Dr. Oğuz AKPOLAT'a,

Tez boyunca her aşamada yardım ve desteklerini esirgemeyen değerli hocalarıma, doktora süresince birçok konuda bana yardımcı olan ve sürekli fikir alışverişinde bulunduğum arkadaşlarıma,

Hiçbir fedakarlıktan kaçınmayarak beni büyüten, yetiştiren, her durumda maddi-manevi destekleriyle yanımda olarak bugünlere gelmemi sağlayan çok değerli aileme, sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

Bu tez çalışması, Bilimsel Araştırma Projeleri Koordinasyon Birimi (BAP) tarafından 23/158/01/1 numaralı DTP projesi olarak desteklenmiştir. Desteklerinden dolayı Muğla Sıtkı Koçman Üniversitesi BAP'a teşekkür ederim.

Huseyn OSMAN

Mart 2025

İÇİNDEKİLER

ÖNSÖZ	ix
İÇİNDEKİLER	x
ÇİZELGELER DİZİNİ	xiii
ŞEKİLLER DİZİNİ	xiv
SEMBOLLER VE KISALTMALAR DİZİNİ	xvi
1. GİRİŞ	1
1.1.Amaç ve Kapsam.....	1
2. GENEL BİLGİLER VE LİTERATÜR ARAŞTIRMASI	4
2.1. Su kirliliği.....	4
2.2. Su Kirliliğinin Çevre Üzerinde Etkisi	4
2.3. Su Kirliliğinin İnsan Sağlığı Üzerinde Etkisi.....	5
2.3.1. Su Yoluyla Bulaşan Hastalıklar	5
2.3.2. Ağız Yoluyla Bulaşan Zehirlenmeler ve Kimyasal Kirlilik	6
2.3.3. Sindirim Sistemi Hastalıkları.....	6
2.3.4. Cilt ve Göz Enfeksiyonları	6
2.4. Atık Su Arıtım Yöntemleri.....	7
2.5. Çalışma Kapsamında Kullanılan Yöntemler	7
2.5.1. Adsorpsiyon	8
2.5.1.1. Poliakrilamid	9
2.5.2. Elektrokimyasal İleri Oksidasyon Prosesleri.....	10
2.5.2.1. Elektrooksidasyon Yöntemi	10
2.5.2.2. Elektrokatalitik Oksidasyon Yöntemi	11
2.5.3. CCD-RSM Deney Tasarım Optimizasyon Modeli.....	13
2.6. Çalışma Kapsamında Seçilen Organik ve İnorganik Kirleticiler	13
2.6.1. Antibiyotikler.....	14
2.6.1.1. Flumequin (FLQ)	15
2.6.1.2. Oksitetrasiklin (OTC).....	16
2.6.2. Ağır Metaller	17
2.6.2.1. Kurşun (Pb).....	17
2.6.2.2. Kadmiyum (Cd).....	18

2.7. Literatür Araştırması	19
2.7.1. Adsorpsiyon Çalışmalarına İlişkin Literatür Çalışmaları	19
2.7.2. Elektrooksidasyon Çalışmalarına İlişkin Literatür Çalışmaları.....	21
3. MATERYAL VE YÖNTEM.....	23
3.1. Materyaller	23
3.2. Kullanılan Cihazlar.....	23
3.3. Adsorpsiyon Çalışmalarına İlişkin Deneylerin Yürütülmesi	24
3.3.1. Poliakrilamid (PAM) Sentezi	24
3.3.2. Fe ₃ O ₄ Sentezi	25
3.3.3. Fe ₃ O ₄ /SiO ₂ sentezi	25
3.3.4. Fe ₃ O ₄ /SiO ₂ /PAM sentezi	25
3.3.5. Adsorpsiyon Deneyleri	26
3.4. Elektrooksidasyon Çalışmalarına İlişkin Deneylerin Yürütülmesi	27
3.4.1. Katalizör Sentezi.....	27
3.4.2. Elektrokimyasal Deneyleri	28
3.5. Deneysel tasarım ve merkezi kompozit tasarım (CCD).....	30
4. BULGULAR ve TARTIŞMA.....	32
4.1. Adsorpsiyon Çalışmalarına İlişkin Bulgular	32
4.1.1. TEM Analizi	32
4.1.2. XRD Analizi	34
4.1.3. FTIR Analizi	36
4.1.4. Zeta Potansiyel Ölçümleri	37
4.1.5. BET Analizi	38
4.1.6. Adsorpsiyon Çalışmalarının İstatistiksel Analizi	39
4.1.7. Seçilen Parametrelerin Adsorpsiyon Üzerindeki Etkileri.....	46
4.1.7.1. Başlangıç pH Etkisi.....	48
4.1.7.2. Adsorban Miktarı Etkisi	49
4.1.7.3. Başlangıç Konsantrasyon Etkisi	49
4.1.7.4. Temas Süresi Etkisi	49
4.1.7.5. Sıcaklık Etkisi	50
4.1.8. Parametrelerin Optimizasyonu	50
4.1.9. Fe ₃ O ₄ /SiO ₂ /PAM Adsorpsiyon Kapasitesinin Diğer Adsorbanlarla Karşılaştırılması.....	51
4.1.10. Adsorpsiyon Mekanizması	52
4.1.11. Adsorpsiyon İzotermi	53

4.1.12. Adsorpsiyon Kinetiği.....	55
4.1.13. Termodinamik Modelleme	56
4.2. Elektrooksidasyon Çalışmalarına İlişkin Bulgular.....	58
4.2.1. XRD Analizi	58
4.2.2. SEM Analizi	59
4.2.3. TEM Analizi	61
4.2.4. BET Analizi	62
4.2.5. DSC Analizi.....	64
4.3. FLQ Giderim Çalışmalarına İlişkin Bulgular.....	65
4.3.1. FLQ Giderim Çalışmalarının İstatistiksel Analizi.....	65
4.3.2. Seçilen Parametrelerin FLQ Giderimi Üzerindeki Etkileri	72
4.3.2.1. Başlangıç pH Etkisi.....	74
4.3.2.2. Katalizör miktarı etkisi.....	74
4.3.2.3. Voltaj Etkisi.....	74
4.3.2.4. Başlangıç Konsantrasyon Etkisi	75
4.3.2.5. Temas Süresi ve Elektrolit Konsantrasyon Etkisi	75
4.3.3. Parametrelerin Optimizasyonu	76
4.3.4. UV-Vis Spektrumlarının Değerlendirilmesi.....	77
4.3.5. Döngüsel Voltammetri (CV) Analizi.....	78
4.3.6. Yüksek Çözünürlüklü Kütle Spektrometresi (HRMS) Analizi	79
4.4. OTC Giderim Çalışmalarına İlişkin Bulgular	80
4.4.1. OTC Giderim Çalışmalarının İstatistiksel Analizi	81
4.4.2. Seçilen Parametrelerin OTC Giderimi Üzerindeki Etkileri.....	88
4.4.2.1. Başlangıç pH Etkisi.....	90
4.4.2.2. Katalizör Miktarı Etkisi	90
4.4.2.3. Voltaj Etkisi.....	90
4.4.2.4. Başlangıç Konsantrasyon Etkisi	91
4.4.2.5. Temas Süresi ve Elektrolit Konsantrasyon Etkisi	91
4.4.3. Parametrelerin Optimizasyonu	92
4.4.4. UV-Vis Spektrumları.....	92
4.4.5. Döngüsel Voltammetri (CV) analizi.....	93
4.4.6. Yüksek Çözünürlüklü Kütle Spektrometresi (HRMS) Analizi	95
5. SONUÇLAR	98
KAYNAKLAR	101

ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 2.1. FLQ'nun özellikleri ve kimyasal yapısı.	15
Çizelge 2.2. OTC'nin özellikleri ve kimyasal yapısı.	16
Çizelge 3.1. CCD kodlanmış deneysel seviyeler	27
Çizelge 3.2. EO deneyleri için CCD kodlu seviyeler.....	29
Çizelge 3.3. ECO deneyleri için CCD kodlu seviyeler.....	30
Çizelge 4.1. Sentezlenen malzemelerin BET ve Langmuir yüzey alan ölçümleri.....	39
Çizelge 4.2. Pb(II) ve Cd(II) adsorpsiyon kapasiteleri	41
Çizelge 4.3. Pb(II) adsorpsiyon kapasitesi için modelin ANOVA'sı.....	42
Çizelge 4.4. Cd (II) adsorpsiyon kapasitesi için modelin ANOVA'sı	42
Çizelge 4.5. Pb(II) ve Cd(II) adsorpsiyon kapasitesi istatistiksel parametreleri.....	44
Çizelge 4.6. Adsorpsiyon kapasitesinin diğer adsorbanlarla karşılaştırılması.....	51
Çizelge 4.7. Pb ²⁺ ve Cd ²⁺ adsorpsiyon izoterm parametreleri	54
Çizelge 4.8. Pb(II) ve Cd(II) adsorpsiyonunun yalancı birinci dereceden ve ikinci dereceden kinetik modelleri	56
Çizelge 4.9. Pb(II) ve Cd(II) adsorpsiyonunun termodinamik parametreleri	57
Çizelge 4.10. Elektrooksidasyon FLQ % giderimi	67
Çizelge 4.11. Elektrokatalitik oksidasyon FLQ % giderimi	68
Çizelge 4.12. Elektrooksidasyon modelinin ANOVA'sı.....	69
Çizelge 4.13. Elektrokatalitik oksidasyon modelin ANOVA'sı.....	69
Çizelge 4.14. Elektrokimyasal yöntemlerin istatistiksel parametreleri.....	70
Çizelge 4.15. EO OTC %giderim	82
Çizelge 4.16. ECO OTC %giderim.....	83
Çizelge 4.17. EO modelin ANOVA'sı	84
Çizelge 4.18. ECO modelin ANOVA'sı.....	84
Çizelge 4.19. Elektrokimyasal yöntemlerin istatistiksel parametreleri.....	86

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 3.1. PAM sentezi.....	25
Şekil 3.2. Fe ₃ O ₄ /SiO ₂ /PAM nanokompozit malzeme sentezi	26
Şekil 3.3. Elektrokimyasal deneylerde kullanılan deneysel kurulumun şematik görünümü	28
Şekil 4.1. Fe ₃ O ₄ (a), Fe ₃ O ₄ /SiO ₂ (b) ve Fe ₃ O ₄ /SiO ₂ /PAM (c) nanopartiküllerin TEM görüntüleri	33
Şekil 4.2. Fe ₃ O ₄ , Fe ₃ O ₄ /SiO ₂ ve Fe ₃ O ₄ /SiO ₂ /PAM nanopartiküllerin XRD analizi ..	34
Şekil 4.3. Sentezlenen malzemelerin FTIR spektrumları	36
Şekil 4.4. Fe ₃ O ₄ /SiO ₂ (a) ve Fe ₃ O ₄ /SiO ₂ /PAM (b) Zeta potansiyel ölçümleri.....	38
Şekil 4.5. Pb(II) ve Cd(II) adsorpsiyon kapasitesi kalıntılarının normal % olasılık grafiği (a), (b) Pb(II) ve Cd(II) adsorpsiyon kapasitesinin tahmin edilen ve gerçek değerler arasındaki yakınlığı gösteren grafik (c),(d).....	45
Şekil 4.6. Parametrelerin Pb(II) ve Cd(II) adsorpsiyon kapasiteleri üzerindeki etkilerini gösteren 3D yüzey grafikler.....	47
Şekil 4.7. Fe ₃ O ₄ /SiO ₂ /PAM'ın FTIR spektrumları.....	52
Şekil 4.8. Adsorpsiyon Mekanizması	53
Şekil 4.9. Katalizörlerin XRD spektrumları (a-AC, b-TiO ₂ /AC)	58
Şekil 4.10. Sentezlenen katalizörlerin SEM görüntüleri (a-AC ve b-TiO ₂ /AC).....	60
Şekil 4.11. Sentezlenen katalizörlerin TEM görüntüleri (a-AC, b-TiO ₂ /AC).....	61
Şekil 4.12. BET analizleri (a-AC, b-TiO ₂ /AC).....	63
Şekil 4.13. DSC Analizi.....	64
Şekil 4.14. R ₁ ve R ₂ deneysel kapasite artıklarının normal % olasılık grafiği (a), (b) R ₁ ve R ₂ için FLQ gideriminin öngörülen ve gerçek değerleri arasındaki yakınlığı gösteren grafik (c), (d)	71
Şekil 4.15. Parametrelerin FLQ giderimi üzerindeki etkilerini gösteren 3D yüzey grafikleri	73
Şekil 4.16. Adsorpsiyon, EO, ECO UV-Vis spektrumları.....	77
Şekil 4.17. FLQ CV analizi.....	78
Şekil 4.18. EO ürünlerinin HRMS analizi	79
Şekil 4.19. ECO ürünlerinin HRMS analizi.....	80

Şekil 4.20. R_1 ve R_2 deney kapasitesi kalıntılarının normal % olasılık grafiği (a), (b) R_1 ve R_2 için OTC gideriminin tahmin edilen ve gerçek değerler arasındaki yakınlığı gösteren grafik (c), (d)	87
Şekil 4.21. Parametrelerin OTC giderimi üzerindeki etkilerini gösteren 3D yüzey grafikleri	89
Şekil 4.22. Adsorpsiyon, EO, ECO UV-Vis spektrumları.....	92
Şekil 4.23. OTC CV analizi	93
Şekil 4.24. EO ürünlerinin HRMS analizi	95
Şekil 4.25. ECO ürünlerinin HRMS analizi.....	96



SEMBOLLER VE KISALTMALAR DİZİNİ

%	Yüzde
λ	Dalga boyu
°C	Santigrat derece
nm	Nanometre
PAM	Poliakrilamid
PVP	Polivinilpirolidon
TEOS	Tetraetilortosilikat
FLQ	Flumequine
OTC	Oksitetrasiklin
CCD-RSM	Merkezi kompozit tasarım ve yanıt yüzey metodolojisi
AC	Aktif karbon
EO	Elektrooksidasyon
ECO	Elektrokatalitik oksidasyon
UV-vis	Ultraviyole visible
ATSDR	ABD Zehirli Maddeler ve Hastalık Sicili Dairesi
K	Reaksiyon hız sabiti
θ	Kırılma açısı
V	Volt

1. GİRİŞ

Günümüzde; sanayileşme, kentleşme, nüfus artışı, zirai mücadelede kullanılan ilaçlar ve kimyasal gübreler ve sıvı atıkların doğaya rastgele verilmesi, önemli bir çevre problemini beraberinde getirmektedir. Atık sulardan kaynaklanan çevre kirliliğinin en önemli nedeni, çoğu zaman herhangi bir arıtıma tabi tutulmadan doğaya veya alıcı ortamlara verilmesidir. Organik ve inorganik atıkların etkisiyle su kaynaklarında üreyen algler, küfler ve bakteriler biyolojik kirliliği oluşturur. Bu canlılar, zamanla ortamdaki oksijeni tüketir. Oksidasyon işlemine bağlı olarak, ekzotermik reaksiyonlar suyun sıcaklığını yükseltir ve diğer canlıların yaşaması için gereken oksijen miktarını düşürür. Çoğunlukla buna neden olan atıklar endüstri faaliyetleri sonucu oluşan atıklardır. Özellikle fenolik bileşikler, arsenik, siyanür, krom, kadmiyum vb. toksik maddeler yaygın olarak bulunmaktadır. Ağır metaller, biyolojik yolla parçalanabilen organik maddeler ve inorganik atıklar suda kimyasal kirlilik yaparak dayanıklı kirleticiler sınıfında olup, alıcı ortamda birikme, canlı dokularında yoğunlaşma ve belli sınırlar üstünde olmasına neden olarak toksik etki ve nihayetinde ölümcül sonuçlar doğurabilmektedirler (Palanisamy vd., 2005). Bu nedenle metal katyonları, çevre içinde birikme eğilimi gösterdiğinden, sudaki kontaminasyonları endişe kaynağı olabilmektedir. Özellikle yağmur ve kar yağışları sonucunda, beraberinde bulunan zehirli metal elementlerini göllere, rezervuarlara ve yeraltı sularına karışmasına neden olabilmektedir (Argun vd., 2007). Bu kimyasallar zamanla hayvanlarda veya insanlarda sağlık sorunlarına neden olabilecek biyolojik birikime yol açabilmektedir.

1.1.Amaç ve Kapsam

Endüstriyel, tarımsal ve insan aktiviteleri sonucu oluşan atıksular, su kaynaklarının kirlenmesi ve çevre kirliliğine neden olmaktadır. Su kaynaklarındaki en önemli kirleticilerden biri ağır metaller olup, düşük konsantrasyonlarda bile ciddi olumsuzluk

ve hastalıklara sebep olabilmektedir (Nematollahi vd., 2021). Limit değerleri aştığında, insan fizyolojisi ve biyolojik sistemler üzerinde zararlı bir etkiye sahip olduğu bilinmektedir (El-Sharkawy vd., 2023). Aynı şekilde başta ağır metaller olmak üzere, boyar maddeler ve tıbbi kaynaklı antibiyotik maddelerinde günümüzde önemi çevresel kirlilikler oluşturmaktadırlar. Genel olarak bu kirliliklerin bertarafı için kimyasal, fiziksel ve biyolojik yöntemler kullanılmaktadır. Bu yöntemler kısaca; iyon değiştirme, koagülasyon, filtrasyon, ters osmoz, nötralizasyon ve kimyasal çöktürme, biyosorpsiyon, buharlaştırma, membran filtrasyon ve elektrokimyasal yöntemler olarak özetlenebilir (Shrestha vd., 2021; Mathews vd., 2015). Burada gözönüne alınması gereken en temel husus, çevre dostu, ekonomik değeri düşük ve performansının yüksel olabileceği malzeme ve yöntemlerin kullanılması tercih edilmelidir.

Bu bilgiler kapsamında gerçekleştirilen tez çalışmasında polimer kaplı $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ kompozit malzeme sentezlenerek Pb^{2+} ve Cd^{2+} giderimi, elektrooksidasyon yöntemlerle grafit ve partikül elektrot (TiO_2/AC) kullanılarak Flumekuin (FLQ) ve Oksitetrasiklin (OTC) antibiyotiklerinin giderimi gerçekleştirildi. CCD-RSM optimizasyon modeli ile ağır metal ve antibiyotik kirleticilerinin ana parametreleri dikkate alınarak deney tasarım uygulandı. Burada geniş yüzey alanına ve yoğun aktif bölgelere sahip malzeme sentezi amaçlandı. Bu tez çalışmasının amacına ulaşılması için oluşturulan ana hedefler, çalışmanın kapsamını ve sınırlarını belirlemektedir.

1. Deneysel koşullar, tekrarlanabilirlik, basitlik ve etkinlik göz önünde bulundurularak, kimyasal çöktürme yöntemi ile Fe_3O_4 sentezlenmesi, bu parçacıkların yüzeyleri ve kararlılıklarını artırmak için SiO_2 ile modifiye edilmesi ve sonrasında harici bir koruyucu tabaka oluşturmak amacıyla PAM ile yüzey kaplanması sonucu $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ ve partikül elektrot olarak kullanılan aktif karbon destekli TiO_2/AC sol-jel yöntemiyle sentezi tezin birinci hedefini oluşturmaktadır.

2. Ana parametreler dikkate alınarak deney tasarımı CCD ile gerçekleştirildi. Toplam deney sayısı belirlendikten sonra her bir deney seti için parametre değerleri hesaplandı. Bu değerler çerçevesinde daha önceden hazırlanmış olan $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ kompozit malzemesi kullanarak adsorpsiyon deneyleri ve elektrooksidasyon (EO) ve elektrokatalitik oksidasyon (ECO) yöntemleriyle ilaç atığı Flumekuin (FLQ) ve

Oksitetrasiklin (OTC) antibiyotiğinin giderim performansı farklı parametrelerde incelenerek araştırılması çalışmanın ikinci aşamasında yer almaktadır.

3. CCD kapsamında belirtilen parametrelerde gerçekleştirilen deney sonuçları RSM ile istatistiksel olarak değerlendirildi. Daha sonra bu parametreler ile ölçülen deney sonuçları arasındaki ilişki cevap yüzey fonksiyonu aracılığıyla bulundu. Bu parametrelerin çalışma aralığındaki optimum koşulların belirlenmesi tezin üçüncü hedefini oluşturmaktadır.

4. Deneylerde kullanılacak olan nanomalzemelerin yapısal özelliklerine ilişkin karakterizasyon çalışmalarının yanısıra adsorpsiyon izotermi, adsorpsiyon kinetiği, adsorpsiyon mekanizması, termodinamik modelleme ve antibiyotiklerin bozunma sürecindeki oluşan ara ana maddelerin belirlenerek elde edilen sonuçların değerlendirilmesi tezin dördüncü hedefini oluşturmaktadır.

2. GENEL BİLGİLER VE LİTERATÜR ARAŞTIRMASI

Dünya nüfusunun hızla artması, sanayi ve teknolojinin hızla gelişmesi, çevre bilincinin yaygınlaşmaması gibi faktörler içilebilir su kaynaklarının giderek azalmasına yol açmaktadır. Ayrıca içme suyu kaynaklarının sorumsuzca kirletilmesi, geri dönüşü olmayan çevre sorunlarının ortaya çıkmasına neden olmaktadır. Bu durum, suyun korunması ve sürdürülebilir kullanımı için acil önlemler alınmasını gerektirmektedir.

2.1. Su kirliliği

Dünyamızın en değerli hazinelerinden biri olan su hızla kirlenmektedir. Artan nüfus ve sanayileşme su kaynaklarını tehdit eden en büyük unsurlar arasında yer alıyor (Kozlowski vd., 2014). Evlerimizden, fabrikalardan ve tarım alanlarından çıkan atıklar su kaynaklarına karışarak canlı yaşamı için büyük tehdit oluşturuyor. Bu durum hem insan sağlığını tehdit ediyor hem de doğal dengeyi bozuyor. Özellikle içme suyu kaynakları su kirliliği ile kirlenebilmekte ve insanlarda ciddi hastalıklara neden olabilmektedir (Masindi ve Muedi, 2018). Su kirliliği sadece çevreyi değil tüm yaşamı tehdit eden bir sorundur. Bu nedenle suyun korunması, kirletilmemesi ve sürdürülebilir kullanımı büyük önem taşımaktadır. Su kirliliğinin önlenmesi için atıkların düzenli olarak arıtılması, kimyasal madde kullanımının kontrol altına alınması ve halkın çevre bilinci ile su kaynaklarının korunması konusunda daha duyarlı hale getirilmesi gerekmektedir (Boulahbal vd., 2022). Su kirliliği sadece bir çevre sorunu değil, aynı zamanda geleceğimiz için de büyük bir tehlikedir.

2.2. Su Kirliliğinin Çevre Üzerinde Etkisi

Su kirliliğinin çevre üzerinde çok çeşitli ciddi etkileri vardır. Kirli suyun ekosistemler üzerindeki olumsuz etkisi doğal yaşamın dengesini bozmaktadır. Su kaynaklarındaki kirleticiler, suda yaşayan balıkların, bitkilerin, amfibilerin ve diğer canlı türlerinin sağlığını tehdit etmektedir (Alsalme vd., 2023). Kirli su bu canlıların yaşam alanlarını yok eder, onları gıdasız bırakır ve türlerin yok olmasına yol açabilir. Bu da

biyoçeşitliliğin azalmasına ve ekosistemlerin bozulmasına yol açar. Ayrıca kirli suyun tarımda kullanılması toprakların verimliliğini azaltmakta ve zararlı kimyasalların toprağa karışmasına neden olmaktadır. Bu da gıda üretimini olumsuz etkilemekte, sağlıksız gıdalara yol açmakta ve tarımsal ekosistemlerin bozulmasına neden olmaktadır (Eslamian vd., 2018). Ayrıca su kirliliği su döngüsünün dengesini bozmaktadır. Kirli suyun buharlaşması atmosferdeki su buharını kirletir, bu da kirli yağışlara ve suyun daha fazla kirlenmesine yol açabilir. Sonuç olarak, su kirliliği sadece su kaynaklarını değil tüm çevreyi etkileyen ve ekosistemlerin, sağlık sistemlerinin ve tarımın sağlığını tehdit eden bir sorundur. Bu nedenle suyun korunması, temiz tutulması ve sorumlu bir şekilde kullanılması son derece önemlidir.

2.3. Su Kirliliğinin İnsan Sağlığı Üzerinde Etkisi

Su kirliliğinin insan sağlığı üzerinde son derece ciddi ve geniş kapsamlı etkileri vardır. Kirli su çeşitli hastalıkların yayılmasına, uzun vadeli sağlık sorunlarına ve çevresel bozulmaya yol açabilir (Wang vd., 2019). Bu sorunlar gelişmiş ve gelişmekte olan ülkelerde farklı etkilere sahip olsa da, su kirliliği dünya çapında bir sağlık tehdidi oluşturmaktadır. Kirli su kaynakları hem doğrudan su tüketimi hem de suyla temas yoluyla insanları tehdit etmektedir.

2.3.1. Su Yoluyla Bulaşan Hastalıklar

Su kirliliği, su kaynaklı enfeksiyonların başlıca nedenlerinden biridir. Kirli sulara bulunan bakteriler, virüsler ve parazitler insan sağlığını doğrudan tehdit etmektedir. Özellikle bakteriyel hastalıklar, su kaynaklarına karışan atıklar, çöpler ve kanalizasyon suları nedeniyle yayılmaktadır. Kolera, dizanteri, tifo, hepatit A ve giardia gibi hastalıklar kirli suların içilmesi ya da bu sularla temas edilmesi yoluyla insanlara bulaşabilmektedir. Kolera özellikle temiz içme suyu ve sanitasyon hizmetlerinin yetersiz olduğu bölgelerde yaygındır. Bu hastalık aşırı ishal ve dehidrasyona neden olarak ölümcül sonuçlar doğurabilir (Molajou vd., 2021). Benzer şekilde dizanteri ve tifo da gastrointestinal enfeksiyonlara neden olarak şiddetli ishal ve kusmaya yol

açabilir. Su kirliliği bu hastalıkların yayılmasını hızlandırarak sağlık sistemleri üzerinde büyük bir yük oluşturmakta ve halk sağlığını tehdit etmektedir.

2.3.2. Ağız Yoluyla Bulaşan Zehirlenmeler ve Kimyasal Kirlilik

Su kaynaklarına karışan ağır metaller ve kimyasallar uzun vadede insan sağlığını ciddi şekilde tehdit etmektedir. Tarımda kullanılan pestisitler, endüstriyel atıklar, cıva, kurşun, arsenik ve kadmiyum gibi ağır metaller kirlenmiş su yoluyla vücuda girebilmektedir. Bu kimyasallar içme suyu ve gıda üretimi için kullanılan su yoluyla insan vücuduna girebilmekte ve çeşitli sağlık sorunlarına neden olabilmektedir (Padder ve Bashir, 2023).

Ağır metallerin etkileri özellikle sinir sistemi, karaciğer, böbrekler ve sindirim sistemi üzerinde yoğunlaşmaktadır. Kurşun beyin fonksiyonlarını olumsuz etkileyebilir ve çocuklarda gelişim bozukluklarına neden olabilir. Cıva nörolojik bozukluklara ve böbrek yetmezliğine neden olabilir. Arsenik kanser riski taşıırken, kadmiyum uzun vadede böbrek fonksiyonlarını bozabilir. Bu kimyasalların etkisi, su arıtma ve güvenli içme suyu tedarik sistemlerinin genellikle eksik olduğu düşük gelirli bölgelerdeki insanlar için özellikle yıkıcı olabilir (Singh ve Su, 2022).

2.3.3. Sindirim Sistemi Hastalıkları

Kirli suda bulunan patojenlerin sindirim sistemi üzerinde ciddi etkileri olabilir. Mikroorganizmalar vücuda girdiklerinde enfeksiyonlara neden olabilir ve sindirim sistemi hastalıklarına yol açabilir (Gu vd., 2023). Bağırsak enfeksiyonları karın ağrısı, kusma ve ishal gibi şikayetlere neden olabilir. İshal özellikle bebekler ve yaşlılar için tehlikeli olabilir çünkü vücutta sıvı kaybına yol açarak dehidrasyona neden olabilir.

2.3.4. Cilt ve Göz Enfeksiyonları

Kirlenmiş su ile doğrudan temas cilt hastalıklarının ve göz enfeksiyonlarının yayılmasına neden olabilir. Sudaki bakteriler, mantarlar ve parazitler insan vücuduyla temas ettiklerinde cilt enfeksiyonlarına neden olabilirler. Bu tür enfeksiyonlar kaşıntı,

kızarıklık, iltihaplanma ve ağrı gibi belirtilerle karakterize edilir. Gözlerle temas eden kirli su konjonktivit (göz iltihabı) gibi enfeksiyonlara neden olabilir. Bu tür enfeksiyonlar tedavi edilmediği takdirde daha ciddi sağlık sorunlarına yol açabilir (Srivastava vd., 2020).

2.4. Atık Su Arıtım Yöntemleri

Genel olarak, geleneksel atık su arıtımı, kolloidler, organikler, besin maddeleri, çözünebilir kirleticiler (metaller, organikler, vb.) dahil olmak üzere katı maddelerin atık sudan uzaklaştırılması için fiziksel, kimyasal ve biyolojik işlemlerin ve arıtımların bir kombinasyonundan oluşur (Zhao vd., 2020). Geleneksel yöntemler, yerleşik geri kazanım süreçleri ve yeni ortaya çıkan giderim yöntemleri olarak kategorize edilen çok sayıda teknik kullanılabilir. Bu nedenle kullanılacak yöntemin seçimi atık su özelliklerine bağlı olacaktır (Wang vd., 2025). Her arıtmanın sadece maliyet açısından değil, aynı zamanda uygulanabilirlik, verimlilik, pratiklik, güvenilirlik, çevresel etki, çamur üretimi, operasyonel zorluk, ön arıtma gereksinimleri ve potansiyel olarak toksik yan ürünlerin oluşumu açısından da kendi sınırlamaları vardır. Bununla birlikte, şu anda atık su arıtımı için belirtilen çeşitli arıtma prosesleri arasında, teknolojik ve ekonomik nedenlerden dolayı sadece birkaçı sanayi sektörü tarafından yaygın olarak kullanılmaktadır. Genel olarak, kirleticilerin atık sudan uzaklaştırılması fizikokimyasal ve biyolojik yollarla yapılmakta ve araştırmalar daha ucuz ve daha etkili sistem kombinasyonları veya yeni alternatifler üzerinde yoğunlaşmaktadır (Jones vd., 2021).

2.5. Çalışma Kapsamında Kullanılan Yöntemler

Ne yazık ki, bazı çevre kirleticilerin kimyasal kararlılığı ve özellikleri, bu geleneksel arıtma yöntemlerinin etkinliğini sınırlamaktadır. Bu nedenle, sulu ortama salınan organik ve inorganik kirleticileri gidermek için daha etkili arıtma yöntemlerine ihtiyaç duyulmaktadır. Dolayısıyla, nano yapıli adsorbentler ve katalizörler geleneksel yöntemlere kıyasla çevresel arıtmada çok daha yüksek verim, düşük maliyetli ve zor

organik bileşikleri parçalayabilme gibi avantajlar sağladıkları bilinmektedir (Hashemi vd., 2019; Medeiros vd., 2020). Sularda her türlü kirliliğe neden olabilecek organik ve inorganik maddelerin uzaklaştırılması için daha yüksek giderim potansiyeline sahip malzemelerin sentezlenmesi ve geliştirilmesinin öncelikli bir araştırma konusu olabileceği düşünülmektedir.

2.5.1. Adsorpsiyon

Adsorpsiyon, bir maddenin (genellikle bir gaz veya sıvı) başka bir madde (genellikle bir katı) tarafından yüzeyine tutunması işlemidir. Bu süreç fiziksel veya kimyasal bağlar yoluyla gerçekleşebilir ve kirleticilerin giderilmesi için su arıtımında yaygın olarak kullanılır. Adsorpsiyon özellikle organik maddelerin, ağır metallerin, toksinlerin ve bazı kimyasal bileşiklerin atık sulardan uzaklaştırılmasında etkili bir yöntem olarak kullanılmaktadır. Atık sudan metal iyonlarını uzaklaştırmak için kullanılan yaygın teknikler arasında iyon değişimi, adsorpsiyon, filtrasyon ve elektrolitik prosesler yer alır. Bu yöntemlerden adsorpsiyon, düşük ekonomik maliyeti ve kolay geri kazanımı nedeniyle yaygın olarak kullanılır. Adsorpsiyon, 'adsorpsiyon' (maddenin yüzeyde tutulması) ve 'desorpsiyon' (maddenin yüzeyden uzaklaştırılması) arasındaki dengeye dayanır. Adsorpsiyon, yüzey alanının genişliğine ve adsorbanın özelliklerine bağlı olarak gerçekleşir. Bu nedenle, adsorpsiyon işleminin etkinliği adsorbanın yüzey yapısına, kimyasal bileşimine ve gözenekliliğine göre değişebilir. Adsorpsiyonda, adsorbent yüzeyinde kimyasal fonksiyonel grupların bulunması, adsorpsiyon sürecini etkileyen önemli bir faktördür (Lee ve Yoo, 2016). Özellikle adsorpsiyon uygulamalarında manyetik nanopartiküllerin yüzey stabilitelerini artırmak ve aglomerasyon olgusunu azaltmak için organik fonksiyonel gruplarla modifiye işlemleri yaygın olarak kullanılabilmektedir (Ece, 2021). Bunun yanı sıra, toksik olmayan silika, manyetik nanopartiküller için çok mükemmel bir yüzey kaplama malzemesidir. Burada modifikasyon, kolay şekilde uzaklaştırılma ve yeniden kullanılabilirlik üzerinde durulması gereken en önemli hususların başında gelmektedir. Son yıllarda, su arıtımında adsorpsiyon için kullanılmak üzere çeşitli polimerler ve kompozit malzemeler geliştirilmiştir. Bu malzemeler özellikle belirli kirleticiler için sentezlenmiş ve uygulanmıştır. Dolayısıyla adsorpsiyon, çevresel kirleticilerin giderilmesi için güçlü ve etkili bir yöntemdir. Özellikle su arıtımında organik

kirleticilerin, toksik maddelerin ve ağır metallerin giderilmesinde yaygın olarak kullanılmaktadır.

2.5.1.1. Poliakrilamid

Poliakrilamid (PAM), suda çözünebilen, yüksek moleköl ağırlıklı, sentetik bir polimerdir. Kimyasal yapısı esas olarak akrilamid monomerlerinden türetilmiştir. Poliakrilamid, su arıtma, madencilik, petrol endüstrisi, tarım, tekstil ve kağıt endüstrisi gibi birçok farklı alanda kullanılır. Bu polimer, yüksek flokülasyon kapasitesi nedeniyle özellikle atık su arıtımında ve çeşitli endüstriyel uygulamalarda etkilidir. Poliakrilamid, akrilamid monomerlerinin polimerizasyonu ile üretilir. Akrilamid (C_3H_5NO), bir alken (vinil) grubu ve bir amid grubu içeren bir bileşiktir. Poliakrilamid, bu monomerlerin bir zincir formunda birleştirilmesiyle elde edilir ve çözünürlük ve yüksek moleköl ağırlığı gibi çeşitli özelliklere sahip olabilir (Salem vd., 2025). PAM, iyonik özelliklerine göre kategorize edilebilir:

- İyonik Olmayan Poliakrilamid: Sadece bir tür akrilamid monomeriyle yapılan ve çoğunlukla su arıtımında kullanılan polimerlerdir.
- İyonik Poliakrilamid: Akrilamid ve akrilik asit gibi iyonik monomerlerin birleştirilmesiyle yapılır. Bu tipler negatif yüklü gruplar içerdiklerinden özellikle flokülasyon işlemlerinde kullanılırlar.

Poliakrilamid, sudaki kolloidal parçacıkları birleştirme yeteneğine sahip olduğundan su arıtımında önemli bir rol oynar. Bu özelliği sayesinde atık sudaki farklı tipteki parçacıkların bir araya gelerek daha büyük parçacıklar (flokülasyon) oluşturmalarına yardımcı olur. Suyu eklenen poliakrilamid, sudaki parçacıklarla birleşerek daha büyük floklar (aglomeralar) oluşturur. Bu floklar çöker ve suyu daha temiz hale getirir. Bu şekilde çamur oluşumu hızlanır ve atık su temizliğini kolaylaştırır. Poliakrilamid genellikle çevre dostu olarak kabul edilir çünkü suya eklendiğinde, zarar vermeden kirleticileri arıtmaya yardımcı olur (Elsayed vd., 2023). Ancak, biyolojik olarak parçalanabilirliği kullanılan formülasyona ve yapıya bağlı olarak değişebilir. Dolayısıyla, çevresel etkileri göz önünde bulundurularak, doğru kullanım ve bertaraf yöntemlerine dikkat edilmesi önemlidir.

2.5.2. Elektrokimyasal İleri Oksidasyon Prosesleri

Elektrokimyasal ileri oksidasyon prosesleri, kirleticileri parçalamak için elektrokimyasal reaksiyonları ve oksidasyon tekniklerini birleştiren, su arıtımında kullanılan ileri bir arıtma yöntemidir. Bu proses, sudaki organik kirleticileri, mikroorganizmaları ve toksik maddeleri etkili bir şekilde oksitleyerek sudan uzaklaştırır. Elektrokimyasal oksidasyon çevre dostu, yüksek verimli ve daha fazla enerji sürdürülebilir bir alternatif olarak kabul edilmektedir. Elektrokimyasal ileri oksidasyon proseslerinin temeli, su arıtma süreçlerinde elektrokimyasal reaksiyonların kullanılmasıdır. Bu süreç, bir elektrik akımı kullanarak elektrotlar aracılığıyla oksidasyon reaksiyonlarını hızlandırır. Elektrik enerjisi, kirleticileri (özellikle organik kirleticiler) oksitleyen serbest radikalleri (özellikle $\cdot\text{OH}$ radikalleri) üretmek için kullanılır. Bu serbest radikaller suda çözülmüş kirleticilerle reaksiyona girerek onları daha basit, zararsız bileşenlere dönüştürür. Bu yöntemler, daha az kimyasal madde kullanımı ve daha az atık üretimi gibi özellikleriyle çevre dostudur. Ayrıca, geleneksel arıtma yöntemlerine göre daha hızlı ve etkilidir (Saya vd., 2022). Bu yöntemler, parçalanmış organik maddelerin zararlı yan ürünlere dönüşmesini önleyerek, çevreye olan etkisini azaltır (Phoon vd., 2020). Dolayısıyla elektrokimyasal ileri oksidasyon prosesleri, su arıtımında etkili bir yöntem olarak dikkat çekmektedir.

2.5.2.1. Elektrooksidasyon Yöntemi

Elektrooksidasyon, su ve atık su arıtımında kullanılan gelişmiş bir oksidasyon yöntemidir. Bu süreç, elektrotlar aracılığıyla elektrik enerjisi kullanılarak sudaki kirleticilerin oksidasyonu ve arıtılması anlamına gelir. Elektrooksidasyon, organik kirleticilerin, toksik maddelerin, patojenlerin ve mikroorganizmaların sudan uzaklaştırılması için özellikle etkili bir tekniktir. Su arıtımındaki bu teknoloji çevre dostu ve sürdürülebilir bir çözüm sunar çünkü hiçbir kimyasala ihtiyaç duyulmaz ve genellikle düşük enerjiyle yüksek verimlilik sağlar (Ajam vd., 2025). Elektrooksidasyon elektrokimyasal reaksiyonlar yoluyla çalışır. Bu reaksiyonlar, bir elektrik akımı uygulandığında elektrot yüzeyinde meydana gelir ve sudaki kirleticileri okside eder.

- Elektrik Akımı Uygulaması: Bir elektrokimyasal hücrede iki elektrot (anot ve katot) arasına elektrik akımı uygulanır. Anottaki oksidasyon reaksiyonları sudaki kirleticileri okside eder. Katot tarafında ise indirgenme reaksiyonları meydana gelir.
- Serbest Radikal Üretimi: Elektrik akımı uygulandıkça elektrot yüzeylerinde serbest radikaller (özellikle hidroksil radikalleri, $\cdot\text{OH}$) oluşur. Bu radikaller kirleticilere saldırarak onları okside eder ve daha basit, zararsız bileşiklere dönüştürür. Özellikle $\cdot\text{OH}$ radikalleri su arıtımındaki en güçlü oksitleyici maddelerden biridir ve organik kirleticilerle çok hızlı reaksiyona girer (Nidheesh vd., 2018).
- Oksidasyon Reaksiyonları: Elektrooksidasyon sırasında, sudaki kirleticiler (örneğin organik bileşikler, mikroorganizmalar) elektrot yüzeyindeki serbest radikallerle reaksiyona girer ve oksitlenir.

Elektrooksidasyon, su arıtma ve atıksu arıtma alanında giderek daha fazla tercih edilen ileri bir oksidasyon teknolojisidir. Özellikle organik ve inorganik kirleticilerle mücadelede yüksek verimliliği ve çevre dostu özelliği ile dikkat çekmektedir. Düşük maliyetli, sürdürülebilir ve etkili bir çözüm sunan elektrooksidasyon, özellikle endüstriyel atıksu arıtımında ve içme suyu dezenfeksiyonunda yaygın olarak kullanılmaktadır (Bensalah vd., 2020).

2.5.2.2. Elektrokatalitik Oksidasyon Yöntemi

Elektrokatalitik oksidasyon, su ve atık su arıtımında kullanılan etkili bir ileri oksidasyon yöntemidir. Bu yöntem, elektrotlar aracılığıyla elektrik enerjisi kullanılarak suya karışan kirleticileri oksitleyen ve zararsız bileşiklere dönüştüren bir işlem olarak tanımlanabilir (Moreira vd., 2017). Elektrokatalitik oksidasyon, elektrotların yüzeyinde gerçekleşen katalitik reaksiyonlar sayesinde kirleticilerin hızlı bir şekilde oksidasyonunu sağlar. Bu işlem, özellikle organik kirleticiler, toksik maddeler ve patojenler olmak üzere zararlı bileşiklerin su ortamından uzaklaştırılmasında önemli bir rol oynar (Xie vd., 2020). Elektrokimyasal oksidasyon, elektrot yüzeyinde kullanılan bir katalizörün elektrokimyasal reaksiyonu hızlandırma etkisiyle çalışır. Bu yöntem geleneksel elektrokimyasal oksidasyona benzerdir, ancak

burada kullanılan elektrotlar daha verimlidir çünkü katalizörler reaksiyon hızını artırır ve oksidasyon süreçlerini daha verimli hale getirir.

- Elektriksel Akımın Uygulanması: Elektrooksidasyon sistemlerinde olduğu gibi, elektrokatalitik oksidasyon da elektrokimyasal hücrede gerçekleşir. Elektrotlar arasında elektrik akımı geçirilir ve oksidasyon reaksiyonları anottan başlar. Burada, sudaki kirleticilere elektrotlar aracılığıyla elektrik enerjisi verilir.
- Katalizörlerin Rolü: Elektrokatalitik oksidasyondaki temel fark, kullanılan elektrot yüzeylerinde bulunan katalizörlerdir. Bu katalizörler reaksiyonları hızlandırır ve daha verimli bir oksidasyon sağlar. Katalizörler, elektrot yüzeylerindeki reaksiyonları kolaylaştırır ve daha düşük enerjiyle daha hızlı kirletici arıtımı sağlar.
- Serbest Radikal Üretimi: Katalizörler, elektrik akımının etkisi altında hidroksil radikalleri (*OH) gibi güçlü oksitleyici ajanların üretilmesine yardımcı olur. Bu radikaller sudaki kirleticilerle etkileşime girerek onları oksitler ve genellikle daha basit ve zararsız bileşiklere dönüştürür. Özellikle *OH radikalleri bu süreçte önemli bir rol oynar çünkü bu radikallerin oksidasyon potansiyeli yüksektir.
- Kirleticilerin Oksidasyonu: Elektrokatalitik oksidasyon sırasında, organik kirleticiler ve toksik maddeler elektrot yüzeyindeki katalizörler tarafından hızla oksitlenir. Bu oksidasyon reaksiyonları sonucunda, suya karışan zararlı bileşikler daha az toksik ve daha kolay parçalanabilir bileşiklere dönüşür.

Son yıllarda, aktif karbonun sadece adsorbent olarak değil, aynı zamanda farklı yöntemlerle sentezlenen aktif karbon destekli kompozit malzemelerin elektrokatalitik çalışmalarda kullanımı da dikkat çekmektedir (Qu vd., 2017). Özellikle, TiO_2 bazlı aktif malzemeler organik kirleticilerin elektrokatalitik bozunması için tercih edilen bir seçenek haline gelmiştir (Liu vd., 2023). Bu malzemeler, toksik olmayan yapısı ve sağlam stabilitesi nedeniyle geniş bir ilgi görmektedir. Dolayısıyla katalitik nanomalzemeler, özellikle biyolojik olarak arıtılması zor olan organik kirleticileri, toksik maddeleri ve bileşikleri gidermede oldukça etkilidir.

2.5.3. CCD-RSM Deney Tasarım Optimizasyon Modeli

Bağımsız parametrelerin önemini ve etkileşimlerini belirleyerek, modeli optimize etmek için CCD-RSM (Merkezi Kompozit Tasarım ve Yanıt Yüzey Metodolojisi) deney tasarımı modelidir. Değişken tahminleri için ikinci dereceden modeller kullanılarak, istatistiksel parametreler değerlendirilir. Değişkenlerin etkileşimlerini araştırmak için varyans analizi (ANOVA) uygulanır. Burada deneysel ölçüm sonuçlarını en iyi gösteren RSM fonksiyonu belirlenerek, bu fonksiyon yardımıyla deney parametreleri hesaplanarak optimize edilir (Eskandari vd., 2023). CCD-RSM ve grafiksel analizlerde, Design Expert yazılımı kullanılmaktadır. CCD-RSM deney tasarım optimizasyon modeli çalışılarak, yapılacak olan çalışmaya sunduğu avantajlar, bağımsız parametreler arasındaki etkileşimin belirlenmesi, sistemin matematiksel olarak modellenmesi, deneme sayısını azaltarak zamandan ve maliyetten tasarruf etmesi gibi özgün sonuçlar sunmaktadır (Thomas vd., 2024).

2.6. Çalışma Kapsamında Seçilen Organik ve İnorganik Kirleticiler

Çevre kirliliği insan sağlığı ve ekosistemler için ciddi tehditler oluşturmaktadır. Çevreyi kirleten organik kirleticiler arasında antibiyotikler gibi biyolojik etki gösteren maddeler bulunurken, inorganik kirleticiler arasında ise ağır metaller yer almaktadır (Iber ve Kasan, 2021). Her iki grup da çevredeki su, toprak ve hava kaynaklarında birikerek biyolojik sistemlere zarar verir ve insan sağlığı için büyük tehditler oluşturur. Antibiyotiklerin ve ağır metallerin bertarafı, çevre kirliliğini önlemek, ekosistemleri korumak, insan sağlığını güvence altına almak ve sürdürülebilir kalkınmayı sağlamak için kritik öneme sahiptir (Zhao vd., 2025). Bu kirleticilerin ortadan kaldırılmaması yalnızca çevreyi değil aynı zamanda gelecek nesillerin sağlığını da tehdit eder. Antibiyotikler ortadan kaldırılmazsa mikroorganizmalarda direnç oluşturarak halk sağlığına zarar verirken ağır metaller insanlarda ciddi zehirlenmelere ve ekosistemlerde kalıcı hasara neden olur. Bu nedenle, antibiyotikler ve ağır metaller gibi kirleticilerin bertarafı hem doğal çevreyi korumak hem de gelecek nesiller için sağlıklı bir yaşam alanı sağlamak için önemlidir.

2.6.1. Antibiyotikler

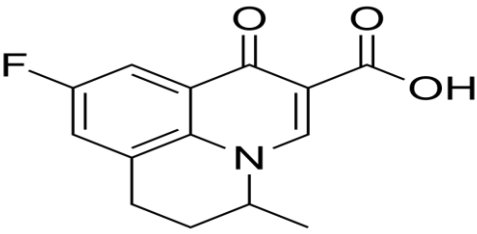
Antibiyotikler, bakteriyel enfeksiyonları tedavi etmek için kullanılan kimyasal bileşiklerdir. İnsanlar ve hayvanlar üzerindeki tedavi edici etkileri nedeniyle yaygın olarak kullanılan bu ilaçlar tıpta önemli bir yere sahiptir. Ancak antibiyotiklerin aşırı kullanımı ve yanlış yönetimi çevre ve insan sağlığı üzerinde ciddi olumsuz etkilere neden olabilir (Su vd., 2021). Antibiyotiklerin özellikle su kaynakları, toprak ve hava ile etkileşime girerek çevreye salınması çeşitli kirliliklere neden olur ve ayrıca bakteri direnci gibi önemli sağlık sorunlarını da beraberinde getirir. Antibiyotiklerin çevreye salınması genellikle evsel atıklardan, tarımsal uygulamalardan ve sağlık hizmetlerinden kaynaklanır. İnsanlar ve hayvanlar tarafından kullanılan antibiyotikler vücutta tam olarak metabolize edilmeden vücuttan atılabilir. Bu antibiyotikler atık su, toprak ve su kaynaklarına karışarak çevreyi kirletir. Antibiyotiklerin doğru kullanımı ve bertarafı hem çevre hem de insan sağlığı açısından büyük önem taşımaktadır (Liu vd., 2025). Antibiyotiklere direnç, tedavi edilemeyen enfeksiyonlar ve çevre kirliliği gibi sorunlarla mücadele etmek toplumsal bir sorumluluk gerektirir. Antibiyotiklerin etkili yönetimi daha sağlıklı bir toplum ve sürdürülebilir bir çevre için olmazsa olmazdır. Bu bağlamda antibiyotik kullanımına yönelik bilinçli yaklaşımlar sağlık sistemlerinin sürdürülebilirliğini ve doğanın korunmasını sağlayacaktır.

Özellikle, toksik kirleticiler arasında yer alan florokinolon sınıfı olan flumequin (FLQ) ve tetrasiklin sınıfı olan oksitetrasiklin (OTC) antibiyotiklerinin çevrede yüksek konsantrasyonlarda bulunması, mikroorganizmalar için ciddi tehditler oluşturarak ekosistem dengesini bozar. Düşük konsantrasyonları ise patojen ve patojen olmayan bakterilerin antibiyotik direnci kazanmasına neden olabildiğinden antibiyotik kirliliğinin kontrolünde bulundukları ortamdan uzaklaştırılmaları önem kazanmaktadır (Lu vd., 2021). İnsan kullanımından sonra, bu ilaçların yaklaşık %10-90'ı değişmeden kanalizasyona atılır. Çeşitli birimlerden çıkan bu sular uygun bir şekilde bertaraf edilmezlerse birçok toksikolojik etkiye yol açan ve antibiyotik dirençli mikroorganizmaların ortaya çıkmalarına neden olabilirler. Bu ilaçların su kütlelerine sürekli olarak boşaltılması halinde daha düşük konsantrasyonlarda bile suda yaşayan organizmalara, deniz biyoçeşitliliğe ve insan sağlığı için ciddi bir risk oluşturarak suyun kirlenmesine neden olur (Ling vd.,2023). Bu sorunları ele almak için hızlı ancak etkili bir giderim yönteminin geliştirilmesine ihtiyaç duyulmaktadır.

2.6.1.1. Flumequin (FLQ)

Flumequin, florokinolon sınıfına ait bir antibiyotiktir ve bakteriyel enfeksiyonların tedavisinde kullanılır. Özellikle hayvancılıkta, çeşitli hayvanlarda enfeksiyonların tedavisinde yaygın olarak kullanılan bu antibiyotik, insan sağlığını tehdit edebilecek ve çevreyi kirletebilecek özelliklere sahiptir. Su ekosistemlerinde, flumequin'e maruz kalan mikroorganizmalar bu antibiyotiğe karşı direnç kazanarak, sucul ekosistemlerin dengesini bozar ve doğal biyolojik çeşitliliğin kaybolmasına yol açabilir. Çevrede yüksek konsantrasyonlarda bulunan FLQ, mikroorganizmalar üzerinde toksik etkiye sahiptir (Al Masud vd., 2024). Hastalıkların tedavisi ve önlenmesinde, bakteriyel enfeksiyonları tedavi etmek için yaygın olarak kullanılan önemli bir farmasötik sınıfı antibiyotiktir (Bhatt and Chatterjee, 2022; Wierzbinski vd., 2023). Florokinolonların atıksulardaki varlığı, dirençli yapıları ve düşük çözünürlükleri nedeniyle ekosistem ve çevre için ciddi bir tehdit oluşturur (Sodhi vd., 2021). Bu farmasötiklerin en büyük sorunu, atıksu arıtma tesislerinde antibiyotiğe dirençli bakterilerin gelişimine yol açmasıdır. Antibiyotikler biyolojik olarak kolayca parçalanamadıkları için, mikroorganizmaları inhibe edebilir ve biyolojik atık su arıtma sürecinde önemli sorunlara yol açabilirler. Bu sebeple, atık su arıtma tesisinden geçen su, ozon, aktif karbon veya diğer ileri arıtma yöntemleri uygulanmadığı sürece, içme suyu olarak kullanılan musluk sularında bile bulunabilirler. Bu sorunları çözmek için, hızlı ancak etkili bir giderim yönteminin geliştirilmesi gerekmektedir. FLQ'nun özellikleri ve kimyasal yapısı Çizelge 2.1'de verilmektedir (Gul vd., 2020).

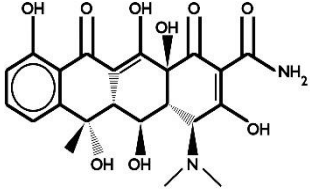
Çizelge 2.1. FLQ'nun özellikleri ve kimyasal yapısı.

Yapı	Formül	Moleküler ağırlık	pKa
	$C_{14}H_{12}FNO_3$	261,25 gr/mol	6.5, 6.2

2.6.1.2. Oksitetrasiklin (OTC)

Oksitetrasiklin, tetrasiklin sınıfına ait geniş spektrumlu bir antibiyotiktir. Bakteriyel enfeksiyonların tedavisinde yaygın olarak kullanılan bu antibiyotik özellikle hayvancılıkta yaygın olarak kullanılmaktadır. Ancak oksitetrasiklinin insan sağlığı ve çevre üzerindeki olumsuz etkileri, doğru kullanılmadığında önemli sağlık tehditleri oluşturabilmektedir. Oksitetrasiklinin aşırı ve yanlış kullanımı antibiyotik direncinin gelişmesine yol açabilir. Antibiyotik direnci, bakterilerin bu ilaçlara karşı bağışıklık kazanması sonucunda tedavi edilemeyen enfeksiyonların ortaya çıkmasına neden olur. Oksitetrasikline dirençli bakteriler, özellikle hastanelerde tedavisi mümkün olmayan enfeksiyonlara neden olarak halk sağlığını tehdit etmektedir. Antibiyotik direncinin gelişmesi, çevre kirliliği, su ekosistemlerinin zarar görmesi ve toprak sağlığının bozulması oksitetrasiklinin kontrolsüz kullanımının sonuçları arasındadır. İnsan sağlığını ve çevreyi korumak için, oksitetrasiklin ve diğer antibiyotiklerin sadece gerekli olduğunda ve doğru dozajda kullanılması önemlidir. Ayrıca, antibiyotiklerin çevreye salınımını önlemek için etkili atık su yönetim sistemleri uygulanmalı ve bu ilaçların tarımda gereksiz kullanımından kaçınılmalıdır. OTC'nin %50 ila %80'i emilmemekte ve su kaynaklarına karışmaktadır (Chin vd., 2023). Günümüzde antibiyotik içeren atıksuların arıtımı için kullanılan üç ana yöntem şunlardır: fiziksel arıtma, biyolojik arıtma ve kimyasal arıtma. Ne yazık ki, OTC'nin kimyasal kararlılığı ve antibiyotik özellikleri, bu geleneksel arıtma yöntemlerinin etkinliğini sınırlamaktadır. Bu nedenle, sulu ortama salınan OTC'nin yarattığı kirliliği gidermek için daha etkili arıtma yöntemlerine ihtiyaç duyulmaktadır. OTC'nin özellikleri ve kimyasal yapısı Çizelge 2.2'de verilmektedir (Mutahir vd., 2024).

Çizelge 2.2. OTC'nin özellikleri ve kimyasal yapısı.

Yapı	Formül	Moleküler ağırlık
	$C_{22}H_{24}N_2O_9$	460,434 g/mol

2.6.2. Ağır Metaller

Ağır metaller genellikle yüksek konsantrasyonları ve toksik özellikleriyle bilinen metal elementlerdir. Bu metaller doğada doğal olarak bulunabileceği gibi endüstriyel faaliyetler, madencilik, tarım ve diğer insan faaliyetleri sonucunda da çevreye salınabilir. Ağır metaller genellikle 5 g/cm³'ten daha yüksek yoğunluğa sahip metal elementlerdir. Bu metaller kurşun (Pb), cıva (Hg), arsenik (As), kadmiyum (Cd), krom (Cr) ve nikel (Ni) gibi elementleri içerir. Bu metaller doğrudan birincil kaynaklardan veya insan faaliyetlerinin yan ürünleri olarak çevreye salınabilir. Su kaynaklarındaki en önemli kirleticilerden biri ağır metaller olup, düşük konsantrasyonlarda bile ciddi olumsuzluk ve hastalıklara sebep olabilmektedir (Chen vd., 2020). Ağır metallerin çevre ve insan sağlığı üzerindeki etkileri son derece ciddidir ve uzun vadeli ve kalıcı hasara neden olabilir. Ağır metallerin insan vücudunda birikmesi kronik hastalıklara ve hatta ölüme neden olabilirken, çevredeki ekosistemlere de büyük zarar verebilir. Çevreyi önemli ölçüde kirlitebilen kurşun (Pb) ve kadmiyum (Cd) gibi ağır metaller, insan ve canlı türlerinin sağlığını bozabilen en zehirli elementler arasındadır. ABD Zehirli Maddeler ve Hastalık Sicili Dairesi (ATSDR) Madde Öncelik Listesinde halk sağlığı için en zehirli ilk 10 kimyasal elementler arasında yer almaktadırlar (Phouthavong vd., 2024). Buna göre, endüstriyel atık sularından toksik iyonların konsantrasyonunun uzaklaştırılması veya azaltılması zorunlu hal almıştır. Endüstriyel faaliyetler, madencilik ve tarım gibi insan faaliyetlerinden kaynaklanan ağır metallerin kontrolsüz salınımı, bu metallerin çevreye yayılmasının önünü açmaktadır. Bu nedenle ağır metallerin çevreye salınımının kontrol altına alınması, düzenli izleme sistemlerinin kurulması ve bu metallerin uygun şekilde bertaraf edilmesi büyük önem taşımaktadır. Ayrıca ağır metallerin sağlık üzerindeki etkileri konusunda toplumda farkındalık yaratılmalı ve gerekli önlemler alınmalıdır.

2.6.2.1. Kurşun (Pb)

Kurşun (Pb) doğal olarak oluşan, endüstriyel faaliyetler ve insan aktiviteleri sonucunda çevreye salınabilen bir ağır metaldir. İnsanlar için toksik olan bu metal, tarihsel olarak birçok farklı alanda kullanılmıştır. Ancak kurşunun toksik özelliklerinin insan sağlığı ve çevre üzerinde ciddi olumsuz etkileri bulunmaktadır (Liu vd., 2022).

Ayrıca kurşun, yüksek yoğunluğa sahip, kolay işlenebilen ve oldukça dayanıklı yumuşak bir metaldir. Kurşun, özellikle kurşun içeren boya, benzin ve su borularının yaygın olarak kullanıldığı dönemlerde daha büyük bir sağlık tehdidi oluşturmuştur. Günümüzde kurşun hala bazı endüstriyel ürünlerde ve eski binalarda bulunmaktadır. Kurşun ayrıca insan vücudunda birikme eğilimindedir ve uzun süreli maruziyet ciddi sağlık sorunlarına yol açabilir. Kurşuna maruz kalmanın etkileri, maruz kalma miktarına ve süresine bağlı olarak değişebilir. Çocuklar kurşuna karşı özellikle hassastır. Kurşunun çevreye ve insan sağlığına verdiği zararı en aza indirmek için çeşitli önlemler alınmaktadır. Öncelikle kurşunlu malzemelerin kullanımının sınırlandırılması ve kurşun içeren atıkların doğru şekilde bertaraf edilmesi önemlidir. Kurşun içeren boyaların eski binalardan çıkarılması, su borularındaki kurşunun değiştirilmesi ve endüstriyel atıkların düzenli olarak arıtılması gerekmektedir. Ayrıca, kurşuna maruz kalma riskini azaltmak için kişisel koruyucu önlemler alınabilir. Özellikle işyerinde kurşunla çalışanların uygun ekipman kullanmaları ve düzenli sağlık kontrolleri yaptırmaları özellikle önemlidir. Dolayısıyla kurşun hem insan sağlığı hem de çevre için büyük bir tehdit oluşturan zehirli bir metaldir (Wang vd., 2025). Uzun süreli maruziyet nörolojik, renal, kardiyovasküler ve genetik sorunlara yol açabilirken, çevredeki ekosistemlerde kalıcı hasarlar bırakabilir.

2.6.2.2. Kadmiyum (Cd)

Kadmiyum (Cd) doğada genellikle çinko, kurşun ve bakır cevherlerinde bulunan reaktif bir ağır metaldir. Genellikle açık sarı, gümüşü beyaz renkte ve oldukça reaktif olan kadmiyum, endüstriyel kullanımlarının çeşitliliği nedeniyle önemli bir çevre ve sağlık tehlikesi oluşturmaktadır. Özellikle endüstrinin çeşitli alanlarında pillerde, kaplamalarda, plastik stabilizatörlerde, pigmentlerde ve bazı metal alaşımlarında yaygın olarak kullanılmaktadır. Kadmiyum vücuda çeşitli yollarla girebilir; en yaygın maruziyet yolları soluma, gıda yoluyla alım ve deri temasıdır (Jin vd., 2024). Kadmiyumun vücuda girmesiyle başlayan biyolojik etkileri, özellikle uzun süreli maruziyetle belirginleşir. Kadmiyumun insan sağlığı üzerindeki etkileri doğrudan toksik etkilerinden kaynaklanmaktadır. Aynı zamanda kadmiyum çevreye de büyük zararlar verebilen bir elementtir. Doğada bulunan kadmiyum, endüstriyel faaliyetler nedeniyle hava, su ve toprak gibi çevresel bileşenlere karışabilir ve besin zincirindeki

organizmalarda biyolojik olarak birikmektedir. Kadmiyum birikimi bitkilerde, hayvanlarda ve nihayetinde insanlarda artar. Bu biyolojik birikim özellikle deniz organizmalarında belirgindir ve etkilerini bu organizmaları avlayan hayvanlar ve insanlar üzerinde gösterir. Bu durum ekosistem dengelerini bozmakta ve biyoçeşitliliği tehdit etmektedir (Teğin ve Saka, 2024). Uzun süreli maruziyetin etkileri geri döndürülemez olabilir, bu nedenle kadmiyum kullanımı ve salınımı üzerinde sıkı kontroller gereklidir. İnsan sağlığını ve çevreyi korumak için sanayinin kadmiyum kullanımını azaltmaya yönelik adımlar atması, alternatif malzemeler geliştirilmesi ve halkın bilinçlendirilmesi büyük önem taşımaktadır.

2.7. Literatür Araştırması

Organik ve inorganik kirleticilerin adsorpsiyon ve elektrooksidasyon yöntemleri ile giderimi çevre kirliliği ile mücadelede önemli bir rol oynamaktadır. Bu yöntemler özellikle su ve atıksu arıtma proseslerinde yaygın olarak kullanılmakta olup, çevre dostu ve sürdürülebilir teknolojiler olarak önemli fırsatlar sunmaktadır. Ancak her iki yöntemin etkinliği kullanılan malzemelerin türüne, proses koşullarına ve kirleticilerin yapısına bağlı olarak değişiklik göstermektedir. Her iki yöntemin kirletici giderimi üzerindeki etkilerine ilişkin literatürde yer alan önemli çalışmalar aşağıda yer almaktadır.

2.7.1. Adsorpsiyon Çalışmalarına İlişkin Literatür Çalışmaları

Nanoyapılı adsorbanların, geleneksel adsorban malzemelere kıyasla çevresel arıtmada çok daha yüksek verimlilik ve daha hızlı adsorpsiyon sağladığı düşünülmektedir (Gharaghani vd., 2024; Mahmoudian vd., 2023). Manyetik nanopartiküllerin adsorpsiyon sürecinde kullanılabilirliği, adsorpsiyon kapasitesini, yüzey aktivasyonunu artırarak ve kimyasal kararlılığı iyileştirerek mümkündür. Burada, modifikasyon, kolay çıkarılma ve yeniden kullanılabilirlik vurgulanması gereken en önemli konular arasındadır. Metal iyonları kullanılarak hazırlanacak süperparamagnetik malzemeler (1) süperparamagnetik özelliklere, (2) yüksek dağılıbilirliğe, (3) kararlılığa, (4) geniş yüzey alanına, (5) sentez kolaylığına, (6) ultra

ince paracık boyutuna ve (7) yzey modifikasyonuna sahiptir. Bunlar, ağır metal iyonları ieren atık suyun arıtımı iin etkili adsorbanlardır (Kermani vd., 2021; Reddy vd., 2017). Ancak, doėrudan uygulanması, (1) kaınılmaz kmelenme nedeniyle yzey alanının azalması, (2) evresel ayarlardan kaynaklanan belirsizlik, (3) toksisite, (4) sızıntı ve (5) oksidasyon gibi eřitli gerekler nedeniyle bazı durumlarda kullanımını sınırlayabilir (Gawande vd., 2015; Gharibzadeh vd., 2019). Bu durumun stesinden gelmek iin, yzeyini manyetik olmayan bir kabukla kaplamak (manyetik paracıkların organik veya inorganik malzemelerle kapsllenmesi) yukarıda belirtilen sorunların stesinden gelmek iin etkili bir yoldur. Bu ayrıca manyetik malzemenin toksisitesinde, biyouyumluluėunda bir azalmaya ve performansında bir artıřa yol aabilir (Gui vd., 2015; Harinath vd., 2017). Konuyla ilgili alıřmalarda, polimer bazlı malzemelerin adsorpsiyon zellikleri ve modifikasyon amaları iin kullanımları nedeniyle olduka tercih edilebileceėi grlmektedir (Zamani ve Izadi, 2014). Fe_3O_4 kompozit malzemeye manyetik zellikler verildikten sonra, sulu ortamdan kolayca uzaklařtırılabilir. Fe_3O_4 , uygulamalardaki birok sınırlamayı ařma ve daha etkili avantajlar saėlama potansiyeline sahiptir. Toksik olmayan silika, manyetik nanopartikller iin ok mkemmel bir yzey kaplama malzemesidir ve manyetik nanopartiklleri korumak iin harici bir koruyucu tabaka oluřturur. Ek olarak, yksek verimli kompozit malzemeler Fe_3O_4/SiO_2 zerine polimer kaplanarak sentezlenebilir. Poliakrilamid [PAM, $(C_3H_5NO)_n$] doėrusal bir zincir yapısına sahiptir ve olduka su emicidir ve hidratlandığında yumuřak bir jel oluřturma yeteneėine sahiptir. Bu zelliėinden dolayı, daha nce sentezlenmiř manyetik silikat nanomalzemesine eklenerek stn bir nanokompozite dnřtrlmřtr. eřitli varyasyonlar sonucunda Fe_3O_4/SiO_2 /PAM sentezleyerek yksek katı/sıvı arayz aktivitesine sahip gzenekli bir malzeme elde etmenin ok yksek olduėu dřnlmektedir. Benzer alıřmalarda, SiO_2 ve Fe_3O_4 'n etkileřimi malzemeye bir ekirdek-kabuk zelliėi kazandırdığından, kompozit malzemenin adsorpsiyon zelliėini artırır (Faaizatunnisa vd., 2023). Ek olarak, Fe_3O_4 nano paracıklarının asidik zeltide kararsızlıėa neden olabileceėi ve uygulamalarının sınırlı olabileceėi dřnldėnde, silika tabakası ve PAM malzemelerinin manyetik paracıėa daha fazla koruma ve etkinlik saėlayabileceėini gsteren alıřmalar vardır. Ayrıca, Fe_3O_4/SiO_2 malzeme yzeyinin dz zincirli poliakrilamid sentezleyerek modifiye edilmesi literatrde benzersiz bir durumdur. Dz zincirli polimerin saėladıėı fonksiyonel gruplar, sentezlenen malzemenin yzey

alanına özgü aktif bölgeler sağlar. Sunulan tez çalışmasında, sulu ortamda manyetik alanın etkisiyle kolayca uzaklaştırılabilen adsorban ve fonksiyonel gruplara sahip seçici bir malzeme geliştirmek ve ağır metal (Pb^{2+} , Cd^{2+}) gideriminde uygulanması amaçlandı. Bu nedenle, bu durum çalışmamızın amacını ve özgünlüğünü oluşturdu.

2.7.2. Elektrooksidasyon Çalışmalarına İlişkin Literatür Çalışmaları

Sulu çözeltilerde bulunan organik kirleticilerin gidermek veya parçalamak için adsorpsiyon, elektrokimyasal ileri oksidasyon yöntemleri (Aryee vd., 2021; Kim vd., 2020) dahil olmak üzere çeşitli yöntemler kullanılır. Elektrokimyasal ileri oksidasyon yöntemleri, antibiyotiklerin parçalanması için çok etkili bir yöntemdir (Wang ve Zhuan, 2020). Bu yöntemler, daha az kimyasal kullanımı ve daha az atık üretimi gibi özelliklerle çevre dostudur. Ayrıca, parçalanmış antibiyotiklerin zararlı yan ürünlere dönüşmesini önleyerek çevre üzerindeki etkisini azaltır. Antibiyotiklerin giderimi üzerine son zamanlarda yapılan çalışmalar incelendiğinde, poliakrilonitril (PAN) esaslı aktif karbon nanofibröz (ACF) membran ile anodik elektrokataliz işlemi ile yaklaşık %80 giderim (Shi vd., 2021), Fe/Ni@C kadife çiçeği benzeri nanokatmanların sentezlenmesi ile metal organik çerçeveler (MOF) ile 90 dakikada %95,4 giderim (Liu vd., 2024), Al_2O_3 parçacık elektrotları üç boyutlu elektrokimyasal teknoloji ile Ti-Sn-Sb/ γ -OTC oksitetrasiklinin bozunması ve toplam organik karbon (TOC) giderimi sırasıyla yaklaşık %92,0 ve %41,0'dır (Sun vd., 2019), Zn/Co/Fe tabakalı çift hidroksit (LDH) nanokompozit malzeme ile %100 OTC adsorpsiyonu (Kamal vd., 2022) gözlemlenmiştir. $MnO_2@PSS/PDDA$ Au anotunu PMS (peroksimonosülfat) ile birleştirerek, elektrokimyasal olarak aktive edilmiş bir FSM ($MnO_2@PSS/PDDA$) Au/EA-PMS sistemi oluşturuldu ve OTC'nin %92'sinin 60 dakika içinde giderilebileceği bulundu (Chen vd., 2023). Başka bir çalışmada, farklı özelliklere sahip üç yeni malzemenin (Zr-MOF kompozitleri) sulu çözeltilerden tetrasiklin hidroklorür (TCH) ve oksitetrasiklinin (OTC) adsorpsiyonunda oldukça etkili olduğu gözlemlendi. Bu deneylerde, antibiyotiklerin neredeyse tamamının 60 dakikalık adsorpsiyon süreci boyunca sudan giderildiği gözlemlendi (Kong vd., 2023). Arıtılması zor olan FLQ ve OTC gibi antibiyotikler, kararsız kimyasal yapılara sahiptir ve atık su sistemlerinde kalıcı kirleticilere dönüşme riski taşır. Sonuç olarak, bu antibiyotiklerin kimyasal kararlılığı ve özellikleri, geleneksel arıtmanın etkinliğini

sınırlamaktadır. Bu nedenle, yüksek verimlilik ve ikincil kirlilik içermeyen özelliklere sahip sulu ortamlarda antibiyotiklerin bozunması için etkili bir yöntem arayışının elektrokimyasal yöntemler olduğu söylenebilir. Bu yöntemler düşük reaksiyon süresi, yüksek verimlilik ve düşük yatırım maliyeti gibi avantajlarıyla dikkat çekmektedir (Jojoa-Sierra vd., 2017; Herraiz-Carboné vd., 2022). Ayrıca elektrokimyasal oksidasyon, özellikle antibiyotiklerin elektrokatalitik yöntemlerle oksidasyonu üzerine yapılan araştırmalar giderek artmaktadır. Özellikle, yüksek verimlilik gösteren yarı iletken (TiO_2) kaplamalı malzemeler elektrokatalitik oksidasyon çalışmalarında öne çıkmaktadır. Yüksek elektroaktiviteleri ve toksik olmayan yapıları, bu kompozit malzemelerin çevresel uygulamalarına olanak sağlamıştır. Mevcut çalışmada, aktif karbon (AC) yüzeyinde modifiye edilmiş çevre dostu bir TiO_2 kompozit malzeme, üç fazlı sistemde sulu çözeltilerden organik kirleticilerin daha hızlı ve daha verimli bir şekilde uzaklaştırılması hedeflendi. Sunulan çalışmada, FLQ ve OTC antibiyotiklerin farklı parametrelerde elektrooksidasyon (EO) ve elektrokimyasal oksidasyon (ECO) yöntemleri ile giderim performansı araştırıldı. Elektrokimyasal yöntemlerin organik kirleticiler üzerindeki giderim performansı karşılaştırmalı olarak incelendi. Bu tez çalışması, CCD-RSM optimizasyon modeline dayalı elektrokimyasal yöntemlerin etkinliğini ortaya koymuş ve çevre kirliliği sorunlarına çözüm sağlamayı hedefledi.

3. MATERİYAL VE YÖNTEM

3.1. Materyaller

Deneylerde kullanılan reaktifler ticari olarak temin edildi. Demir (III) nitrat nonahidrat ($\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$), demir(II) sülfat heptahidrat ($\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$), amonyak çözeltisi (NH_4OH %25), tetraetil ortosilikat (TEOS), polivinil pirolidon (PVP), tolüen ($\text{C}_6\text{H}_5\text{CH}_3$), magnezyum sülfat (MgSO_4), akrilamid ($\text{C}_3\text{H}_5\text{NO}$), benzoil peroksit ($\text{C}_{14}\text{H}_{10}\text{O}_4$), Aktif karbon ve Aseton (CH_3COCH_3 , %99) Sigma Aldrich tarafından tedarik edildi. Pb(II) ve Cd(II) standart çözeltileri, Titanyum tetraizopropoksit ($\text{Ti}(\text{OCH}(\text{CH}_3)_2)_4$, %98) ve saf etanol ($\text{CH}_3\text{CH}_2\text{OH}$) Merck'ten satın alındı. Saf analitik sınıf kimyasallar herhangi bir ek işlem yapılmadan alındığı gibi kullanıldı. Tüm deneylerde çalışma çözeltisini hazırlamak için ultra saf su (18,2 m Ω cm) kullanıldı.

3.2. Kullanılan Cihazlar

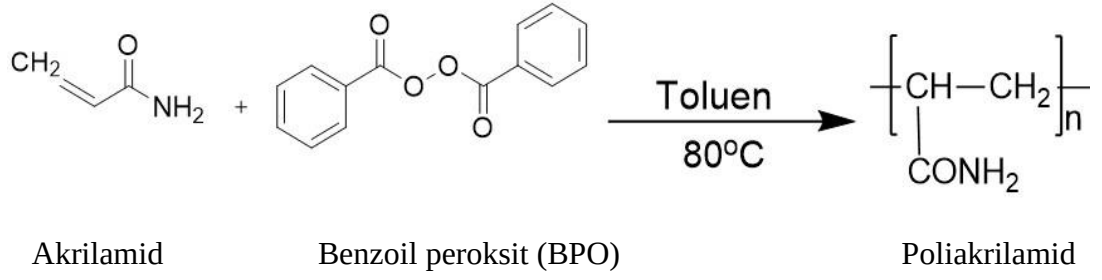
- Karıştırma işlemleri için WiseStir MSH 20A model ısıtıcılı manyetik karıştırıcı,
- Kurutma işlemleri için Binder marka etüv, Kalsinasyon işlemleri için Nüve marka MF 140 modeli 6000Watt gücünde kül fırını,
- Elektrokimyasal deneyleri için Pasco marka SF9584A modeli güç kaynağı
- TEM analizi için JEOL JEM 1220 cihazı,
- Numunelerdeki faz değişimlerinin XRD analizi için Rigaku Smart-Lab X-Ray Diffractometer cihazı,
- SEM analizleri için Jeol Jem 7600F modeli SEM cihazı,
- FT-IR analizleri için Thermo Scientific marka Nicolet iS10 modeli FT-IR Spektrometresi,
- Adsorbanın izoelektrik noktasını belirlemek için Zeta potansiyeli ve hareketlilik ölçüm cihazı (MALVERN Nano ZS90),

- Yüzey alanı ölçümleri için MICROMER ITICS GEMINI VII 2390t (BET) Cihazı,
- DSC analizi için Perkim Elmer DSC 8000 Diferansiyel Taramalı Kalorimetre cihazı,
- Elektrokimyasal bozunmada oluşan ara ürünler yüksek çözünürlüklü kütle spektrometrisi (HRMS) analizi,
- Elektrokimyasal özelliklerini belirlemek için döngüsel voltametri (CV) analizi,
- Tüm adsorpsiyon deneylerinde ayarlanabilir sıcaklık ve çalkalama hızlarına sahip ZHWY-200D İnkübatör cihazı,
- Absorbanstaki azalmayı belirlemek için Perkin Elmer Lambda 35 UV-Vis Spektrofotometre cihazı,
- pH ölçüm işlemleri için WTW pH330i model dijital pH metre,
- Ağır metal analizi için Agilent 240FS AA atomik absorpsiyon spektrofotometresi kullanıldı.

3.3. Adsorpsiyon Çalışmalarına İlişkin Deneylerin Yürütülmesi

3.3.1. Poliakrilamid (PAM) Sentezi

Deneyde çözücü olarak kullanılan toluen, içerebileceği su izlerini gidermek için susuz $MgSO_4$ ile kurutuldu. Sistem bir su banyosuna yerleştirildi ve sıcaklık $80^{\circ}C$ 'de sabitlendiğinde çözücüye akrilamid (14,21 g) eklendi ve karışım 10 dakika karıştırıldı. Daha sonra, (0,40 gram) benzoil peroksit (BPO) 20 ml toluende çözüldü ve reaksiyon ortamına eklendi. Polimerizasyon, başlatıcı (BPO) eklenmesiyle başladı. Reaksiyon sırasında, sistemden azot gazı geçirildi ve polimerizasyon yaklaşık 3 saat karıştırılarak sonlandırıldı. Toluende çözünmeyen poliakrilamid, fazla başlatıcıyı gidermek için sıcak toluen ile 3-4 kez yıkandı. Yıkanan polimer, çözücüsünü gidermek için yaklaşık 3-4 gün boyunca $60-65^{\circ}C$ 'de bir fırında kurutuldu. Sentezlenen polimerin şeması Şekil 3.1'de verilmiştir.



Şekil 3.1. PAM sentezi

3.3.2. Fe₃O₄ Sentezi

Fe₃O₄ nanopartikülleri geleneksel olarak birlikte çöktürme yöntemi ile sentezlendi. Öncelikle reaksiyona girecek kimyasal miktarları hesaplandı. Deneysel işlem 100 mL damıtılmış suda 16.16 g Fe(NO₃)₃ ve 5.56 g FeSO₄ tuzları kullanılarak başlatıldı. Bu işlem homojenlik ve parçalanabilirlik açısından maksimum etkileşimi sağlamak için bir sonikatör yardımıyla gerçekleştirildi. Homojen bir karışım elde edildikten sonra, siyaha dönene kadar %25'lik NH₃ çözeltisi eklenmiş, yavaşça pH:10'a düşürülmüş ve oda sıcaklığında iki saat karıştırıldı. Daha sonra, hazırlanan manyetik nanopartiküller bir mıknatısla çözeltiden ayrılmış, etanol ve deiyonize su ile yıkanmış ve daha sonra 60°C'de vakum altında kurutuldu. Böylece Fe₃O₄ nanopartikülleri elde edildi.

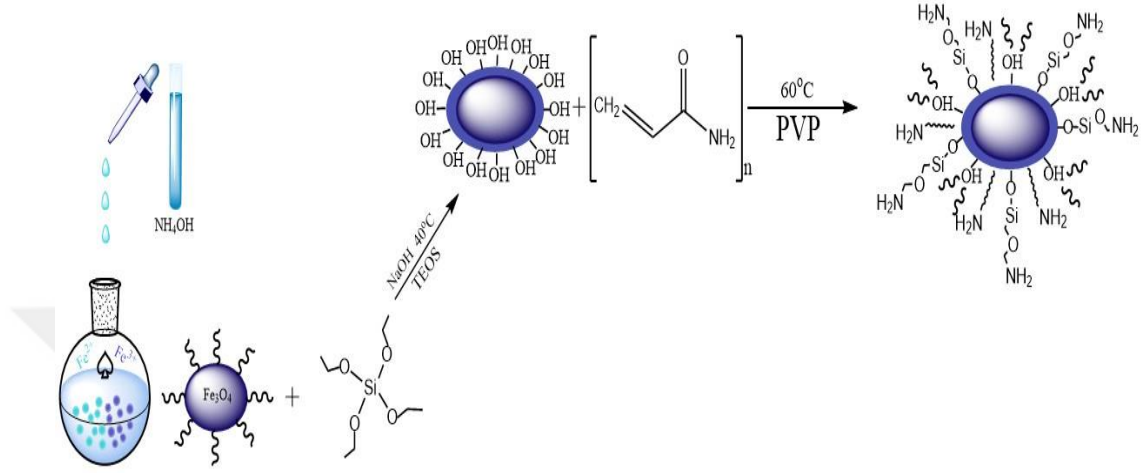
3.3.3. Fe₃O₄/SiO₂ sentezi

Fe₃O₄/SiO₂ sentezinde benzer literatür verileri dikkate alındı (Zamani ve Izadi, 2014). Buna göre, 1,0 g Fe₃O₄ nanopartikülleri 50 mL damıtılmış suya eklenerek dağıtıldı ve bu karışıma 2 mL tetraetilortosilikat (TEOS) eklendi. Daha sonra, oda sıcaklığında karıştırılırken damla damla 25 mL NaOH (0,1 M) eklendi ve 40 °C'de bir saat karıştırıldı. Son olarak, Fe₃O₄/SiO₂ nanopartikülleri saf su ile birkaç kez yıkandı ve 60 °C'de vakum altında kurutuldu.

3.3.4. Fe₃O₄/SiO₂/PAM sentezi

Yukarıda kısaca açıklanan ve bu bağlamda sentezlenen düz zincirli yapıya sahip poliakrilamid (PAM) numunesinin 0,2 g'ı alınarak 100 ml suda yaklaşık 30 dakika

çözüldü. Daha sonra bu karışıma 0,2 g $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ nanopartikülleri eklendi ve karıştırıldı. Daha sonra 0,3 g polivinilpirolidon (PVP) eklendi ve 5 saat karıştırılarak, birkaç kez saf su ile yıkandı. Elde edilen numuneler 60°C 'de vakumda kurutuldu ve karanlık ortamda saklandı. Hazırlanan polimerik malzemenin şeması Şekil 3.2'de verilmiştir.



Şekil 3.2. $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ nanokompozit malzeme sentezi

3.3.5. Adsorpsiyon Deneyleri

Sentezlenen adsorbanın adsorpsiyon verimliliğini değerlendirmek için Pb^{2+} ve Cd^{2+} iyonlarının uzaklaştırılması gerçekleştirildi. CCD-RSM ile tasarlanan adsorpsiyon deneyleri, metallerin adsorpsiyonunu etkileyen çeşitli parametrelerin modellenmesi ve optimize edilmesi için etkili bir yöntemdir. Bu parametreler başlangıç konsantrasyonu, pH değeri, adsorban miktarı, sıcaklık ve temas süresini içerir. Süspansiyon pH'ını ayarlamak için eser miktarda 0,1 M NaOH ve 0,1 M HCl kullanıldı. Tüm adsorpsiyon deneyleri 130 rpm sabit karıştırma hızına sahip bir İnkübatör cihazının yardımıyla gerçekleştirildi. Metal iyonlarının konsantrasyonları atomik absorpsiyon spektrofotometresi kullanılarak belirlendi. Adsorpsiyon kapasitesi (birim kütle başına adsorplanan metal iyonlarının miktarı) Denklem 1'e göre hesaplandı.

$$q_e = \frac{C_0 - C_e}{m} \times V \quad (1)$$

Burada, q_e sentezlenen adsorbanın adsorpsiyon kapasitesi (mg/g), C_o ve C_e sırasıyla iyonların başlangıç konsantrasyonu ve denge konsantrasyonu (mg/L), V çözelti hacmi (L) ve m adsorban miktarıdır (g).

Adsorpsiyon deneysel tasarımı ve bağımsız parametrelerin seviyeleri Çizelge 3.1'de verilmektedir. Çizelge 3.1'den görüldüğü gibi, CCD yöntemi kullanılarak parametre seviyelerinin ilişkili olduğu $-\alpha$, -1, 0, +1 ve $+\alpha$ olmak üzere beş kodlanmış seviyede çalışıldı. Her bir parametrenin $+\alpha$ en üst düzeyi, 0 ise orta düzeyi ve $-\alpha$ en düşük düzeyi ifade etmektedir.

Çizelge 3.1. CCD kodlanmış deneysel seviyeler

Parametre	Kod	Gerçek değerler				
		$-\alpha$	-1	0	+1	$+\alpha$
Adsorban Miktarı (mg)	A	20	30	40	50	60
Sıcaklık °C	B	15	20	30	40	45
Temas Süresi (dk)	C	20	30	60	90	100
pH	D	4	5	6	7	8
Konsantrasyon (mg/L)	E (Pb)	30	40	60	80	90
	E (Cd)	5	10	15	20	25

3.4. Elektrooksidasyon Çalışmalarına İlişkin Deneylerin Yürütülmesi

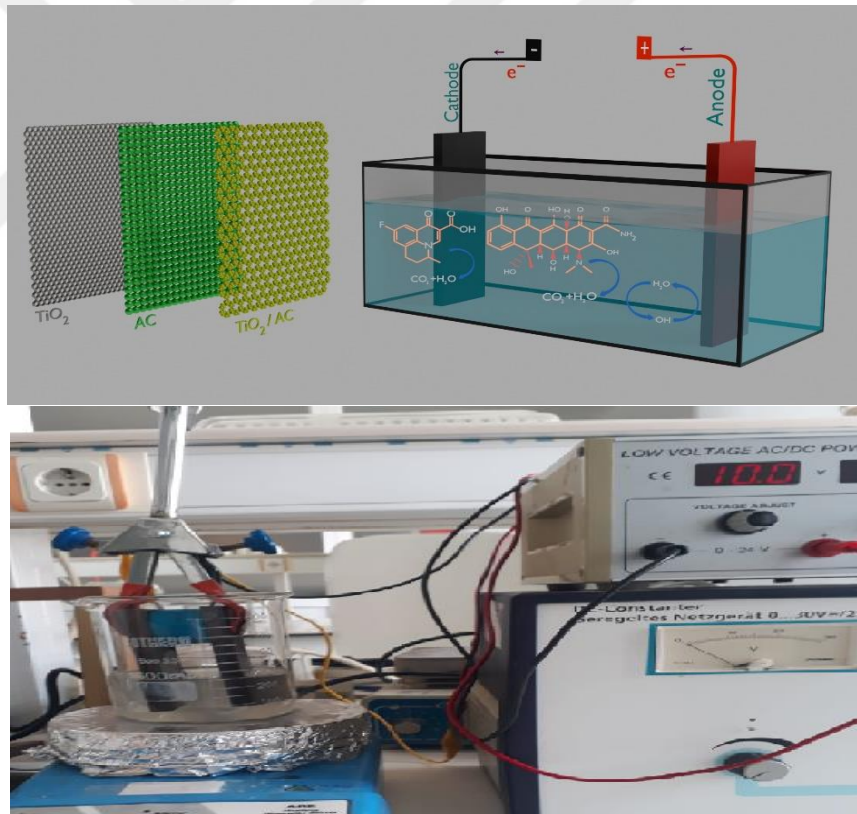
3.4.1. Katalizör Sentezi

Elektrokatalitik oksidasyon (ECO) deneylerinde kullanılacak katalizörün hazırlanması için, 40 g $Ti(OCH(CH_3)_2)_4$ başlangıçta hacimce %99,8 yüksek saflıkta 40 mL etanolde çözüldü. Elde edilen çözelti karıştırılırken sisteme 35 g AC, 3 mL damıtılmış su ve 0,3 mL aseton eklendi. Karışım üç saat karıştırıldı ve 80°C sıcaklıkta kurutuldu. Numune daha sonra oda sıcaklığında soğutuldu ve kademeli kalsinasyon işlemine tabi tutuldu. Bu işlemde, TiO_2/AC katalitik malzeme önce PLF Serisi 110-130 model kül fırınında

azot gazı altında 300°C'ye ısıtıldı ve bir saat bekletildi. Daha sonra kalsinasyon sonlandırıldı ve kalsine edilmiş ürün oda sıcaklığında soğutuldu ve ECO deneylerinde kullanıldı.

3.4.2. Elektrokimyasal Deneyleri

Sunulan tez çalışmasında, EO ve ECO çalışmaları için CCD yardımıyla iki ayrı deney serisi tasarlandı ve yürütüldü. Deneyler, 200 mL'lik bir reaktörde, 130 rpm sabit hızda ve 21°C oda sıcaklığında grafit elektrotlar (anot ve katot) kullanılarak manyetik karıştırma altında yürütüldü. FLQ ve OTC giderim oranları, 190-800 nm arasında spektrum tarayarak bir UV-Vis spektrofotometresi yardımıyla maksimum dalga boyuna göre hesaplandı. Maksimum absorbans FLQ ve OTC için sırasıyla, 247nm, 271 nm ($\lambda_{\max}$) dalga boyunda gözlemlendi.



Şekil 3.3 Elektrokimyasal deneylerde kullanılan deneysel kurulumun şematik görünümü

- Bu çalışmada, EO deneyleri grafit elektrotlar (anot ve katot) kullanılarak yürütüldü. Voltaj (A), tuz miktarı (B), temas süresi (C), pH (D) ve CCD

yardımıyla tasarlanan başlangıç konsantrasyonu (E) ana parametreler olarak kodlandı. Giderim % (R_1) bağımlı değişken olarak tasarlandı.

- ECO deneyleri 3D elektrot ilavesiyle hem grafit elektrotlar hem de partikül elektrotlar kullanılarak yürütüldü. Partikül elektrot olarak sol-jel yöntemiyle sentezlenen aktif karbon destekli TiO_2/AC katalizörü kullanılmıştır. Yeterli iletkenliği sağlamak için sabit miktarda 0,5 g/L NaCl kullanıldı. Deneyler CCD ile voltaj (A), katalizör miktarı (B), temas süresi (C), pH (D) ve başlangıç konsantrasyonu (E) olarak kodlanan parametrelerle tasarlandı. Bağımlı değişken Giderim% (R_2) olarak kodlandı.

EO ve ECO deneyleri için tasarlanan bağımsız parametre seviyeleri Çizelge 3.2 ve 3.3'te verilmiştir.

Çizelge 3.2. EO deneyleri için CCD kodlu seviyeler

Parametre	Kod	Gerçek değerler				
		$-\alpha$	-1	0	+1	$+\alpha$
Voltaj (V)	A	2	5	10	15	21
Tuz Miktarı (g/L)	B	0,10	0,25	0,37	0,50	0,67
Temas Süresi (dk)	C	5	15	30	45	65
pH	D	4	5	6	7	8
Konsantrasyon (mg/L)	E	10	20	30	40	50

CCD yöntemi ile tasarlanan deneylerde her parametre için beş farklı seviye ($-\alpha$, -1, 0, +1, $+\alpha$) kullanıldı. Bu seviyeler sırasıyla parametrelerin en düşük, düşük, orta, yüksek ve en yüksek değerlerini temsil etmektedir.

Çizelge 3.3. ECO deneyleri için CCD kodlu seviyeler

Parametre	Kod	Gerçek değerler				
		- α	-1	0	+1	+ α
Voltaj (V)	A	3	7	14	21	25
Katalizör Miktarı (g/L)	B	0,05	0,1	0,2	0,25	0,3
Temas Süresi (dk)	C	10	30	45	60	80
pH	D	3	5	7	9	11
Konsantrasyon (mg/L)	E	10	20	30	40	50

FLQ ve OTC antibiyotik ilaç atıklarının giderim çalışmaları Çizelge 3.2 ve 3.3'te belirtilen parametreler doğrultusunda elektrokimyasal yöntemler kullanılarak gerçekleştirildi. Antibiyotiklerin % giderim performansı aşağıdaki denklem kullanılarak hesaplandı:

$$\% R_{FLQ,OTC} = \frac{C_0 - C_e}{C_0} \times 100 \quad (2)$$

Burada, C_0 (mg/L) çözelti başlangıç konsantrasyonunu, C_e (mg/L) çözelti son konsantrasyonunu ve $R_{FLQ,OTC}$ ise % giderim verimini ifade eder.

3.5. Deneysel tasarım ve merkezi kompozit tasarım (CCD)

Deneysel tasarımın, yanıt fonksiyonunu etkileyen kritik parametreleri eş zamanlı olarak değiştirerek optimize etmesi ve sınırlı sayıda deneme yaparak deneysel sonucu iyileştirmesi bilinmektedir (Shi vd., 2020). CCD-RSM yöntemi, bir yanıt fonksiyonu olarak giderim performansını artırmak ve etkileyen parametrelerini optimize etmek için deney tasarımı uygulandı. Aşağıdaki formül kullanılarak CCD'de gerçekleştirilecek olan deneylerin toplam sayısı elde edildi:

$$N = 2^k + 2k + L \quad (3)$$

Burada, k bağımsız parametrelerin sayısı ve L merkezi noktaların sayısıdır. Bu denklem kullanılarak kırk dört deneme tasarlandı. Deneme sayılarından ikisi, deney hatalarını azaltmak için merkezi noktalar olarak kabul edildi. Yanıt değişkenini

bağımsız değişkenlerle ilişkilendirmek için ikinci dereceden bir polinom regresyon denklemi kullanıldı.

$$Y = \beta_0 + \sum_{i=1}^k \beta_i X_i + \sum_{i=1}^k \beta_{ii} X_i^2 + \sum_{i=1}^{k-1} \sum_{j=i+1}^k \beta_{ij} X_i X_j + \varepsilon \quad (4)$$

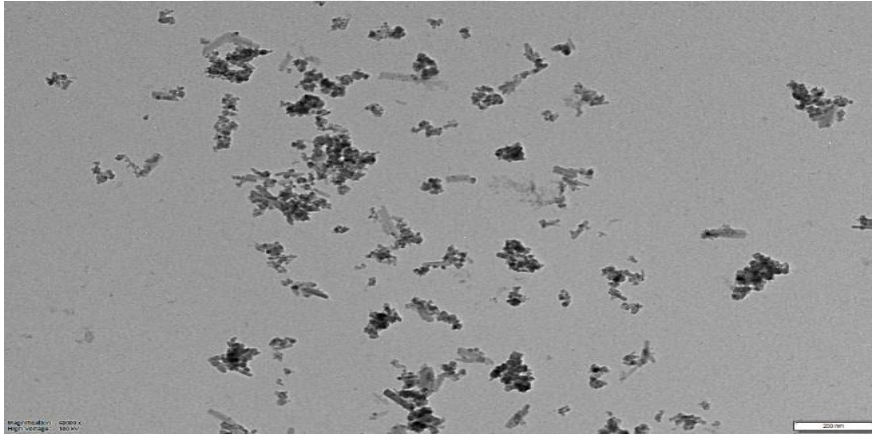
Bu denklemde, Y yanıt fonksiyonunu temsil ederken, β_0 sabit bir katsayıdır. "k" değişkenlerin toplam sayısını temsil eder, X_i ve X_j bağımsız değişkenleri (C_0 , pH, mg, T ve t) ifade eder. β_i , doğrusallığın i'inci katsayısıdır, β_{ii} ikinci dereceden katsayıyı temsil eder, β_{ij} doğrusal etkileşim katsayısıyla doğrusaldır ve ε rastgele bir hatadır. Regresyon matematiksel modeli, istatistiksel anlamlılık açısından değerlendirmek varyans analizi (ANOVA) kullanıldı. CCD-RSM, deneysel verilerin istatistiksel ve grafiksel analiz için Design Expert yazılımının 12. sürümü kullanılarak incelendi.

4. BULGULAR ve TARTIŞMA

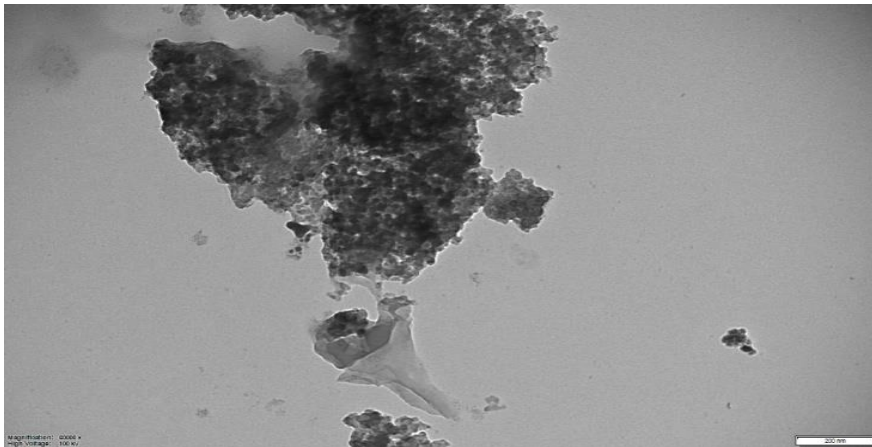
4.1. Adsorpsiyon Çalışmalarına İlişkin Bulgular

$\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ nanoadsorban malzemenin yapısını ve morfolojisini karakterize etmek için TEM, XRD, FTIR, Zeta potansiyeli ve BET analizleri yapıldı. İlgili sonuçlar aşağıda sunulmaktadır.

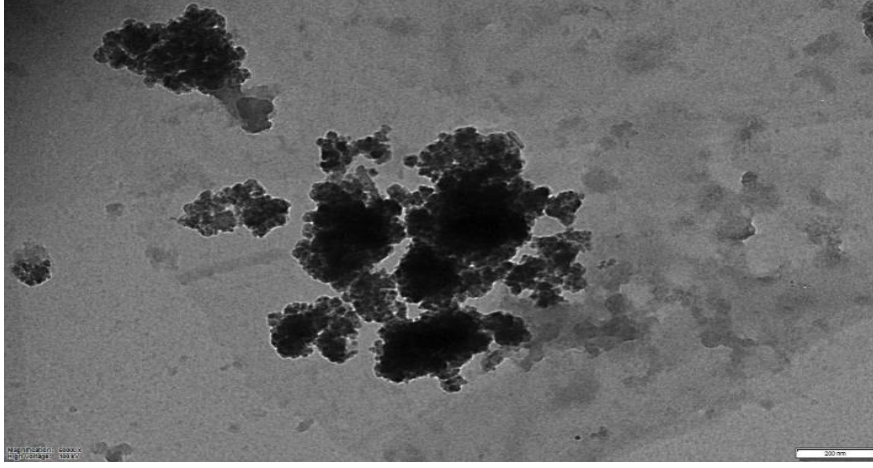
4.1.1. TEM Analizi



(a)



(b)

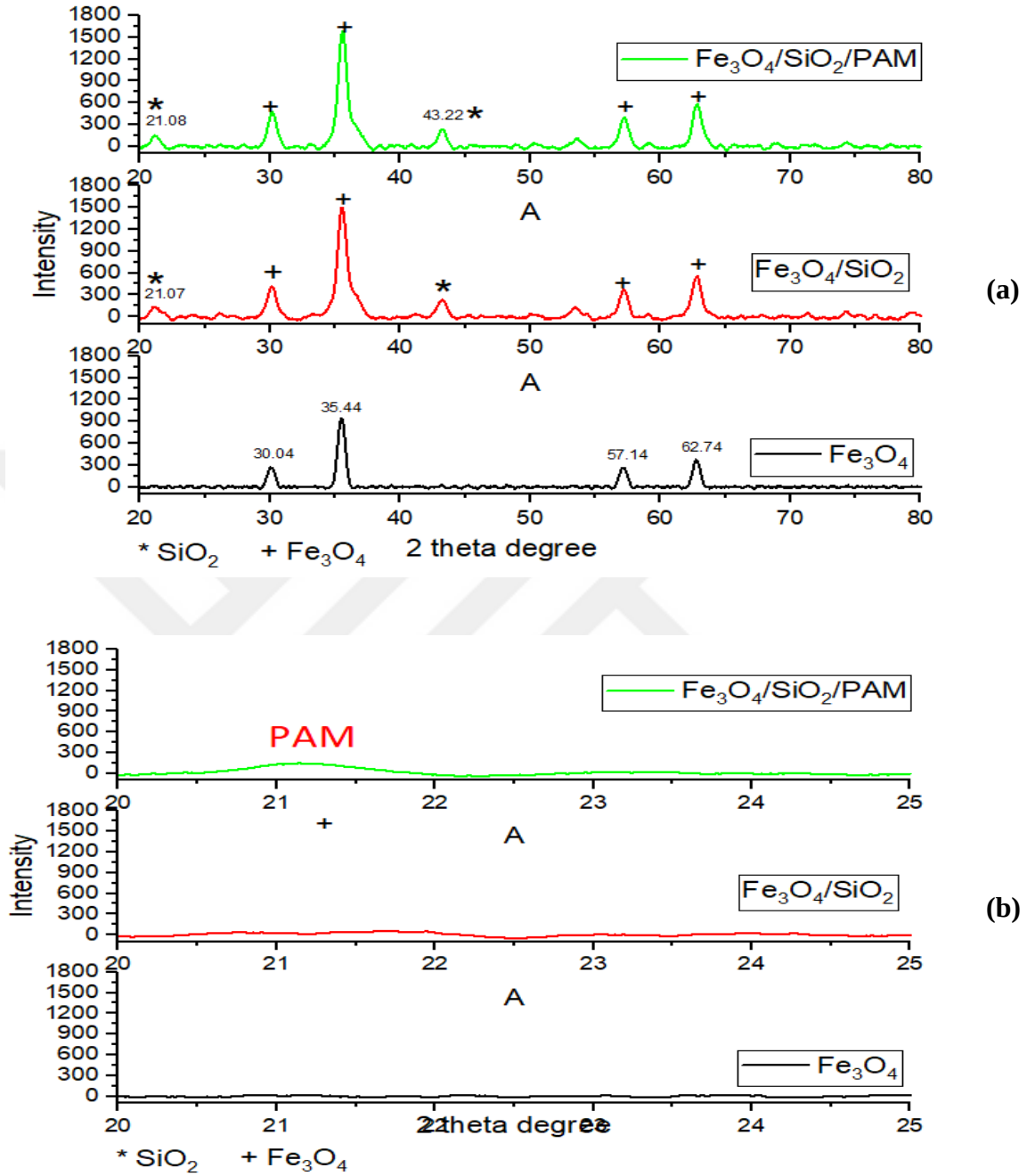


(c)

Şekil 4.1. Fe_3O_4 (a), $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ (b) ve $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ (c) nanopartiküllerin TEM görüntüleri

Şekil 4.1 tüm malzeme numunelerinin TEM görsellerini sunmaktadır. Görselden görülebileceği gibi çıplak Fe_3O_4 nano çubuk yapısını ve düzenli sıralarla daha düşük topaklanmayı göstermektedir. Ayrıca, $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ TEM görüntüsü dağınık çubuklar şeklinde Fe_3O_4 daha şeffaf görünümü ile SiO_2 matrisinin içerisine gömülü olarak dağıldığını gösterdi. TEM görüntülerinde Fe_3O_4 ve SiO_2 fazları arasındaki kontrast, elektron yoğunluklarındaki farklılıktan kaynaklanmaktadır. Fe_3O_4 , SiO_2 'den daha fazla elektron yoğunluğuna sahip olduğundan elektronları daha güçlü şekilde saçar ve görüntüde daha koyu görünür. PAM destekli $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ ($\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$) malzemeleri değerlendirildiğinde Fe_3O_4 ve SiO_2 morfolojisinin değişmediği ve PAM'in bulutsu bir görüntü oluşturduğu görüldü. Bunun nedeni ışın duyarlılığı ve düşük elektron yoğunluğudur. Işın hasarı, bulanık kenarlar, delikler ve hatta görüntüdeki polimer bölgelerinin tamamen parçalanmasıyla kendini gösterir. Daha düşük elektron yoğunluğu, daha zayıf saçılmayla sonuçlanır ve diğer fazlara kıyasla soluk ve daha az tanımlanmış bir görünüme yol açar.

4.1.2. XRD Analizi

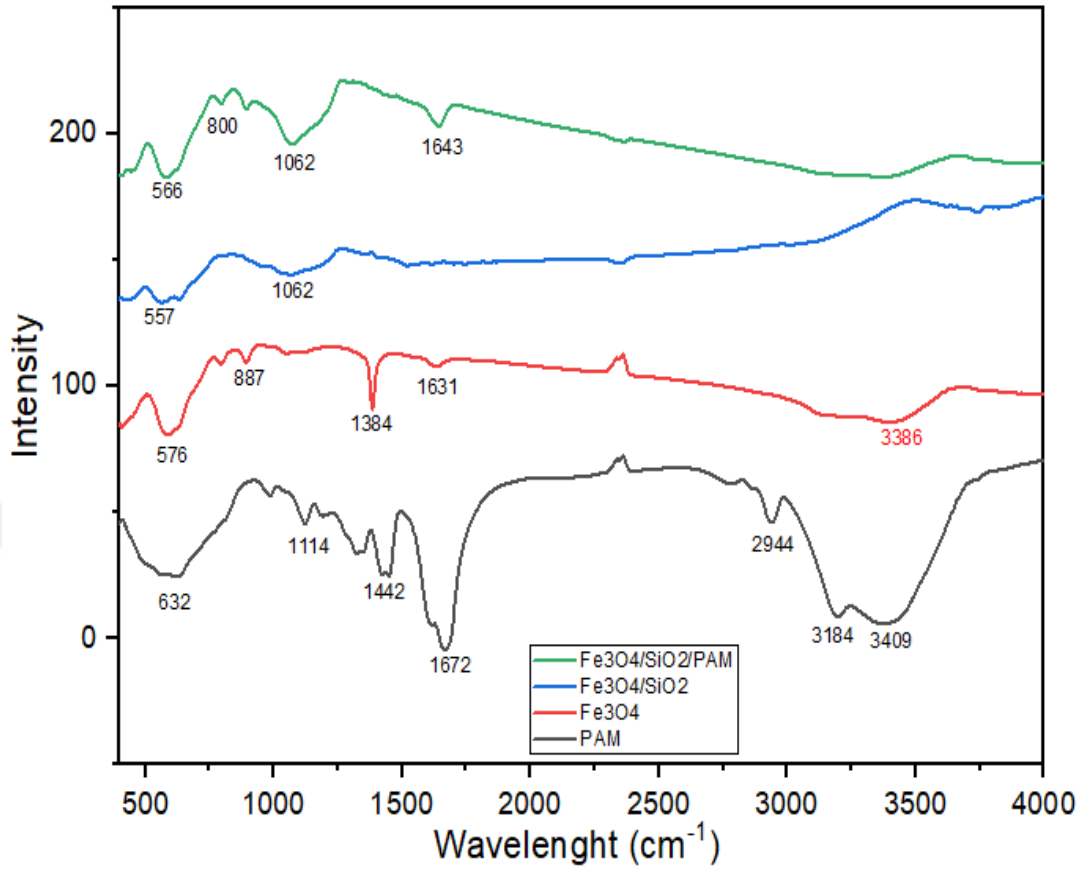


Şekil 4.2. Fe_3O_4 , $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ ve $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ nanopartiküllerin XRD analizi

Şekil 4.2.a numunelerin XRD desenini göstermektedir. Görselden görüldüğü gibi 30.04, 35.44, 57.14 ve 62.74'teki 2 teta derecelik dört tepe sırasıyla 220, 311, 511 ve 440 düzlemlili saf Fe_3O_4 'e atfedilmiştir. X-ışını analizi, sol-jel yöntemiyle yapılan nanopartiküllerin "spinel manyetit" kübik kristal yapısı olarak bilinen belirli bir atom

düzenlemesine sahip olduğunu ortaya çıkardı (Shagholani vd., 2015). Aynı zirveler, silika ($\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$) ile kaplanmış Fe_3O_4 nanopartiküllerini içeren başka bir numunede de gözlemlendi. Bu, bir dış katmanla bile nanopartiküllerin çekirdeğinin hala karakteristik Fe_3O_4 yapısını koruduğunu gösterdi. Ancak dikkate alınması gereken başka bir açı daha vardı: $2\theta = 21,07^\circ$. Bu zirve tipik Fe_3O_4 parmak izine uymuyordu. Bu ilave zirve, amorf SiO_2 'nin varlığına atfedilebilir. Bilindiği gibi Fe_3O_4 nanopartikülleri SiO_2 ile kaplanmıştır. Çekirdek Fe_3O_4 olarak kalırken, bu pikin varlığı, kaplamanın tamamen kristal (düzenli) olmadığını, ancak potansiyel olarak bazı kristal olmayan (amorf) bölgelere de sahip olduğunu göstermektedir (Xu vd., 2013). PAM için XRD analizinde piklerin daha net görülebilmesi için 20-25 derece arasındaki spektrumlar Şekil 4.2.b'de gösterilmektedir. Poliakrilamidin (PAM) X-ışını kırınım modeli, keskin tepe noktaları yerine bulanık bir "tümsek" olarak görüldü (Şekil 4.2.b). Bu "tümsek" bize polimerin kristal gibi iyi tanımlanmış, düzenli bir yapıya sahip olmadığını, bunun yerine amorf yapıdaki moleküllerin daha düzensiz, rastgele düzenlenmesine sahip olduğunu söyler.

4.1.3. FTIR Analizi

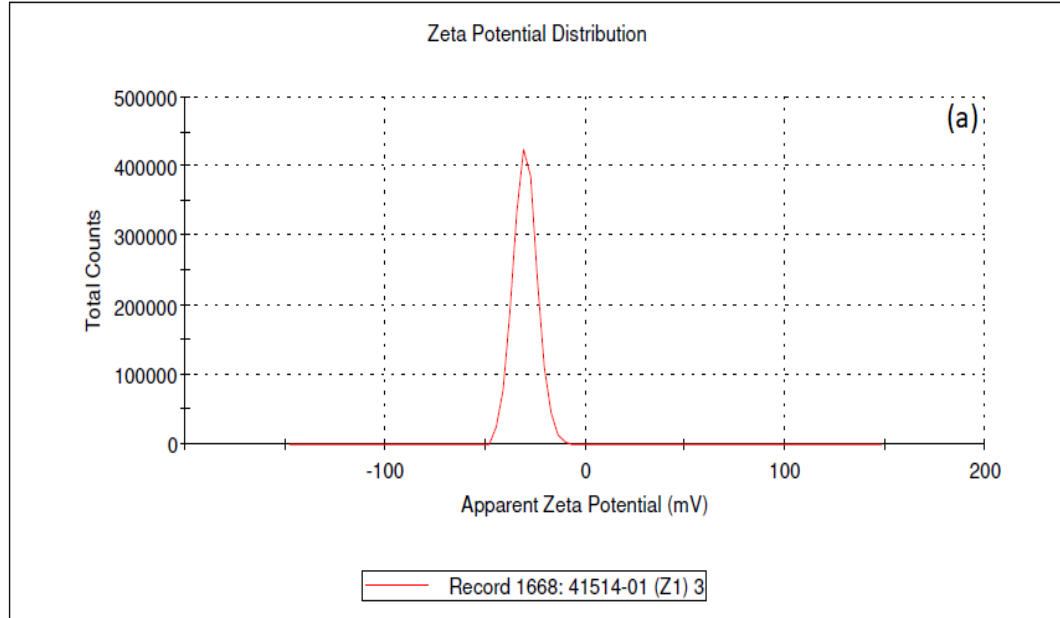


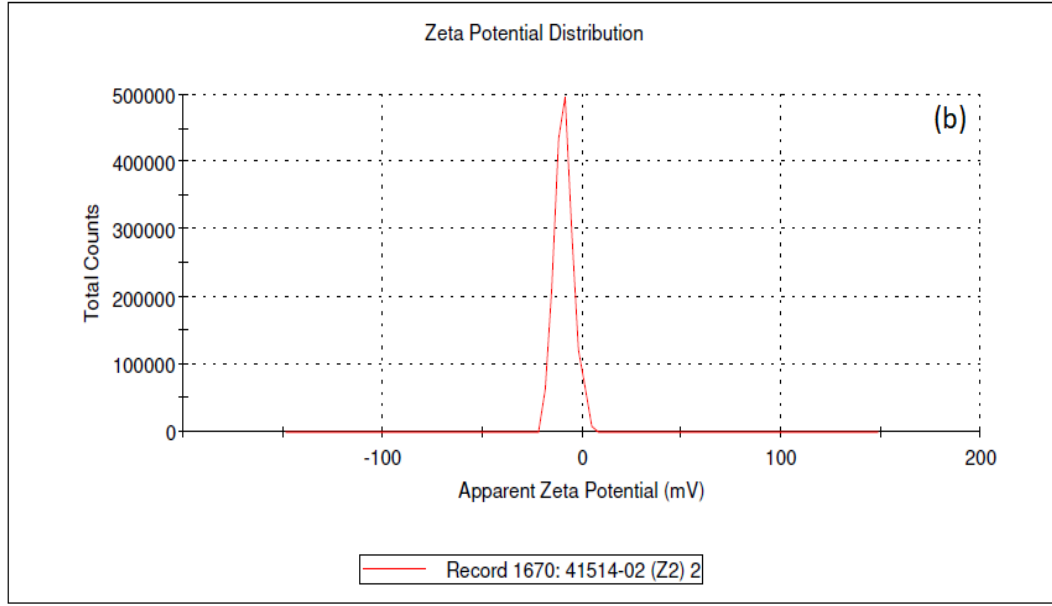
Şekil 4.3. Sentezlenen malzemelerin FTIR spektrumları

Şekil 4.3. tüm numunelerin FTIR spektrumlarını sunmaktadır. Şekil 4.3'te gösterildiği gibi sırasıyla, 632 cm^{-1} N-H bükülmesi, 1114 cm^{-1} C-N gerilmesi, 1442 cm^{-1} C=O gerilmesi (amid I), 1672 cm^{-1} NH bükülmesi, (amid II), 2944 cm^{-1} C-H gerilmesi, 3184 cm^{-1} C=O gerilme (amid III) ve 3409 cm^{-1} O-H gerilmesinden kaynaklı pikler gözlemlendi. Ayrıca, saf Fe_3O_4 'ün FTIR (Fourier Transform Infrared) spektrumunda, 576 cm^{-1} 'de Fe-O germe, 887 cm^{-1} 'de Fe-O-Fe eğme, 1384 cm^{-1} 'de çeşitli modlar (Fe-O germe ve O-Fe-O eğme dahil), 1631 cm^{-1} 'de O-H eğme ve 3386 cm^{-1} 'de O-H germe (emilmiş su) olmak üzere beş karakteristik pik görüldü. $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ 'nin FTIR (Fourier Transform Infrared) spektrumunda, 557 cm^{-1} 'deki pik, Fe-O-Si gerilmesini gösterir. Bu durum, silikon (Si) atomlarına bağlı demir (Fe) ve oksijen (O) atomları arasındaki titreşimlerden kaynaklanır. Ek olarak, 1062 cm^{-1} 'deki başka bir pik Si-O gerilmesini gösterir. Bu, malzemenin SiO_2 bileşenindeki silikon (Si) ve oksijen (O) atomları arasındaki titreşimlerden kaynaklanır. $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ 'ın FTIR spektrumlarındaki

dört pik, 566, 800, 1062 ve 1643 cm^{-1} 'de izlenebilir ve bu, yukarıdaki germe ve eğilme titreşimlerine bazı kaymalı katkılarla atfedilebilir. FTIR spektrumlarındaki pik pozisyonunda gözlenen kayma, bağ uzunluğundaki değişiklik ile ilişkilendirilebilir. Fe_3O_4 , SiO_2 ile etkileştiğinde, pikten sorumlu titreşimde yer alan Fe-O bağ uzunluğu değişebilir. Bu bağ uzunluğundaki değişiklik titreşim frekansını etkiler, bu da pik pozisyonunda bir kaymaya yol açar. Bu durumda, $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ 'de Fe-O bağ uzunluğunun saf Fe_3O_4 'e kıyasla biraz daha uzun olabileceği, bu da daha düşük bir titreşim frekansına (daha düşük dalga sayısına) ve gözlenen 557 cm^{-1} 'lik kaymaya yol açtığı görüldü.

4.1.4. Zeta Potansiyel Ölçümleri





Şekil 4.4. $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ (a) ve $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ (b) Zeta potansiyel ölçümleri

Bir negatif zeta potansiyel değeri, bir süspansiyondaki bir taneciğin veya kolloidin yüzeyinin net negatif bir yük taşıdığını gösterir. Bu net yük, tanecik yüzeyi etrafında iyonların dağılımından kaynaklanır. Genellikle, daha güçlü negatif bir değer, tanecikler arasındaki daha güçlü itme kuvvetini ifade eder, bu da onların agregasyonunu önler ve süspansiyondaki kararlılığı sağlayabilir (Liu vd., 2015). Şekil 4.4'te $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ ve $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ 'ın zeta potansiyelleri sırasıyla, -30.1 ve -9.19 mV olarak ölçüldü. Sentezlenen partiküllerin net yüzey yükü negatiftir. Bu sonuç, pozitif yüklü metal iyonlarının daha verimli bir şekilde adsorbe edilmesine olanak tanımıştır. Ayrıca, $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ yüzeyi PAM ile desteklendiğinde, net yüzey negatif yük değeri pozitif eksene doğru önemli ölçüde değişti, bu da polimerik malzeme PAM'ın etkin bir şekilde $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ yüzeyine dağıldığını gösterdi.

4.1.5. BET Analizi

BET yüzey alanı, bir malzemenin hem dış hem de iç yüzey alanının ölçüsüdür. Langmuir yüzey alanı ise bir malzemenin dış yüzey alanının ölçüsüdür, yani gaz moleküllerinin erişebildiği yüzey alanıdır. Çizelge 4.1'de görüldüğü gibi, üç malzemenin de BET yüzey alanı Langmuir yüzey alanından daha büyüktür. Bu, BET yüzey alanının malzemenin hem dış hem de iç gözeneklerinin yüzey alanını içermesi,

Langmuir yüzey alanının ise sadece dış gözeneklerin yüzey alanını içermesi nedeniyledir. En yüksek BET yüzey alanına ve Langmuir yüzey alanına sahip malzeme Fe_3O_4 'dür, onu $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ ve ardından $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ izler. Bu, Fe_3O_4 'ün en fazla gözenek ve dış yüzey alanına sahip olduğunu, diğerlerinin ise onu takip ettiğini öne sürmektedir. Ayrıca, PAM, $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ 'ye kıyasla malzemenin yüzey alanında bir artışa neden oldu. Bu sonuç, polimer malzemenin $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ ile etkileşimi sonucunda, partikül yüzeyinde daha da artan dallanmaya yol açmıştır.

Çizelge 4.1. Sentezlenen malzemelerin BET ve Langmuir yüzey alan ölçümleri

Malzeme	BET Yüzey Alanı	Langmuir Yüzey Alanı
Fe_3O_4	106.21	235.91
$\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$	47.41	95.89
$\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$	59.91	125.63

4.1.6. Adsorpsiyon Çalışmalarının İstatistiksel Analizi

$\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ nanoadsorban malzemenin $\text{Pb}(\text{II})$ ve $\text{Cd}(\text{II})$ iyonları üzerinde parametrelerin etkisi optimize edilerek, adsorpsiyon özellikleri incelendi. Deneysel parametreler ve yanıt fonksiyonu arasındaki karşılıklı ilişkileri açıklayan ikinci dereceden $\text{Pb}(\text{II})$ ve $\text{Cd}(\text{II})$ için Denklem 5 ve 6 olarak elde edildi:

$$\begin{aligned}
Y_{qe} = & 19,8045 - 2,11754 (A) - 0,927942 (B) - 0,134416 (C) + 11,6516 (D) \\
& + 1,0464 (E) - 0,00116875 (AB) + 0,00064375 (AC) \\
& - 0,05875 (AD) - 0,0189812 (AE) - 0,000341667 (BC) \\
& + 0,0053125 (BD) + 0,00135937 (BE) + 0,0080625 (CD) \\
& + 0,000521875 (CE) - 0,03125 (DE) + 0,0332219 (A^2) \\
& + 0,0148235 (B^2) + 0,000324874 (C^2) - 0,542809 (D^2) \\
& + 0,00415588 (E^2)
\end{aligned} \tag{5}$$

$$\begin{aligned}
Y_{qe} = & 2,92704 - 0,26902 (A) - 0,202896 (B) - 0,0797249 (C) + 3,11195 (D) \\
& + 0,270745 (E) - 0,000709375 (AB) + 0,000442708 (AC) \\
& - 0,0327188 (AD) - 0,00588125 (AE) + 0,00104271 (BC) \\
& + 0,0187812 (BD) + 0,00296875 (BE) + 0,00555208 (CD) \\
& - 0,000585417 (CE) + 0,0759375 (DE) + 0,00526244 (A^2) \\
& + 0,00076615 (B^2) + 2,89664e - 05 (C^2) - 0,255006 (D^2) \\
& - 0,00575025 (E^2)
\end{aligned} \tag{6}$$

Burada Y_{qe} adsorban malzemenin Pb(II) ve Cd(II) için adsorpsiyon kapasitesidir. Adsorban miktarı (A), Sıcaklık (B), Temas süresi (C), pH (D) ve Başlangıç konsantrasyonu (E) kodlanmış bağımsız değişkenlerdir. İkinci dereceden model, değişkenlerin ağır metal adsorpsiyon kapasiteleri üzerindeki etkilerini tanımlamak için seçildi. Çizelge 3.1'de, CCD'de tasarlanan kırk dört deneme çalışmaları tamamlanarak, Pb(II) ve Cd(II) için adsorpsiyon kapasiteleri belirlendi (Çizelge 4.2). CCD-RSM'den elde edilen modelin değerlendirilmesi için her iki ağır metalin varyans analizi (ANOVA) testi yapıldı (Çizelge 4.3,4.4).

Çizelge 4.2. Pb(II) ve Cd(II) adsorpsiyon kapasiteleri

	Bağımsız Parametreler						Adsorpsiyon kapasitesi (q _e)	
	Adsorban Miktarı (mg)	Sıcaklık (°C)	Temas Süresi (min)	pH (-)	Konsantrasyon Pb(II) (mg/L) Cd(II) (mg/L)		Pb(II) (mg/g)	Cd(II) (mg/g)
1	50	20	30	7	80	20	37,37	7,35
2	30	40	90	7	80	20	66,54	13,22
3	40	30	60	6	60	15	33,65	6,22
4	30	40	30	7	80	20	65,08	11,70
5	40	30	20	6	60	15	30,21	6,68
6	50	20	90	5	40	10	18,52	4,06
7	30	40	90	7	40	10	31,75	6,64
8	40	30	60	6	60	15	33,46	6,25
9	50	20	30	5	80	20	39,12	6,66
10	30	40	30	5	80	20	65,70	8,57
11	50	40	90	5	40	10	18,32	3,93
12	30	40	90	5	40	10	25,70	5,37
13	50	40	30	7	40	10	19,52	4,60
14	50	40	30	7	80	20	39,57	7,55
15	50	20	90	7	80	20	39,82	7,54
16	40	30	60	6	30	5	18,09	2,62
17	30	40	30	7	40	10	32,83	6,87
18	30	20	90	7	40	10	33,00	5,57
19	50	40	90	5	80	20	38,60	6,81
20	50	40	30	5	80	20	38,65	6,97
21	40	30	60	4	60	15	21,34	3,49
22	30	20	30	5	80	20	62,04	10,29
23	60	30	60	6	60	15	23,35	5,06
24	30	20	90	5	80	20	64,87	6,18
25	40	45	60	6	60	15	33,78	7,15
26	20	30	60	6	60	15	65,87	12,32
27	40	30	100	6	60	15	32,31	6,80
28	40	15	60	6	60	15	34,81	6,50
29	50	40	90	7	40	10	19,57	4,16
30	50	40	30	5	40	10	18,02	3,84
31	30	20	90	5	40	10	25,37	4,83
32	50	40	90	7	80	20	39,35	9,03
33	40	30	60	6	90	25	51,31	9,40
34	30	20	30	7	80	20	65,58	11,27
35	30	20	90	7	80	20	64,29	9,98
36	30	40	90	5	80	20	64,62	9,13
37	50	20	90	7	40	10	19,55	3,79
38	50	20	90	5	80	20	38,50	5,53
39	40	30	60	8	60	15	36,96	7,64
40	30	40	30	5	40	10	28,25	4,72
41	30	20	30	7	40	10	31,83	5,83
42	50	20	30	5	40	10	18,67	3,66
43	30	20	30	5	40	10	29,45	5,33
44	50	20	30	7	40	10	19,75	3,63

Çizelge 4.3. Pb(II) adsorpsiyon kapasitesi için modelin ANOVA'sı

Source	Sum of Squares	df	Mean Square	F-value	p-value
Model	11126,17	20	556,31	95,03	< 0.0001 significant
A-Adsorban Miktarı	3591,78	1	3591,78	613,57	< 0.0001
B-Sıcaklık	0,2140	1	0,2140	0,0366	0,8500
C-Temas Süresi	0,0019	1	0,0019	0,0003	0,9858
D-pH	96,85	1	96,85	16,54	0,0005
E-Konsantrasyon	6562,79	1	6562,79	1121,09	< 0.0001
AB	0,4371	1	0,4371	0,0747	0,7871
AC	1,19	1	1,19	0,2039	0,6558
AD	11,05	1	11,05	1,89	0,1828
AE	461,17	1	461,17	78,78	< 0.0001
BC	0,3362	1	0,3362	0,0574	0,8127
BD	0,0903	1	0,0903	0,0154	0,9022
BE	2,37	1	2,37	0,4041	0,5313
CD	1,87	1	1,87	0,3198	0,5772
CE	3,14	1	3,14	0,5360	0,4715
DE	12,50	1	12,50	2,14	0,1575
A ²	294,33	1	294,33	50,28	< 0.0001
B ²	24,18	1	24,18	4,13	0,0538
C ²	0,7406	1	0,7406	0,1265	0,7253
D ²	7,86	1	7,86	1,34	0,2585
E ²	30,41	1	30,41	5,19	0,0323
Residual	134,64	23	5,85		
Lack of Fit	134,62	22	6,12	339,01	0,0428 not significant
Pure Error	0,0180	1	0,0180		
Cor Total	11260,81	43			

Çizelge 4.4. Cd (II) adsorpsiyon kapasitesi için modelin ANOVA'sı

Source	Sum of Squares	df	Mean Square	F-value	p-value
Model	261,65	20	13,08	23,45	< 0.0001 significant
A-Adsorban Miktarı	64,80	1	64,80	116,15	< 0.0001
B-Sıcaklık	4,34	1	4,34	7,78	0,0104
C-Temas Süresi	0,2382	1	0,2382	0,4269	0,5200
D-pH	24,26	1	24,26	43,48	< 0.0001
E-Konsantrasyon	138,79	1	138,79	248,80	< 0.0001
AB	0,1610	1	0,1610	0,2887	0,5962
AC	0,5645	1	0,5645	1,01	0,3249
AD	3,43	1	3,43	6,14	0,0210

Çizelge 4.4. (Devam) Cd (II) adsorpsiyon kapasitesi için modelin ANOVA'sı

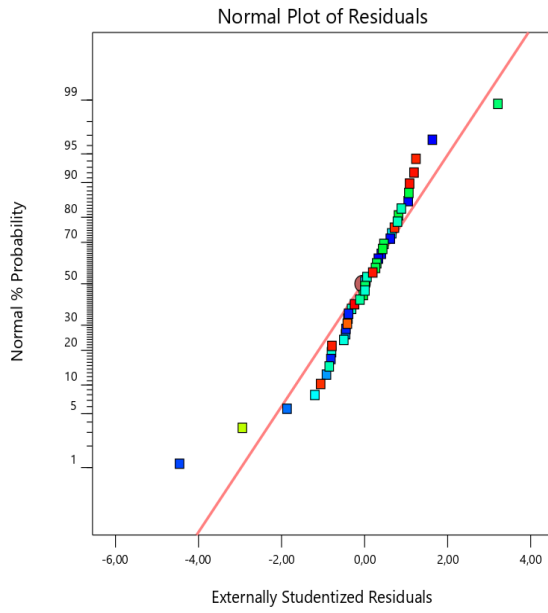
Source	Sum of Squares	df	Mean Square	F-value	p-value
AE	2,77	1	2,77	4,96	0,0360
BC	3,13	1	3,13	5,61	0,0266
BD	1,13	1	1,13	2,02	0,1683
BE	0,7051	1	0,7051	1,26	0,2725
CD	0,8878	1	0,8878	1,59	0,2198
CE	0,2468	1	0,2468	0,4423	0,5126
DE	4,61	1	4,61	8,27	0,0085
A ²	7,14	1	7,14	12,79	0,0016
B ²	0,0646	1	0,0646	0,1158	0,7368
C ²	0,0062	1	0,0062	0,0110	0,9172
D ²	1,68	1	1,68	3,00	0,0964
E ²	0,5326	1	0,5326	0,9548	0,3387
Residual	12,83	23	0,5579		
Lack of Fit	12,83	22	0,5832	1296,00	0,0219 not significant
Pure Error	0,0005	1	0,0005		
Cor Total	274,48	43			

Parametrelerin önemini ve CCD-RSM'den elde edilen modelin yeterliliğini netleştirmek için varyans analizi (ANOVA) kullanıldı. Her iki metal için yürütülen çalışmalarda parametrelerin önemi ve ikinci dereceden regresyon modelinin yeterliliği küçük bir p değeriyle doğrulandı (< 0.0001). F ve p değerleri dikkate alınarak model katsayılarının anlamlılığı değerlendirildi (Ebrahimpour vd., 2023). Modelin F değerlerinin 95,03 (Pb) ve 23,45 (Cd) yüksek olması modelin anlamlı olduğunu gösterdi. Model kategorisi, toplam varyansın büyük bir bölümünü açıklamaktadır ve istatistiksel olarak anlamlıdır. Modelin p değerlerinin 0,05'ten küçük olması modelin bağımsız değişkenlerinin yanıt değişkeni üzerinde önemli bir etkiye sahip olduğunu göstermektedir. Özellikle, Pb adsorpsiyon kapasitesi için A, D, E, AE, A², E² ve Cd için A, B, D, E, AD, AE, BC, DE, A² seçilen değişkenler ve bazı etkileşimler anlamlı model terimleridir. Bazı değerlerin 0,1000'den büyük olması model terimlerinin anlamlı olmadığını gösterdi. Pb (R^2 0,99) ve Cd (R^2 0,95) yüksek belirleme katsayıları yanıtın gerçek ve tahmin edilen değerleri arasında iyi korelasyon uyum olduğunu gösterdi. Dolayısıyla, bağımsız değişkenlerin veya parametrelerin yanıt üzerinde önemli etkileri dikkate alındığında modelin deneysel verilere uyduğunu söyleyebiliriz.

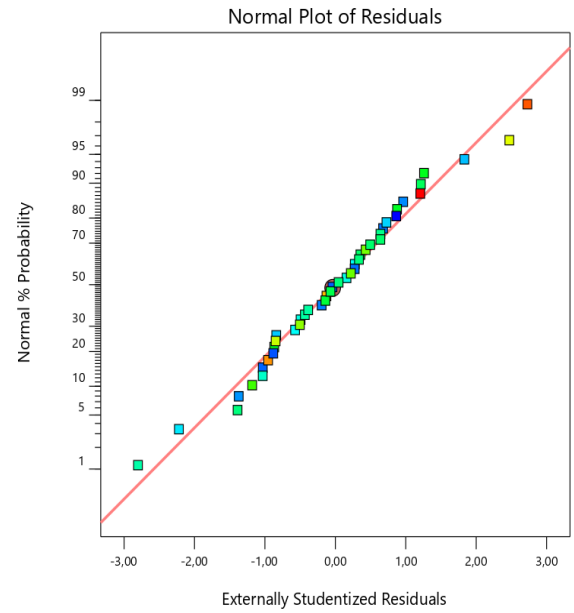
Çizelge 4.5. Pb(II) ve Cd(II) adsorpsiyon kapasitesi istatistiksel parametreleri

Pb(II)				Cd(II)			
Std. Dev.	2,42	R ²	0,9880	Std. Dev.	0,7469	R ²	0,9533
Mean	37,16	Adjusted R ²	0,9776	Mean	6,70	Adjusted R ²	0,9126
C.V. %	6,51	Predicted R ²	0,9460	C.V. %	11,15	Predicted R ²	0,8100
		Adeq Precision	30,8465			Adeq Precision	20,1063

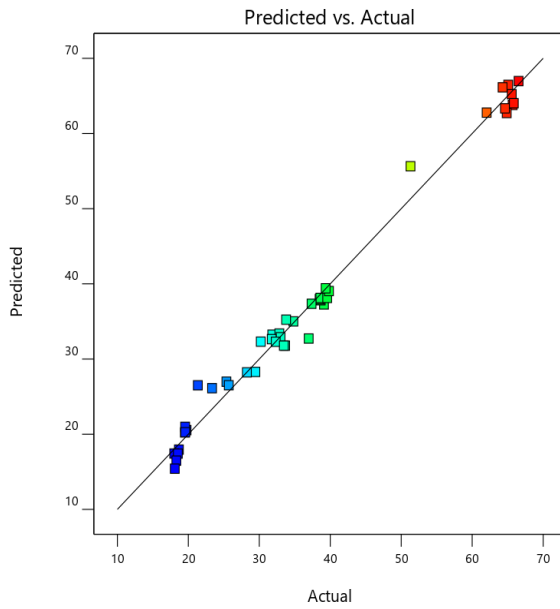
Modelin standart sapması 2,4 (Pb) ve 0,7 (Cd) belirlenerek, Çizelge 4.5'te gösterilmektedir. Pb(II) için 0,9460'lık Tahmini R², 0,9776'lık Düzeltilmiş R² ile, Cd (II) 0,8100'lük Tahmini R², 0,9126'lık Düzeltilmiş R² ile makul düzeyde uyum içindedir. Aralarındaki farkın 0,2'den az olması, modelin tahmin edilen değerlerinin yanıt değerlerine olan yakınlığını gösterdi. Her iki metal için sırasıyla 30,847 (Pb) ve 20,106 (Cd) doğruluk oranları, yüksek sinyal-gürültü oranına işaret eder. Bu oranların 4'ten yüksek olması modelin istatistiksel olarak uygunluğunu gösterdi.



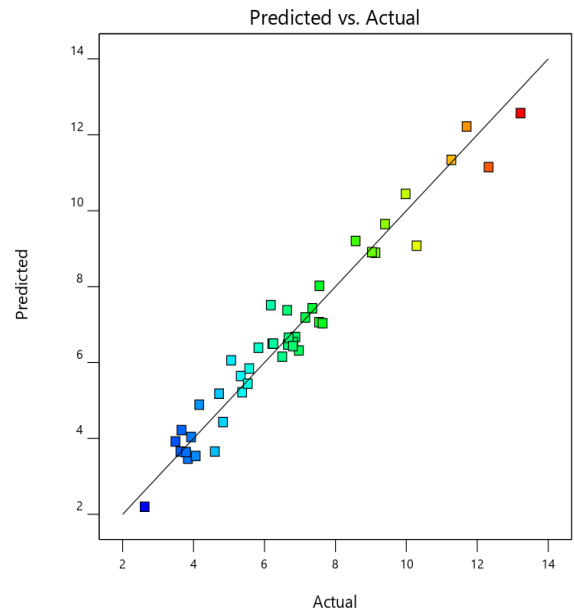
(a)



(b)



(c)



(d)

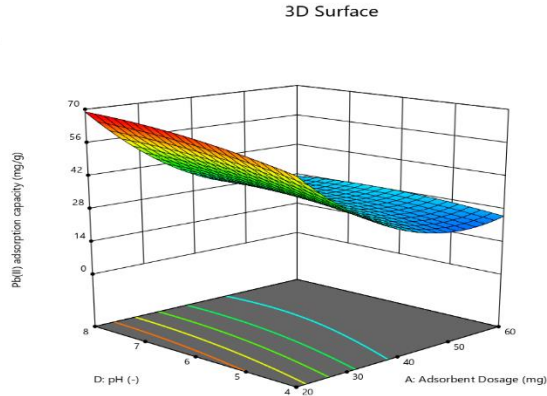
Şekil 4.5. Pb(II) ve Cd(II) adsorpsiyon kapasitesi kalıntılarının normal % olasılık grafiği (a), (b) Pb(II) ve Cd(II) adsorpsiyon kapasitesinin tahmin edilen ve gerçek değerler arasındaki yakınlığı gösteren grafik (c),(d)

Şekil 4.5(a,b) görsel olarak deney kapasitesi kalıntılarının normal yüzde olasılık grafiğini göstermektedir. Bu grafikler, deneylerde elde edilen verilerin normal dağılıma ne kadar uyduğunu belirtir. Noktaların yaklaşık olarak çizgi üzerinde yer

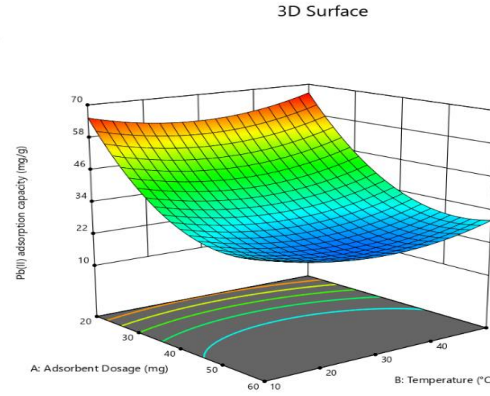
alması, verilerin normal dağılıma daha yakın olduğunu gösterir (Manzar vd., 2021). Bu durum verilerin normal bir dağılıma sahip olduğunu doğrulamaktadır. Tahmin edilen değerler ile gerçek değerler arasındaki uyumu Şekil 4.5(c,d)'ye göre değerlendirebiliriz. Noktaların çizgiye yakın bir şekilde dağılması adsorpsiyon kapasitelerinin gerçek değerleri ile tahmin edilen değerler arasında bir uyum olduğunu, uzak olması ise sapma olduğunu gösterir. Sonuç olarak, her iki grafik de görsel analiz için faydalıdır ve deney sonuçlarını yorumlamak için önemli bilgiler sağladı.

4.1.7. Seçilen Parametrelerin Adsorpsiyon Üzerindeki Etkileri

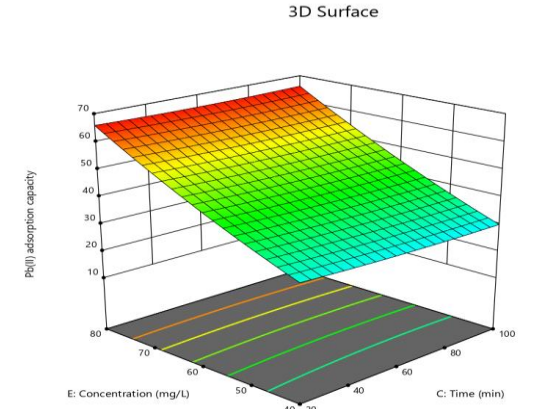
$\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ nanoadsorban malzemenin $\text{Pb}(\text{II})$ ve $\text{Cd}(\text{II})$ adsorpsiyon kapasiteleri üzerindeki etkileri 3 boyutlu yüzey grafiklerle analiz edildi. Parametreleri eş zamanlı olarak optimize edilmesi ve tasarlanmış değişkenlerin yanıt fonksiyonu üzerindeki etkileri Şekil 4.6'da gösterilmektedir.



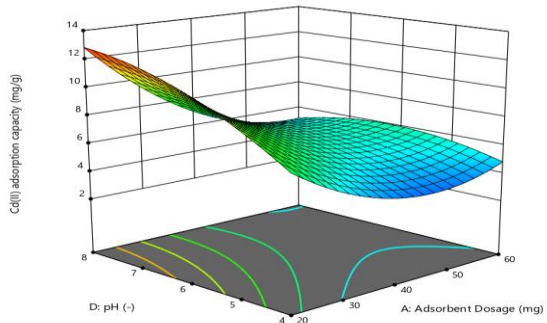
(a)
3D Surface



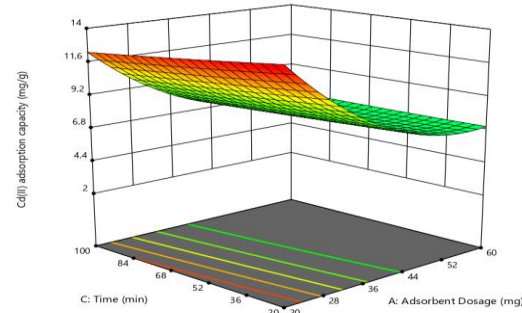
(b)
3D Surface



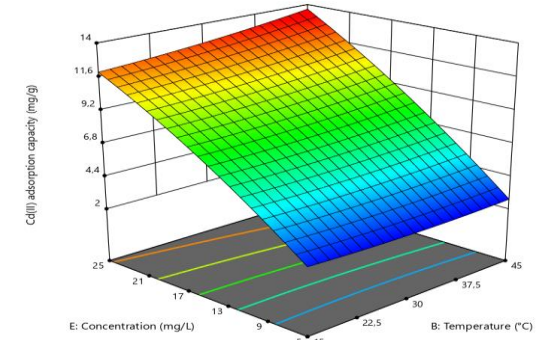
(c)
3D Surface



(d)



(e)



(f)

Şekil 4.6. Parametrelerin Pb(II) ve Cd(II) adsorpsiyon kapasiteleri üzerindeki etkilerini gösteren 3D yüzey grafikler

4.1.7.1. Başlangıç pH Etkisi

$\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ nanoadsorban malzemenin $\text{Pb}(\text{II})$ ve $\text{Cd}(\text{II})$ adsorpsiyonu üzerindeki pH etkisi görsel 4.6a ve 4.6d'de gösterilmektedir. Çözelti pH'ı, nanoadsorban üzerindeki aktif bölgelerin mevcutluğunu ve etkinliğini belirleyerek adsorbanların q_e değerlerini etkileyen önemli bir parametredir. Her iki ağır metalin optimum koşullarının belirlenmesi için CCD-RSM tarafından 4-8 pH aralığı tasarlandı. pH değerlerinin 4'ten 8'e doğru artırılmasıyla, $\text{Pb}(\text{II})$ için adsorpsiyon kapasitesinde 21 mg/g'dan 37 mg/g'a, $\text{Cd}(\text{II})$ için 3,5 mg/g'dan 7,6 mg/g'a artış gözlemlendi. $\text{Pb}(\text{II})$ ve $\text{Cd}(\text{II})$ adsorpsiyon kapasiteleri, pH'ın 4'ten 8'e artmasıyla artan ve ardından azalan bir eğilim gösterdi. Maksimum q_e değeri pH 7'de elde edildi ve adsorpsiyon kapasitesi pH 7'nin üzerinde doygunluğa ulaştı. Yüksek pH değerlerinde çeşitli metal kompleks iyonların veya $\text{Pb}(\text{II})$ ve $\text{Cd}(\text{II})$ çökeltilerinin oluşumu sonucu q_e değerlerinde azalma görüldü. Diğer bir pH aralığı etkinliğini belirleyen faktör adsorban yüzey yüküdür. Zeta potansiyeli ölçümleri dikkate alındığında, nötr pH'da negatif adsorban yüzeyi ile pozitif yüklü ağır metal iyonları arasında etkileşim olduğunu ortaya koydu. Bu nedenle, her iki metal için pH 7 optimum değeri, bu etkileşimi doğrulayan bir durumu yansıtır.

Ayrıca, düşük pH değerlerindeki düşük giderim, ortamdaki protonların varlığı ile açıklanabilir. Polimer kaplı malzemenin yüzeyinin düşük pH'da pozitif olması, aynı yük nedeniyle adsorbent-adsorbat etkileşimlerinin düşük olması ve pH arttıkça yüzey yükünün pozitiften negatife kayması ve bunun da pozitif bir etkiye sahip olması beklenir. Pozitif yüklü metal iyonlarının adsorpsiyonunu etkiler. Tüm deneylerde, Pb adsorpsiyon performansının aynı parametrelerde Cd 'den daha yüksek olduğu gözlemlendi. Bu durum, Pb 'nin atomik yarıçapının ve kovalent yarıçapının Cd değerlerinden daha yüksek olmasıyla ilişkilidir. Benzer çalışmalar, Pb 'nin daha düşük hidrasyon yarıçapı ve daha yüksek elektronegatifliğinin diğer metallere kıyasla daha yüksek adsorpsiyon performansı ile sonuçlandığını bildirmektedir (Kothavale vd., 2023). Bu sonuçlar elde ettiğimiz verilerle paralellik gösterir.

4.1.7.2. Adsorban Miktarı Etkisi

Adsorpsiyon kapasitesini etkileyen ve kritik öneme sahip diğer bir parametre adsorban miktarıdır. Adsorban miktarının etkisi Şekil 4.6b ve 4.6e'de belirtildiği gibi 20-60 (mg) aralığında çalışıldı. Optimum koşulların belirlenmesi için adsorban miktarının 20 ile 60 (mg) arasında arttırılmasıyla Pb(II) için adsorpsiyon kapasitesinde 66 mg/g'dan 24 mg/g'a, Cd(II) için 12 mg/g'dan 5 mg/g'a azalma gözlemlendi. Her iki metal için 30 mg'da adsorpsiyon kapasitesi maksimum değere ulaştı. Yani, adsorban miktarındaki azalmayla, Pb(II) ve Cd(II) q_e değerlerinde bir artış görüldü. Ayrıca, adsorban miktarının arttırılması, Fe₃O₄/SiO₂/PAM yüzeyinde mevcut bağlanma bölgelerinde doygunluk ile sonuçlandı. Yüksek miktarda adsorban kullanımında karşılaşılan diğer bir önemli durum, adsorbanların bir araya toplanması sonucu yüzey alanının azalmasıdır (Choi vd., 2024). Dolayısıyla, adsorban miktarının arttırılması q_e değerlerini etkilemeyecektir.

4.1.7.3. Başlangıç Konsantrasyon Etkisi

Başlangıç konsantrasyonun adsorpsiyon kapasitesi üzerindeki etkisini belirlemek için Pb(II) 30-90 (mg/L), Cd(II) 5-25 (mg/L) konsantrasyon aralığında çalışıldı. Adsorpsiyon kapasitesi Pb(II) için konsantrasyonun arttırılmasıyla 18 mg/g'dan 51 mg/g'a, Cd (II) için 3 mg/g'dan 9 mg/g'a artış olduğu gözlemlendi. Her iki metal için adsorpsiyon kapasiteleri konsantrasyonun artmasıyla artan ve ardından azalan bir eğilim gösterdi. Pb(II) ve Cd(II) için sırasıyla 80 mg/L ve 20 mg/L konsantrasyonda adsorpsiyon kapasitesinin maksimum değere ulaştığı görüldü ve optimum koşullar olarak kabul edildi. Bu durum konsantrasyon arttıkça adsorban aktif bölgelerinin sayısının artmasıyla açıklanabilir (Ece, 2021). Ayrıca, yüksek konsantrasyonlarda adsorpsiyon kapasitesindeki azalma bağlanma bölgelerinin doygunluğa ulaşmasıyla ilişkilendirilebilir.

4.1.7.4. Temas Süresi Etkisi

Görsel 4.6c ve 4.6e'de görüldüğü gibi, temas süresi adsorpsiyon kapasitesi üzerinde etkili olan parametrelerden biridir. Optimum koşulların belirlenmesi için temas süresi 20-100 (dk) aralığında çalışıldı. Pb(II) ve Cd(II) için adsorpsiyon kapasitesi 20 dk

temas süresi sonucu sırasıyla 30,2 mg/g ve 6,6 mg/g olduğu görüldü. Temas süresi arttıkça, adsorpsiyon kapasitesinin artarak 90 dk'da maksimum q_e değerine ulaştığı görüldü. Desorpsiyon prosesinden kaynaklı her iki metalin 100 dk'da adsorpsiyon kapasiteleri azaldı. Temas süresinin artmasıyla birlikte, adsorban yüzeyinde doymuşlaşma ve desorpsiyon süreci gerçekleşmiştir (Ebrahimpour vd., 2023). Sonuç olarak adsorpsiyon işlemi dengeye ulaştı.

4.1.7.5. Sıcaklık Etkisi

Sıcaklık, adsorpsiyon kapasitesinin artmasını veya azalmasını sağlayarak süreci etkileyebilir, bu nedenle q_e değerleri üzerinde önemli bir etkiye sahiptir. Nano-adsorban malzemenin adsorpsiyon kapasitesi üzerindeki sıcaklık etkisi görsel 4.6b ve 4.6f'de gösterilmektedir. Sıcaklık etkisi 15-45°C aralığında araştırılarak, her iki metal için optimum değer 40°C olarak belirlendi. Adsorpsiyon kapasitesinin 40°C'nin üzerinde azaldığı görüldü ve bu durum kemisorpsiyonun gecikmesinden kaynaklanmaktadır (Sebastian vd., 2018). Aynı zamanda, metal iyonlarının kinetik enerjisi sıcaklığın artmasıyla artar. Bu durumda metal iyonları ile $Fe_3O_4/SiO_2/PAM$ adsorban malzemenin aktif bölgeleri arasındaki bağın engellenmiş veya kırıldığını anlayabiliriz. Dolayısıyla, adsorban ve adsorbat arasındaki elektrostatik etkileşim bozulmuştur.

4.1.8. Parametrelerin Optimizasyonu

$Fe_3O_4/SiO_2/PAM$ nano-adsorban malzemenin adsorpsiyon kapasitesini arttırmak ve adsorpsiyonu etkileyen beş parametreyi optimize etmek için CCD-RSM optimizasyon işlemi uygulandı. Adsorpsiyon kapasitesi için istenilen hedefin maksimum ve diğer bağımsız parametrelerin belirli aralıklar içinde ayarlanmasıyla optimum koşullar elde edildi. Her iki metal için tasarlanan deney setinde adsorban miktarı (30 mg), 7 pH değeri, sıcaklık (40°C), başlangıç konsantrasyonu Pb (80 mg/L), Cd (20 mg/L) ve 90 (dk) temas süresi optimum koşullar olarak belirlendi. Maksimum adsorpsiyon kapasitesi önerilen modellerle hesaplanarak, Pb(II) ve Cd(II) için sırasıyla 66,54 ve 13,22 mg/g olarak bulundu. Optimizasyon sonuçlarından elde edilen ($Pb_{Desirability} = 1$ ve $Cd_{Desirability} = 0,94$) değerler, tahmin edilen değerlerin deneysel verilere uyumlu olduğunu gösterdi.

4.1.9. Fe₃O₄/SiO₂/PAM Adsorpsiyon Kapasitesinin Diğer Adsorbanlarla Karşılaştırılması

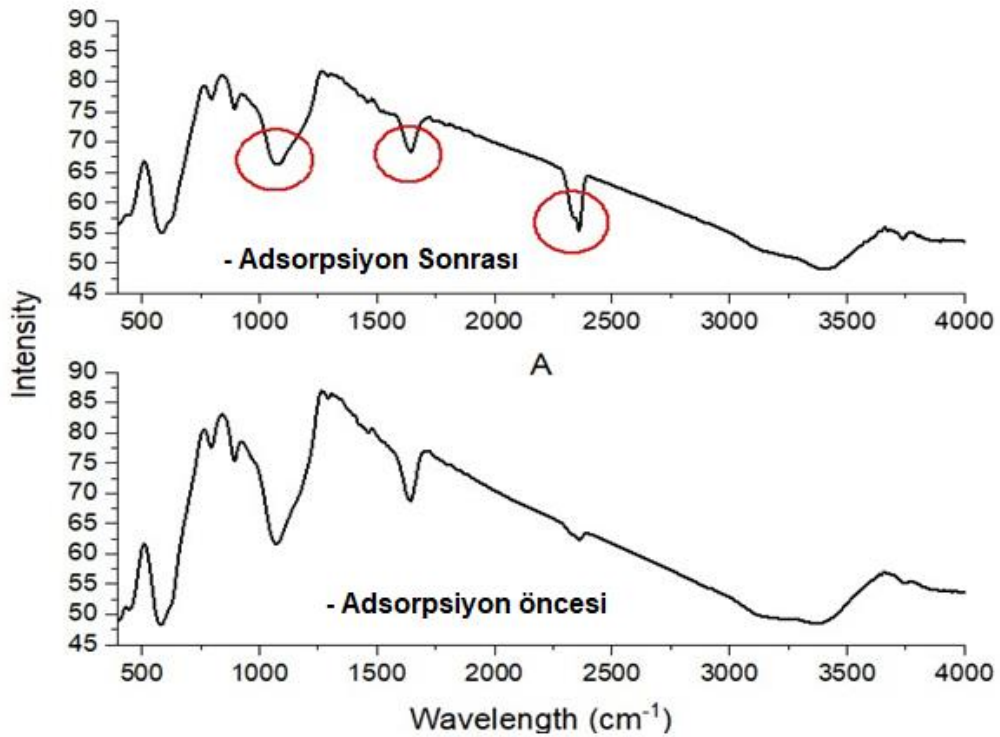
Fe₃O₄/SiO₂/PAM nanoadsorban malzemenin Pb(II) ve Cd(II) iyonları üzerindeki adsorpsiyon kapasitesi performansını değerlendirmek için, diğer adsorbanlar ile bir karşılaştırma yapıldı. Çizelge 4.6'da gösterilen çeşitli adsorbanların q_e değerlerindeki farklılıklar, adsorbanların fonksiyonel grupları ve yüzey alanı gibi özelliklerinden kaynaklanmaktadır. Diğer adsorbanlara kıyasla, Fe₃O₄/SiO₂/PAM malzemesinin adsorpsiyon kapasitesi oldukça yüksektir. Yapısında bulunan SiO₂, malzemenin fiziksel özelliklerini artırarak asit ve bazlara karşı direnç sağlamıştır. Özellikle, –OH ve –NH₂ fonksiyonel grupları adsorban malzemeye spesifik aktif bölgeler kazandırmıştır. Bu durum, adsorban ve metal iyonları arasındaki afinitenin daha yüksek olduğunu gösterdi. Dolayısıyla, q_e değerlerini dikkate alarak, Fe₃O₄/SiO₂/PAM adsorban malzemenin Pb(II) iyonlarına karşı daha büyük bir afiniteye sahip olduğunu söyleyebiliriz.

Çizelge 4.6. Adsorpsiyon kapasitesinin diğer adsorbanlarla karşılaştırılması

Adsorban	Adsorpsiyon kapasitesi (mg/g)		Referans
	Pb(II)	Cd(II)	
MNPs-NH ₂	40,1	-	(Tan vd., 2012)
Fe ₃ O ₄ /cyclodextrin polymer	64,5	27,7	(Badruddoza vd., 2013)
Floresan sensör FSCHP	11,0	7,5	(Ding vd., 2015)
OP/Fe ₃ O ₄ magnetic composite	54,94	-	(Shafiee vd., 2019)
Fe ₃ O ₄ @CPS	25,9	10,7	(Lan vd., 2014)
Fe ₃ O ₄ -Phenolics	-	9,6	(Sebastian vd., 2018)
γ-Fe ₂ O ₃ -carbonaceous materials	20,1	2,88	(Ohno vd., 2011)
Fe ₃ O ₄ -GS	27,95	27,83	(Guo vd., 2014)
Fe ₃ O ₄ /SiO ₂ /PAM	66,54	13,22	Bu çalışma

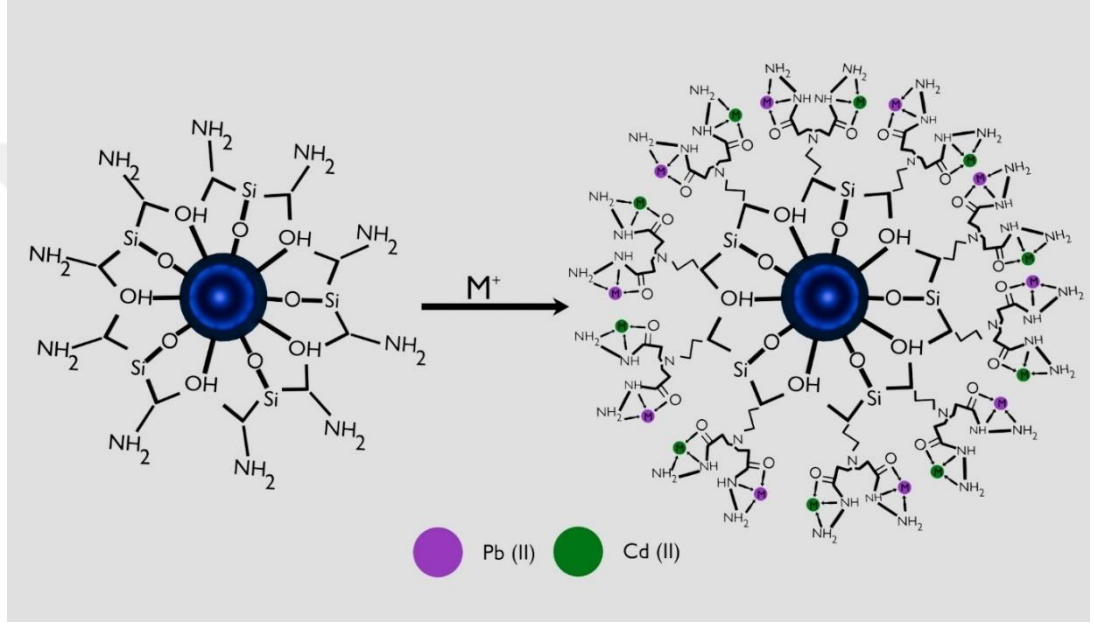
4.1.10. Adsorpsiyon Mekanizması

Şekil 4.7’de $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ örneğinin adsorpsiyondan önce/sonra FTIR spektrumunu göstermektedir. Şekil 4.7’den görülebileceği gibi, spektrumda yaklaşık 1640 cm^{-1} ve 3400 cm^{-1} civarında yeni pikler bulunmaktadır. Bu pikler, su moleküllerinin varlığını işaret etmektedir. Ayrıca, bazı piklerin yoğunlukları adsorpsiyon sonrası değişmiştir. Örneğin, yaklaşık 1030 cm^{-1} civarındaki pikin yoğunluğu azalmıştır. Bu yoğunluktaki azalma, adsorbat moleküllerinin adsorbentin yüzeyindeki fonksiyonel gruplarla etkileşiminden kaynaklanabilir. Son olarak, bazı piklerin konumu adsorpsiyondan sonra kaymıştır. Yaklaşık 1540 cm^{-1} civarındaki pik biraz daha yüksek bir dalga sayısına kaymıştır. Bu kayma, adsorbent ile adsorbat molekülleri arasındaki hidrojen bağlanma etkileşimlerindeki değişikliklerden kaynaklanabilir.



Şekil 4.7. $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ 'ın FTIR spektrumları

Pb^{2+} ve Cd^{2+} metal iyonlarının $Fe_3O_4/SiO_2/PAM$ üzerine adsorpsiyonu için adsorpsiyon mekanizması Şekil 4.8'de tasarlandı. Ağır metal iyonlarının elektrostatik etkileşim, iyon değişimi ve koordinasyon yoluyla adsorbe edilebildiği bildirilmektedir (Wang vd., 2021). Sunulan çalışmada, metal iyonlarının karbonil ve amino grupları gibi elektronca zengin fonksiyonel gruplarla koordineli bağlar oluşturduğu düşünülmektedir. Bu fonksiyonel gruplar ve ağır metal iyonları arasındaki güçlü etkileşim, sentezlenen nanoadsorbent malzemenin yüksek adsorpsiyon kapasitesine sahip olduğunu gösterdi. Bu sonuçlar FTIR sonuçlarıyla uyumludur.



Şekil 4.8. Adsorpsiyon Mekanizması

4.1.11. Adsorpsiyon İzotermi

Pb^{2+} ve Cd^{2+} adsorpsiyonuna ilişkin izoterm verilerini değerlendirmek ve en iyi modeli bulmak için yaygın olarak kullanılan Langmuir ve Freundlich modelleri kullanıldı. Bu izotermi, adsorban ve metal iyonları arasındaki dengeyi incelemenin yanı sıra adsorpsiyon kapasitesini ve denge parametrelerini belirlemek için bilgi sağlar. Langmuir adsorpsiyon izoterm modeli, adsorbe edilen moleküllerin etkileşim olmaksızın homojen yüzeyler üzerinde tek katmanlı adsorpsiyonla uzaklaştırıldığını belirtir. Langmuir izoterminin doğrusal formülü aşağıdaki gibidir:

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{K_L q_{max}} + \frac{C_e}{q_{max}} \quad (7)$$

Burada C_e (mg/L) denge konsantrasyonu, q_e (mg/g) adsorbe edilen adsorbat miktarı, q_{max} maksimum adsorpsiyon kapasitesi, K_L (L/mg) Langmuir sabitidir. Freundlich izotermi, maddelerin bir adsorbanın heterojen yüzeyine fiziksel adsorpsiyonunu tanımlayan bir modeldir. Langmuir izoterm modeli ile karşılaştırıldığında, Freundlich modeli tek katmanlı adsorpsiyonla sınırlı olmayan daha geniş bir kapsama sahiptir ve aşağıdaki denklemle temsil edilir:

$$\ln q_e = \frac{1}{n} \ln C_e + \ln K_f \quad (8)$$

Burada q_e (mg/g) dengede adsorbe edilen adsorbat miktarı, C_e (mg/L) dengede adsorbat konsantrasyonu, K_F (L/mg) adsorpsiyon kapasitesi ve n adsorpsiyon sürecinin yoğunluğunu temsil eden sabittir.

Yukarıda açıklanan her iki adsorpsiyon izoterm modeli, nanoadsorban malzemenin adsorpsiyon davranışını ve her iki metal ile nanoadsorbanların yüzey özellikleri arasındaki rekabetçi etkiyi incelemek için kullanılmıştır. Bu modellerden elde edilen sonuçlar Çizelge 4.7'de verilmiştir.

Çizelge 4.7. Pb^{2+} ve Cd^{2+} adsorpsiyon izoterm parametreleri

İzoterm	Pb(II)	Cd(II)
Langmuir		
q_{max} (mg g ⁻¹)	66,54	13,22
K_L (L mg ⁻¹)	0,25	0,45
R^2	0,98	0,97
Freundlich		
K_F (L mg ⁻¹)	0,07	0,72
N	0,95	1,45
R^2	0,90	0,91

Çizelge 4.7 incelendiğinde Langmuir modelinin Freundlich modelinden daha yüksek olduğu görüldü. Bu da nanoadsorbentler üzerinde Pb^{2+} ve Cd^{2+} adsorpsiyonunun homojen tek tabaka adsorpsiyonu şeklinde gerçekleştiğini gösterdi. Ayrıca,

hesaplanan R_L değerleri '0' ile '1' arasındadır ve bu da adsorpsiyonun pozitif olduğunu gösterir (Hashemi vd., 2023). Langmuir modeline göre, Pb^{2+} ve Cd^{2+} için elde edilen q_{max} değerleri sırasıyla 66,54 ve 13,22 mg/g'dır. Daha yüksek K_L değeri, adsorban ile metal iyonları arasında daha yüksek bir afinite olduğunu gösterir. Bu çalışmada, Cd (II)'nin K_L değeri diğer metalden daha yüksek bulundu.

4.1.12. Adsorpsiyon Kinetiği

Pb^{2+} ve Cd^{2+} adsorpsiyon kinetiği iki farklı kinetik model ile test edilmiştir: yalancı birinci derece ve yalancı ikinci derece. Bu modeller, bir adsorbatın bir adsorban yüzeyine bağlanma hızını ve bu sürecin zamanla nasıl değiştiğini tanımlar. Ayrıca adsorban performansını değerlendirmek ve adsorpsiyon kapasitesini tahmin etmek için yaygın olarak kullanılmaktadır (Guo vd., 2014). Adsorpsiyon kinetik deneyleri, her iki metal için 30 mg adsorban miktarı ve pH 7 optimum değerleri dikkate alınarak farklı konsantrasyon ve sıcaklıklarda gerçekleştirildi. Deneyler her 15 dakikada bir numune alınarak toplam 90 dk boyunca 130 rpm'de karıştırıldı. Adsorpsiyon kinetik modelleri yalancı birinci dereceden Denklem (9) ve yalancı ikinci dereceden Denklem (10) olarak aşağıda gösterilmiştir.

$$\log (q_e - q_t) = \log q_e - \frac{k_1}{2.303} t \quad (9)$$

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{t}{q_e} \quad (10)$$

Burada k_1 (min^{-1}) yalancı birinci dereceden ve k_2 ($\text{g mg}^{-1} \text{min}^{-1}$) yalancı ikinci dereceden hız sabitleridir, q_e ve q_t sırasıyla dengede ve herhangi bir t zamanında (mg g^{-1}) nanopartiküller üzerine adsorbe edilen metal iyonlarının miktarıdır. Log ($q_e - q_t$)'ye karşı t grafiği ve t/q_t 'ye karşı t grafiği çizilerek k_1 , k_2 ve q_e değerleri elde edilmiştir.

Adsorpsiyon mekanizmasını araştırmak amacıyla, deneysel verileri test etmek için sözde birinci dereceden kinetik model ve sözde ikinci dereceden kinetik model kullanıldı. Her iki modelden hesaplanan korelasyon katsayıları ve diğer parametreler

Çizelge 4.8'de verilmiştir. Bu mekanizmalardan, birinci dereceden kinetik modelin deneysel değerlere yeterince uymadığı görüldü ($R^2 < 0.91$).

Çizelge 4.8. Pb(II) ve Cd(II) adsorpsiyonunun yalancı birinci dereceden ve ikinci dereceden kinetik modelleri

		Birinci dereceden			İkinci dereceden		
$q_e \text{ exp}$ (mg/g)		k_1 (1/dk)	q_{e1} (mg/g)	R^2	k_2 (g/mg/dak)	q_{e2} (mg/g)	R^2
Pb(mg/L)							
40	32,34	0,08	31,2	0,98	0,01	31,74	0,99
60	46,77	0,08	42,29	0,95	0,009	47,61	0,99
80	62,37	0,061	67,58	0,96	0,004	64,51	0,99
Cd(mg/L)							
10	6,39	0,045	6,6	0,97	0,01	6,78	0,99
15	9,29	0,04	9,15	0,93	0,02	9,67	0,99
20	13,22	0,02	13,58	0,95	0,008	12,9	0,99

Çizelge 4.8'de görüldüğü gibi, ikinci dereceden model için hesaplanan denge sorpsiyon kapasitesi ile polimer kaplı manyetik malzeme için $q_{e,calc}$ ve $q_{e,exp}$ değerleri birbirine çok yakındır. Ayrıca, birinci dereceden hız denkleminin doğrusal regresyon analizi değerleri R^2 değerinin (0,94) altında iken, ikinci dereceden hız denkleminin doğrusal regresyon analizi yüksek bir R^2 değeri (0,99) vermiştir. Bu da $Fe_3O_4/SiO_2/PAM$ üzerine Pb^{2+} ve Cd^{2+} adsorpsiyonunun yalancı ikinci derece modelini takip ettiğini gösterir (Nasiri vd., 2022; Maleky vd., 2022).

4.1.13. Termodinamik Modelleme

Termodinamik modelleme, termodinamiğin temel ilkelerini kullanarak sistemlerin davranışlarını matematiksel olarak açıklayan bir modelleme sürecidir. Adsorpsiyon sürecinin verimliliğini ve performansını değerlendirmek için kullanılır. Bu çalışmalar, adsorbanın adsorbatı ne kadar etkili bir şekilde tutabileceğini ve adsorpsiyon işleminin hangi koşullar altında en verimli olduğunu belirlemeye yardımcı olur (Sarangi ve Rajkumar, 2024). Bu nedenle, adsorpsiyon sürecinin termodinamik çalışmaları, adsorpsiyonun daha verimli ve sürdürülebilir bir şekilde kullanılmasına katkıda

bulunur. Adsorpsiyonun entalpi değişimi (ΔH), Gibbs serbest enerji değişimi (ΔG) ve entropi değişimi (ΔS) aşağıdaki denklemler kullanılarak hesaplanmıştır:

$$K_D = \frac{q_e}{c_e} \quad (11)$$

$$\Delta G = -RT \ln K_D \quad (12)$$

$$\ln K_D = \frac{\Delta S}{R} - \frac{\Delta H}{RT} \quad (13)$$

Burada K_D denge dağılım sabiti, $T(K)$ çözeltinin mutlak sıcaklığı ve R ($8.314 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$) evrensel gaz sabitidir. $\ln K_D$ 'ye karşı $1/T$ grafikleri çizilerek, eğim ve kesişimden sırasıyla ΔH° ve ΔS° değerleri hesaplanmıştır.

Çizelge 4.9. Pb(II) ve Cd(II) adsorpsiyonunun termodinamik parametreleri

	ΔH° (KJ/mol)	ΔS° (KJ/mol.K)	ΔG° (KJ/mol)			R^2
			298	303	313	
Pb(II)	69.157	259.8	-7.454	-8.691	-12.725	0,95
Cd(II)	70.639	233.70	1.729	680.16	-3.018	0,93

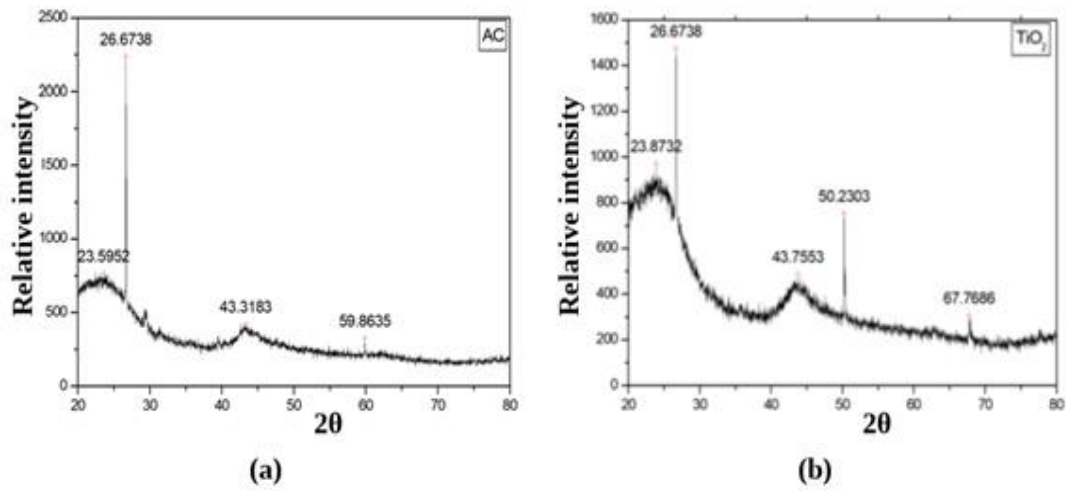
Çizelge 4.9'da görüldüğü gibi, ΔH° Pb^{2+} adsorpsiyonu ve Cd^{2+} adsorpsiyonu için pozitifdir. Bu, her iki metal adsorpsiyonunun da endotermik olduğunu gösterir (Sahmoune, 2019). Pozitif bir ΔS° değeri, metal iyonları ve $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ arasındaki olası etkileşimler sırasında adsorpsiyon sürecinin rastgeleliğinin azaldığını gösterir. Ayrıca, negatif ΔG° değeri, çalışılan belirli sıcaklıklarda adsorpsiyon sürecinin kendiliğinden uygulanabilirliğine işaret eder (Pasalari vd., 2017). Pb^{2+} için negatif ΔG° değerlerinin artan sıcaklıkla birlikte artması, bu iyonların $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ üzerine adsorpsiyonunun yüksek sıcaklıklarda daha olumlu sonuçlar verdiğini gösterirken, Cd^{2+} adsorpsiyon sürecinde 313 K'den sonra negatif değerlerin kendiliğinden oluştuğu, bu durumun belirli bir sıcaklığa kadar endotermik, belirli bir sıcaklıktan sonra ise ekzotermik hale geldiği görüldü. Gibbs serbest enerji değişimleri

298-313 K aralığında farklı sıcaklıklarda incelendiğinde, Pb^{2+} adsorpsiyonunda sıcaklık arttıkça ΔG° değerlerinin azaldığı ve kendiliğinden gerçekleşme potansiyelinin arttığı (-7,454'ten-12,725'e) gözlemlendi. Cd^{2+} adsorpsiyonunda, bu değerler artan sıcaklıkla pozitiflikten negatifliğe doğru hareket etme eğiliminde olmuştur (1.729'dan-3.018'e). Ek olarak, negatif serbest enerji değerleri nanoadsorbent malzemenin Pb^{2+} ve Cd^{2+} metalleri üzerindeki adsorpsiyon sürecinin fiziksel bir karaktere sahip olabileceğini gösterir (Ebrahimpour ve Kazemi, 2023; Azari vd., 2022).

4.2. Elektrokoksiasyon Çalışmalarına İlişkin Bulgular

TiO_2/AC kompozit malzemenin hazırlanması ve karakterizasyonu, elde edilen malzemenin yapısal, morfolojik ve yüzey özelliklerinin detaylı incelenmesi, malzemenin katalitik performansını doğrudan etkileyen hususlar göz önünde bulundurularak katalitik uygulamalar için büyük öneme sahiptir. Bu amaçla, katalizör malzemenin yapısını ve morfolojisini karakterize etmek için XRD, TEM, SEM, DSC ve BET gibi farklı analitik teknikler kullanıldı. İlgili sonuçlar aşağıda tartışıldı.

4.2.1. XRD Analizi

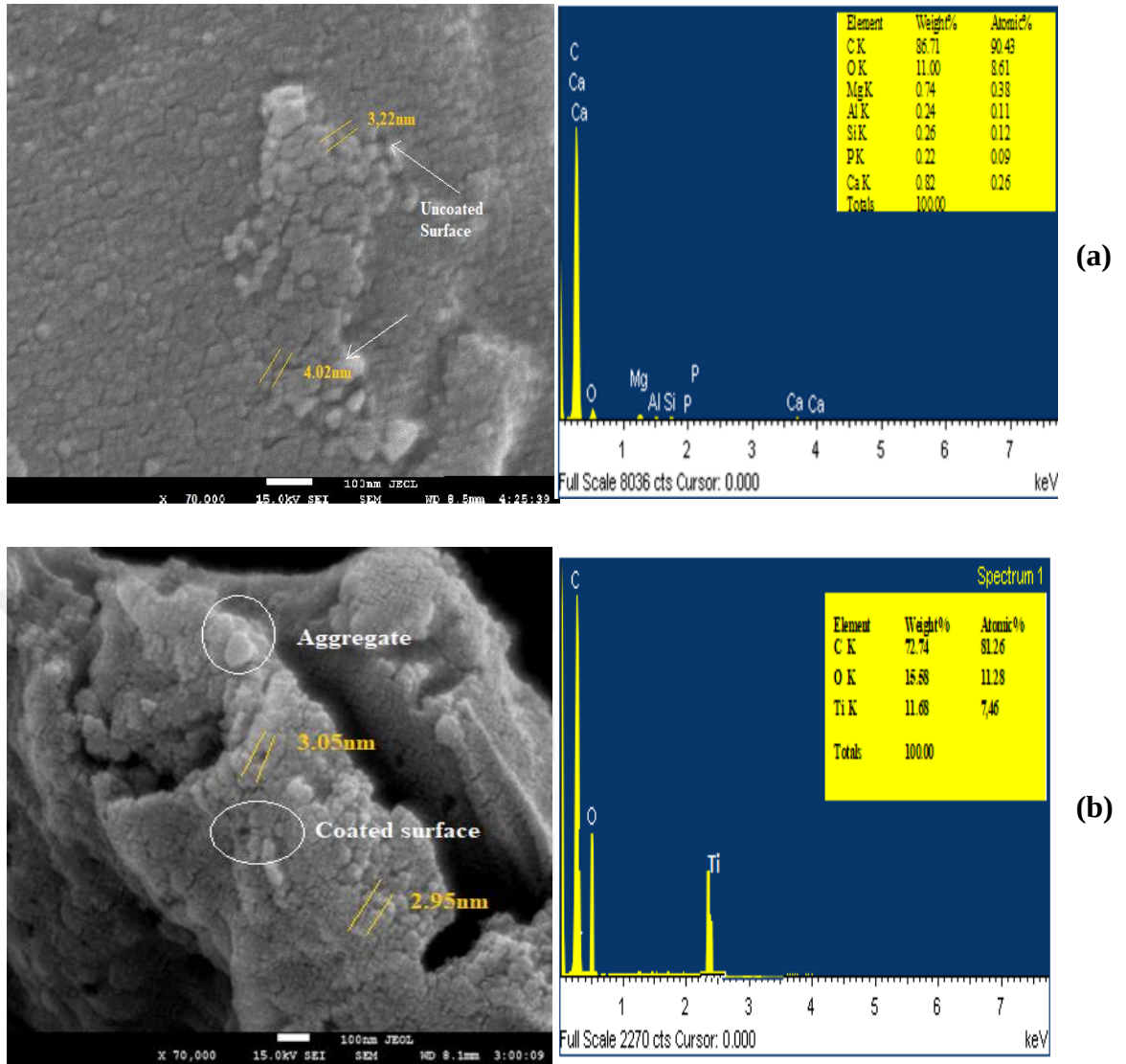


Şekil 4.9. Katalizörlerin XRD spektrumları (a-AC, b- TiO_2/AC)

Destek malzemesi olarak kullanılan AC numunelerinin XRD spektrumları elde edildi ve Şekil 4.9a'da verilmiştir. AC spektrumu incelendiğinde $2\theta = 26.67^\circ$ 'de gözlenen en yüksek şiddete sahip pikin hekzagonal grafit fazına ait olduğu görülmüştür (JCPDS kart numarası 75-1621). Ayrıca grafitin ayırt edici bir özelliği olan yüksek kristalli yapısı buradan daha iyi anlaşılmaktadır. Ayrıca $2\theta = 23.59^\circ$, 43.31° ve 59.86° 'de gözlenen diğer pikler de aktif karbonda karakteristik bir özellik olarak nitelendirilebilecek amorf pikler olarak değerlendirildi (Najafi, 2017). Destek malzemesi olarak AC üzerine yüklenen TiO_2/AC malzemesinin belirli koşullar altında XRD spektrumları elde edildi ve Şekil 4.9b'de verilmiştir. Literatür çalışmalarında TiO_2 faz oluşumları uygun reaktanlarla yüksek sıcaklıklarda hidrotermal işlemlerle anataz, rutil ve brookit olmak üzere 3 farklı nanopartikül formunda bulunabilmektedir (Mirgorod vd., 2016). Yukarıda 23.8732° , 26.67° , 43.7553° , 50.2303° ve 67.7686° 'de görülen 2θ dereceleri TiO_2 'nin rutil formunu tanımlamaktadır (JCPDS 75-1537). Ayrıca, keskin ve yoğun piklerin gözlemlenmesi sentezlenen TiO_2/AC 'nin yüksek kristallik özelliklerine sahip olabileceğini gösterdi. Ayrıca anataz fazına karşılık gelen $2\theta = 23.87$, 26.67 , 43.75 , 50.23 ve 67.76° 'daki tipik pikler Şekil 4.9b'den TiO_2 'nin iyi kristalleşmiş XRD desenleri olarak değerlendirildiği görüldü.

4.2.2. SEM Analizi

Nanokompozit malzemelerin aktivasyon öncesi ve sonrası SEM görüntüleri elde edildi ve Şekil 4.10'da gösterilmiştir. Genel olarak yüzey alanına bağlı olarak gözenek boyutunun azaldığı gözlemlendi. EDX spektrumundan AC'nin temel olarak %86 karbondan oluştuğu ve çok az miktarda safsızlık içerdiği görüldü.

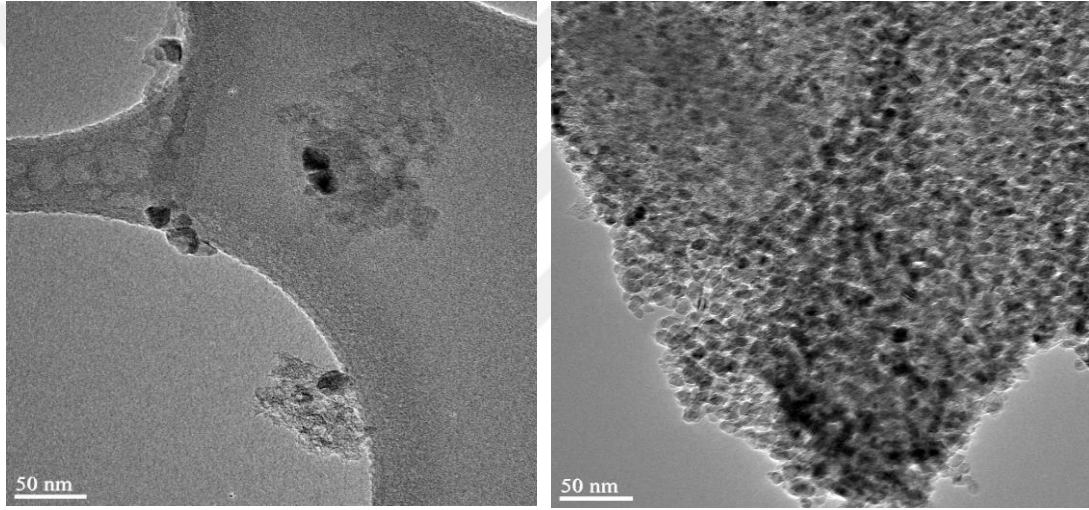


Şekil 4.10. Sentezlenen katalizörlerin SEM görüntüleri (a-AC ve b-TiO₂/AC)

Ham aktif karbon ve TiO₂/AC katalitik malzemelerinin SEM görüntüleri karşılaştırıldı (Şekil 4.10). Şekil 4.10a incelendiğinde, AC yüzeyinde önemli bir değişiklik gözlenmemektedir. Ancak yüzey TiO₂ ile kaplandığında belirli bir değişim gözlemlendi. Burada istiflenmiş nanoparçacık bloklarının boyutlarının TiO₂ ilavesiyle yaklaşık 4,0 nm'den 3,05 nm ve 2,95 nm'ye düştüğü gözlemlendi (Şekil 4.10b). Burada genellikle katalitik malzemelerin yüzeyde adsorbe olduğu ve agregatlar oluşturduğu düşünülmektedir. Bu durum özellikle TiO₂/AC örneğinde belirgindir. Şekil 4.10'da gösterildiği gibi, EDX'in kantitatif sonuçları sentezlenen kompozit malzemelerin ağırlık elementlerinin yüzdesini vermektedir. Bu sonuçlara göre, aktif karbon örneğinde başlangıçta belirli elementler mevcutken, sonradan yüklenen maddelere

bağlı olarak bunların yüzde bileşimlerinde farklılıklar görüldü. Benzer çalışmalarda EDX analizlerinden elde edilen veriler değerlendirildiğinde malzemenin nasıl bir şekle ve bileşime sahip olduğu vurgulanmaktadır (Panahi vd., 2017; Foroutan vd., 2022). Sonuç olarak EDX analizinden elde edilen bulgular XRD sonuçları ile uyumludur. Tüm katalitik örneklerde bulunan elementlerin yüzdelerinin önemli ölçüde değiştiği ve elementlerin yüzeyde önemli ölçüde kaplandığı görülebilir. Bu da katalitik özelliklere sahip nanopartiküllerin aktif karbon ile iyi bir etkileşim içinde olduğunu göstermektedir.

4.2.3. TEM Analizi



(a)

(b)

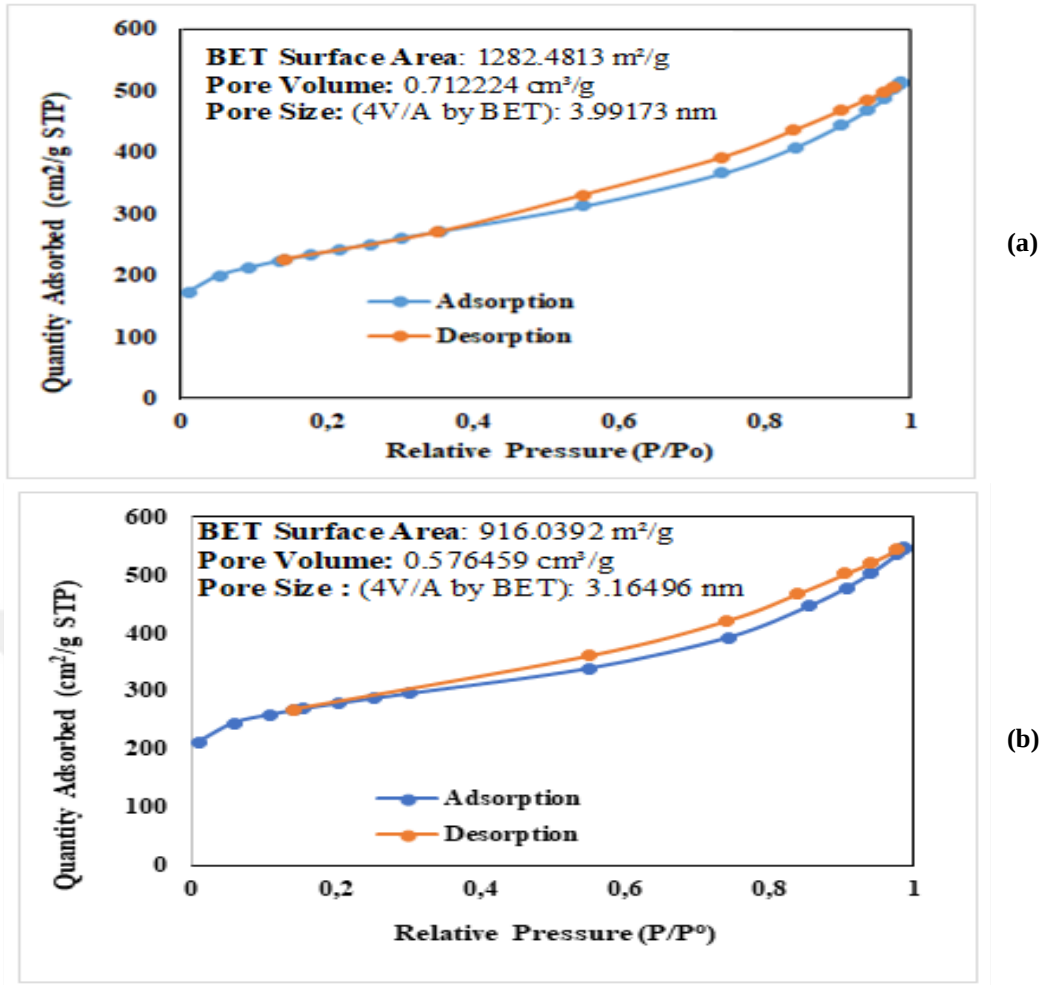
Şekil 4.11. Sentezlenen katalizörlerin TEM görüntüleri (a-AC, b-TiO₂/AC)

Şekil 4.11'de TEM görüntüleri incelendiğinde, AC malzemesinin amorf yapısı nedeniyle önemli bir değişiklik gözlenmemiştir ve başlangıç malzemesi olarak kullanılan AC'nin 50nm büyütmelerdeki tipik mikroskobunu göstermektedir (Şekil 4.11a). Buna karşılık, TiO₂/AC örneklerinde kısa menzilli, zıt desenler açıkça görüldü. Bu mikroskoftaki zıt desenlerin, kenar paylaşımli konfigürasyonlarda Ti-O-Ti oktahedronlar için tipik mesafeye, köşe paylaşımına karşılık gelen mesafeye ve Ti-O-Ti köprüleri ile bağlanan oktahedral türlerin zincirlerine karşılık geldiği gösterilmiştir. TiO₂/AC kompozitinin 3.0 ila 3.2 nm arasında ölçülen boyut aralığı, XRD

alışmasından hesaplanan ortalama kristal boyutuyla iyi bir uyum içindedir. Ayrıca, TEM görüntüsü sadece TiO₂/AC partiküllerinin AC yüzeyinde biriktiğini değil, aynı zamanda TiO₂/AC'nin (koyu noktalar) kılcal etkinin bir sonucu olarak AC'nin gözenekli yapısına dahil olduğunu da açıka göstermektedir (Şekil 4.11b).

4.2.4. BET Analizi

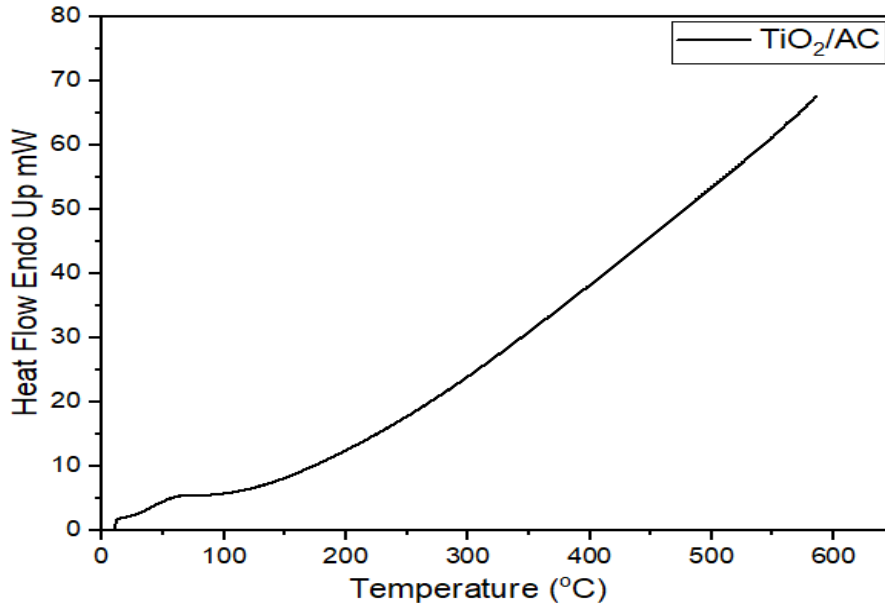
Tez alışmasında, ticari AC alınarak BET analizleri, gözenek boyutu ve gözenek hacimleri analiz edildi. BET analizi, hazırlanan AC ve TiO₂/AC'nin yüzey alanlarının sırasıyla 1282,48 ve 916,04 m²/g olduğunu göstermiştir (Şekil 4.12). Bu, TiO₂ ile katkılamaadan sonra TiO₂/AC'nin morfolojisi ve kristal yapısındaki değışikliklerle ilgili olabilir. Ayrıca, yüzey alanındaki azalma ile uyumludur (Savari vd., 2020). Bu, gözeneklilik ve pürüzlülük oluşumu ile ilişkili olabilir. Adsorpsiyon süreci sadece adsorban molekülleri ve yüzeyler arasındaki etkileşimlerle değil, aynı zamanda gözeneklerin boyutu ve şekli ile de ilişkilendirilebilir. Gözenekli malzemeler Uluslararası Saf ve Uygulamalı Kimya Birliğı (IUPAC) tarafından gözenek boyutlarına göre sınıflandırılmaktadır: 2 nm'den küçük olanlar mikro gözenekli, 2 nm ile 50 nm arasındakiler mezogözenekli ve 50 nm'den büyük olanlar makrogözenekli olarak tanımlanmaktadır (Uğurlu ve Kula, 2007).



Şekil 4.12. BET analizleri (a-AC, b-TiO₂/AC)

Genel olarak, tüm örneklerde gözenek çaplarının 3 ila 4 nm aralığında olduğu görülmektedir. Bu durum, adsorpsiyon sürecinin esas olarak fiziksel bir biçimde gerçekleştiği gerçeğine bağlanabilir. TiO₂ modifiye adsorbanların (TiO₂/AC) yüksek adsorpsiyon kapasitesine ve elektrokimyasal etkiye sahip olabileceği düşünülmektedir (Uğurlu vd., 2008). Ayrıca, incelenen tüm malzemeler için N₂ adsorpsiyon-desorpsiyonunun neredeyse örtüştüğü görülmektedir. Bu gözlem, IUPAC sınıflandırmasının N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermine adsorbanların mezogözenekli yapısına karşılık gelen tip IV'e ait olduğunu göstermektedir (Najafi, 2017). Tip IV izotermi en karakteristik özelliği, mezogözenekte meydana gelen kapiler yoğunlaşma ile ilişkili histerezis döngüsüdür. Gözenekli malzemenin, inorganik ve karbon bazlı malzemeleri birbirine bağlayan bir tür inorganik-organik hibrit malzeme oluşturabileceği ve birbirine bağlanan kümelerin oluşabileceği söylenebilir.

4.2.5. DSC Analizi



Şekil 4.13. DSC Analizi

Sentezlenen katalizör, malzemenin ısı kapasitesinin sıcaklıkla nasıl değiştiğini incelemek için Diferansiyel Taramalı Kalorimetri (DSC) analizi ile karakterize edildi. TiO₂/AC numunesinin ısı akışındaki değişiklikler Şekil 4.13'de verilmiştir. Sıcaklık 25°C ile 50°C arasında gözlenen ısı akışındaki artış, adsorbe edilen su kaybindan kaynaklanmaktadır (Darabian vd., 2022). 50°C ile 100°C arasındaki sıcaklık aralığında ısı akışı sabittir. 100°C'den sonra artan sıcaklığın etkisiyle malzemenin değiştiği ve ekzotermik bir reaksiyon olduğu gözlemlendi. Ayrıca, düşük sıcaklıklarda aktif karbon yüzeyinde adsorbe edilen gazların desorpsiyonu ve TiO₂'nin karakteristik faz geçiş sıcaklıkları nedeniyle ekzotermik pikler tespit edildi. Bu pikler aktif karbonun gözenekliliği, yüzey alanı ve kristal yapısı hakkında bilgi vermektedir. Malzemenin termal kararlılığı, yüksek sıcaklıklarda gözlenen ağırlık kaybı veya ayrışma olayları ile değerlendirilmiştir.

4.3. FLQ Giderim Çalışmalarına İlişkin Bulgular

FLQ giderim çalışmalarında partikül elektrot olarak, aktif karbon destekli TiO_2/AC kompozit malzeme kullanıldı. Elektrooksidasyon yöntemleriyle FLQ antibiyotiğinin farklı parametrelerde giderim performansı incelendi. FLQ çalışmalarına ilişkin istatistiksel analiz, parametrelerin etkileri ve optimizasyonu, antibiyotiğinin bozunması sonucu oluşan ara ürünler, çözeltideki elektroaktif bileşenlerin konsantrasyonunu ve elektrokimyasal özelliklerini belirlenerek aşağıda verilmektedir.

4.3.1. FLQ Giderim Çalışmalarının İstatistiksel Analizi

Parametrelerin FLQ antibiyotik ilaç atığının EO ve ECO yöntemleri ile giderimi üzerindeki etkileri optimize edilmiş ve özellikleri incelendi. Deneysel parametreler ve yanıt fonksiyonu arasındaki karşılıklı ilişkileri tanımlayan $R_1(\text{EO})$ ve $R_2(\text{ECO})$ için 14 ve 15 numaralı denklemler aşağıdaki gibi elde edildi:

$$\begin{aligned}
Y_{R_1} = & 21,0244 + 0,119106 (A) - 30,8739 (B) + 0,317577 (C) + 0,265678 (D) \\
& - 1,54553(E) + 10,247 (AB) + 0,0486917(AC) - 0,12075 (AD) \\
& - 0,05165 (AE) - 0,0303333 (BC) - 14,09 (BD) - 0,137 (BE) \\
& + 0,0189167 (CD) - 0,00174167 (CE) + 0,114187 (DE) \\
& + 0,00787929 (A^2) + 112,441 (B^2) + 0,00181394 (C^2) \\
& - 0,0594906 (D^2) \\
& + 0,022006 (E^2)
\end{aligned} \tag{14}$$

$$\begin{aligned}
Y_{R_2} = & 138,295 - 0,587217 (A) - 402,867 (B) + 0,523379 (C) \\
& - 13,9628 (D) - 0,105183 (E) - 2,35408 (AB) \\
& - 0,0116429 (AC) + 0,0323661 (AD) + 0,0241786 (AE) \\
& - 3,19583 (BC) + 3,91042 (BD) - 1,11542 (BE) \\
& + 0,0019375 (CD) + 0,00621667 (CE) + 0,00578125 (DE) \\
& + 0,00931139 (A^2) + 1.847,65 (B^2) + 0,00115971 (C^2) \\
& + 0,878999 (D^2) \\
& + 0,000959959 (E^2)
\end{aligned} \tag{15}$$

Burada, Y_{R1} ve Y_{R2} sırasıyla EO ve ECO yöntemleri ile FLQ % giderim performansını temsil etmektedir. A, B, C, D ve E sabit kodlanmış argümanlardır. Değişkenlerin FLQ % giderimi üzerindeki etkilerini tanımlamak için ikinci dereceden model seçildi. Çizelge 3.2 ve 3.3'te, CCD'de tasarlanan kırk dört deneme çalışması tamamlanarak, FLQ % giderim verileri elektrokimyasal yöntemlerle belirlendi (Çizelge 4.10 ve 4.11). CCD-RSM'den elde edilen modeli değerlendirmek için her iki yöntemin varyans analizi (ANOVA) testi yapıldı (Çizelge 4.12,4.13).

Çizelge 4.10. Elektrokoksiasyon FLQ % giderimi

	Bağımsız Parametreler					R ₁
	Voltaj (V)	Tuz Miktarı (g/L)	Temas Süresi (min)	pH (-)	Konsantrasyon (mg/L)	FLQ giderim (%)
1	5	0,5	45	5	20	36,25
2	10	0,37	30	6	30	22,44
3	15	0,5	15	7	20	35,68
4	15	0,25	15	5	40	11,16
5	5	0,5	45	7	20	30,16
6	10	0,37	30	6	30	42,62
7	5	0,25	45	5	20	24,75
8	5	0,25	15	5	20	2,870
9	15	0,25	45	5	20	60,99
10	2	0,37	30	6	30	6,950
11	10	0,37	65	6	30	74,18
12	10	0,37	30	6	50	34,19
13	15	0,25	45	7	20	60,15
14	10	0,37	5	6	30	3,120
15	5	0,5	15	7	40	7,640
16	15	0,5	45	5	40	80,89
17	5	0,25	15	7	20	10,65
18	15	0,5	45	7	20	79,65
19	5	0,25	45	7	40	22,35
20	5	0,5	15	5	20	0,680
21	10	0,10	30	6	30	15,97
22	15	0,5	45	5	20	76,94
23	15	0,25	45	7	40	54,31
24	15	0,25	15	7	20	16,40
25	10	0,37	30	6	10	56,32
26	10	0,37	30	8	30	18,68
27	15	0,5	15	7	40	44,70
28	5	0,25	45	5	40	29,54
29	15	0,25	45	5	40	52,99
30	15	0,25	15	7	40	16,12
31	5	0,25	45	7	20	19,05
32	5	0,25	15	7	40	13,87
33	21	0,37	30	6	30	74,33
34	5	0,5	15	5	40	13,87
35	15	0,5	45	7	40	76,27
36	15	0,25	15	5	20	22,27
37	15	0,5	15	5	40	42,33
38	5	0,5	15	7	20	0,110
39	5	0,25	15	5	40	11,16
40	5	0,5	45	5	40	32,55
41	5	0,5	45	7	40	26,49
42	10	0,37	30	4	30	46,26
43	15	0,5	15	5	20	76,38
44	10	0,67	30	6	30	69,52

Çizelge 4.11. Elektrokatalitik oksidasyon FLQ % giderimi

	Bağımsız Parametreler					R ₂
	Voltaj (V)	Katalizör Miktarı (g/L)	Temas Süresi (min)	pH (-)	Konsantrasyon (mg/L)	FLQ giderim (%)
1	7	0,2	60	9	40	86,41
2	7	0,2	60	5	20	81,63
3	14	0,3	45	7	30	94,36
4	14	0,1	45	7	10	72,52
5	7	0,25	60	5	20	92,64
6	14	0,1	45	7	30	88,63
7	21	0,25	30	5	40	93,51
8	21	0,2	60	5	40	82,61
9	7	0,2	60	9	20	70,01
10	7	0,25	60	9	20	94,63
11	14	0,1	45	11	30	89,40
12	14	0,05	45	7	30	85,15
13	7	0,25	30	5	40	95,36
14	21	0,25	30	9	20	94,08
15	7	0,25	30	9	40	94,14
16	21	0,25	60	9	20	89,28
17	14	0,1	45	7	50	81,75
18	7	0,25	60	9	40	96,26
19	21	0,2	30	5	20	65,99
20	14	0,1	45	7	30	87,90
21	3	0,1	45	7	30	75,12
22	21	0,25	60	9	40	92,88
23	21	0,25	60	5	40	91,20
24	7	0,2	30	5	20	75,30
25	21	0,2	60	9	40	77,35
26	7	0,2	30	5	40	82,91
27	25	0,1	45	7	30	78,98
28	7	0,25	60	5	40	94,72
29	21	0,2	60	5	20	54,10
30	7	0,25	30	9	20	95,45
31	21	0,25	60	5	20	84,22
32	21	0,2	30	9	40	83,54
33	14	0,1	10	7	30	64,59
34	7	0,2	60	5	40	86,55
35	14	0,1	80	7	30	91,86
36	21	0,2	30	5	40	82,86
37	7	0,2	30	9	40	85,69
38	21	0,25	30	9	40	91,69
39	21	0,2	60	9	20	58,17
40	14	0,1	45	3	30	92,23
41	21	0,25	30	5	20	91,60
42	21	0,2	30	9	20	62,74
43	7	0,2	30	9	20	73,37
44	7	0,25	30	5	20	97,71

Çizelge 4.12. Elektrooksidasyon modelinin ANOVA'sı

Source	Sum of Squares	df	Mean Square	F-value	p-value	
Model	25263,13	20	1263,16	14,69	< 0.0001	significant
A-Voltaj	10352,45	1	10352,45	120,37	< 0.0001	
B-Tuz Miktarı	2980,90	1	2980,90	34,66	< 0.0001	
C-Temas Süresi	7908,61	1	7908,61	91,95	< 0.0001	
D-pH	376,00	1	376,00	4,37	0,0478	
E-Konsantrasyon	111,11	1	111,11	1,29	0,2674	
AB	1312,51	1	1312,51	15,26	0,0007	
AC	426,76	1	426,76	4,96	0,0360	
AD	11,66	1	11,66	0,1356	0,7160	
AE	213,42	1	213,42	2,48	0,1289	
BC	0,1035	1	0,1035	0,0012	0,9726	
BD	99,26	1	99,26	1,15	0,2938	
BE	0,9384	1	0,9384	0,0109	0,9177	
CD	2,58	1	2,58	0,0300	0,8641	
CE	2,18	1	2,18	0,0254	0,8748	
DE	41,72	1	41,72	0,4851	0,4931	
A ²	0,9042	1	0,9042	0,0105	0,9192	
B ²	113,06	1	113,06	1,31	0,2634	
C ²	3,88	1	3,88	0,0451	0,8336	
D ²	0,1296	1	0,1296	0,0015	0,9694	
E ²	177,39	1	177,39	2,06	0,1644	
Residual	1978,14	23	86,01			
Lack of Fit	1774,53	22	80,66	0,3961	0,8736	not significant
Pure Error	203,62	1	203,62			
Cor Total	27241,27	43				

Çizelge 4.13. Elektrokatalitik oksidasyon modelin ANOVA'sı

Source	Sum of Squares	df	Mean Square	F-value	p-value	
Model	3708,84	20	185,44	2,89	< 0.0001	significant
A-Voltaj	124,36	1	124,36	1,94	< 0.0001	
B-Katalizör Miktarı	586,58	1	586,58	9,15	< 0.0001	
C-Temas Süresi	97,96	1	97,96	1,53	< 0.0001	
D-pH	8,87	1	8,87	0,1382	0,7134	
E-Konsantrasyon	572,70	1	572,70	8,93	0,0066	
AB	24,91	1	24,91	0,3883	0,5393	
AC	47,82	1	47,82	0,7457	0,3968	
AD	6,57	1	6,57	0,1024	0,7518	
AE	91,67	1	91,67	1,43	0,2441	
BC	337,67	1	337,67	5,26	0,0312	
BD	7,34	1	7,34	0,1144	0,7382	
BE	14,93	1	14,93	0,2328	0,6340	
CD	0,1081	1	0,1081	0,0017	0,9676	
CE	27,83	1	27,83	0,4338	0,5166	
DE	0,4278	1	0,4278	0,0067	0,9356	
A ²	3,34	1	3,34	0,0522	0,8214	

Çizelge 4.13. (Devam) Elektrokatalitik oksidasyon modelin ANOVA'sı

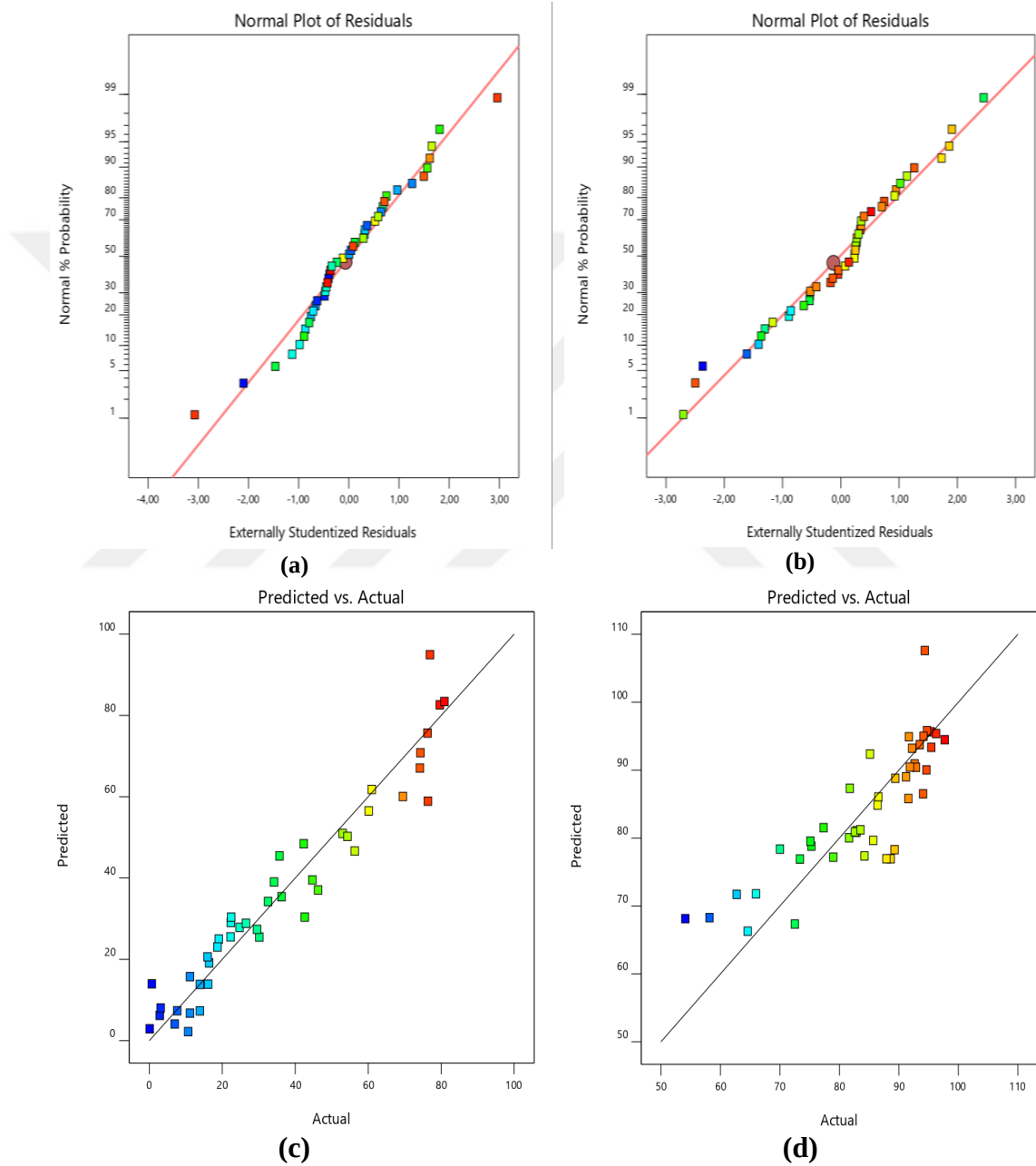
Source	Sum of Squares	df	Mean Square	F-value	p-value	
B ²	1192,22	1	1192,22	18,59	0,0003	
C ²	2,43	1	2,43	0,0379	0,8474	
D ²	238,30	1	238,30	3,72	0,0663	
E ²	0,1776	1	0,1776	0,0028	0,9585	
Residual	1475,16	23	64,14			
Lack of Fit	1474,89	22	67,04	0,4967	0,9497	not significant
Pure Error	0,2664	1	0,2664			
Cor Total	5184,00	43				

Parametrelerin anlamlılığı ve CCD-RSM modelinin doğruluğu ANOVA ile kanıtlandı. Küçük bir p-değeri (<0.0001), bu modelin seçilen değişkenler ile yanıt değişkeni arasındaki ilişkiyi iyi açıkladığını gösterir. Yüksek bir F değeri, modelin toplam varyansın ne kadarını açıkladığını gösterir (Sarani vd., 2024). Ayrıca, 14.69 (R_1) ve 10.89 (R_2) F değerleri modelin iyi bir uyum sağladığını ve bağımsız değişkenlerin yanıt değişkeni üzerindeki etkisinin anlamlı olduğunu gösterir. P-değerlerinin 0.05'ten küçük olması, modeldeki her bir terimin yanıt değişkeni üzerindeki etkisinin istatistiksel olarak anlamlı olduğunu gösterdi. Bu da seçilen değişkenlerin modelde tutulmasının uygun olduğunu ve modelin doğru kurgulandığını desteklemektedir. EO ($R^2 = 0,96$) ve ECO'nun ($R^2 = 0,95$) yüksek R^2 değerleri, modelin gerçek ve tahmini değerleri arasında çok iyi bir uyum olduğunu göstermektedir. Modelde kullanılan ikinci dereceden terimler (AB, AC, B²) modelin doğruluğunu artırmış ve değişkenler arasındaki etkileşimleri daha iyi açıklamıştır. Dolayısıyla, modeldeki parametreler istatistiksel olarak anlamlıdır ve seçilen değişkenler ile yanıt değişkeni arasındaki ilişkiyi yüksek doğrulukla açıkladı.

Çizelge 4.14. Elektrokimyasal yöntemlerin istatistiksel parametreleri

R ₁				R ₂			
Std. Dev.	9,27	R ²	0,9587	Std. Dev.	8,01	R ²	0,9512
Mean	35,31	Adjusted R ²	0,9242	Mean	84,12	Adjusted R ²	0,9380
C.V. %	26,26	Predicted R ²	0,8918	C.V. %	9,52	Predicted R ²	0,8684
		Adeq Precision	30,4773			Adeq Precision	25,470

Çizelge 4.14'den görüldüğü üzere, modelin standart sapması R_1 için 9,27 ve R_2 için 8,01 olarak belirlendi. R_1 için tahmin edilen R^2 0,8918 ve düzeltilmiş R^2 0,9242 iken, R_2 için tahmin edilen R^2 0,8684 ve düzeltilmiş R^2 0,9380'dir. Bu değerler modelin verilerle uyumlu olduğunu gösterdi. Her iki yöntem için sırasıyla 30,4773 (R_1) ve 25,470 (R_2) doğruluk oranları elde edildi. Bu oranlar modelin yüksek bir sinyal-gürültü oranına sahip olduğunu ve istatistiksel olarak uygun olduğunu gösterdi.

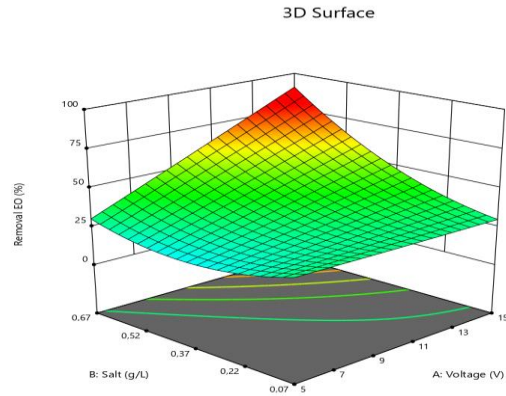


Şekil 4.14. R_1 ve R_2 deneysel kapasite artıklarının normal % olasılık grafiği (a), (b) R_1 ve R_2 için FLQ gideriminin öngörülen ve gerçek değerleri arasındaki yakınlığı gösteren grafik (c), (d)

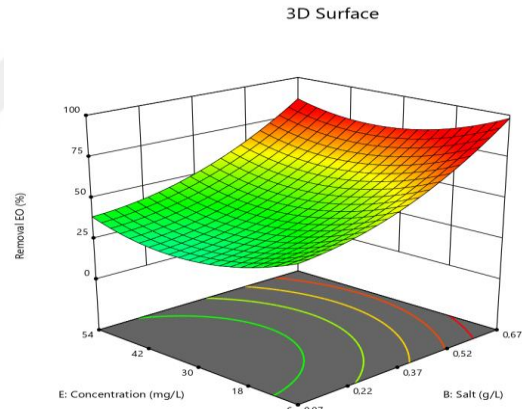
Şekil 4.14(a, b) elektrokimyasal deneyler için deneysel kapasite artıklarının normal dağılımını gösteren görsel grafiklerdir. Grafiklerdeki noktaların doğruya yakın olması verilerin normal bir dağılım izlediğini göstermektedir (Manzar vd., 2021). Şekil 4.14(c, d) elektrokimyasal deneyler için öngörülen ve gerçek değerler arasındaki uyumu gösterdi. Grafikteki noktaların doğruya yakın olması, tahmin edilen ve gerçek değerler arasında uyum olduğunu göstermektedir. Bu nedenle, her iki grafik de görsel analiz için kullanışlıdır ve elektrokimyasal deneylerin sonuçlarını yorumlamak için önemli bilgiler sağladı.

4.3.2. Seçilen Parametrelerin FLQ Giderimi Üzerindeki Etkileri

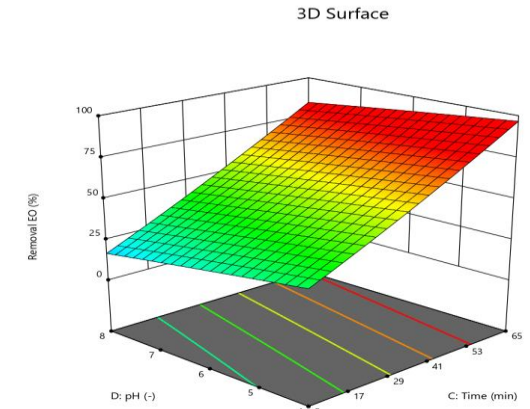
Parametrelerin EO ve ECO yöntemleriyle FLQ antibiyotik ilaç atığının giderilmesine olan etkisi 3D yüzey grafikleriyle analiz edildi. Parametrelerin eş zamanlı optimizasyonu ve tasarlanan değişkenlerin yanıt fonksiyonuna olan etkileri Şekil 4.15'de gösterilmiştir.



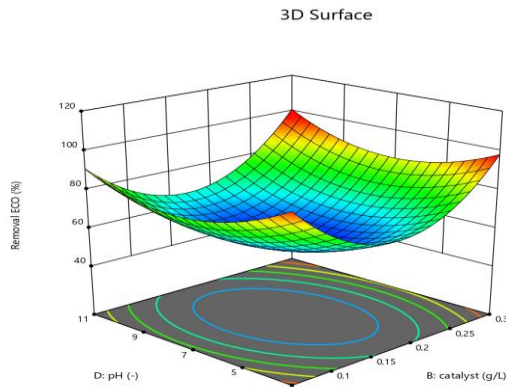
(a)



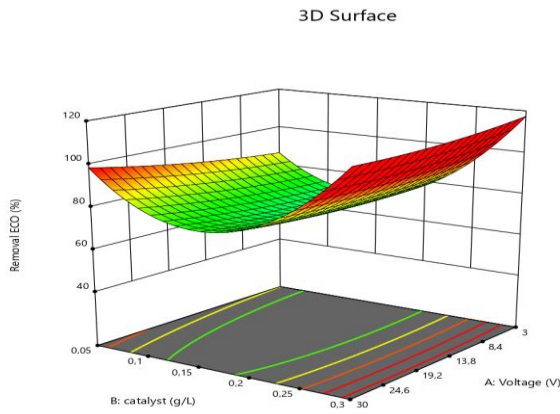
(b)



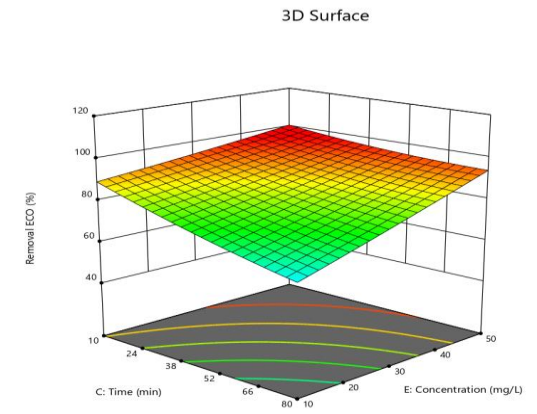
(c)



(d)



(e)



(f)

Şekil 4.15. Parametrelerin FLQ giderimi üzerindeki etkilerini gösteren 3D yüzey grafikleri

4.3.2.1. Başlangıç pH Etkisi

EO ve ECO yöntemleriyle gerçekleştirilen elektrokimyasal deneylerde başlangıç pH'ının FLQ antibiyotik ilaç atığının giderimi üzerindeki etkisi Şekil 4.15c ve 4.15d'de gösterilmektedir. Süspansiyon pH'ı elektrokimyasal performansı etkileyen önemli bir faktördür. Benzer çalışmalarda, ECO deneylerinde çözelti pH'ının partikül elektrodun adsorpsiyon performansını etkilediği bildirilmiştir (Rahmani vd., 2018). Optimum koşulları belirlemek amacıyla, EO yöntemi ile yapılan deneysel çalışmada başlangıç pH'ı olarak 4-8 pH aralığı, ECO deneyleri için ise 3-11 pH aralığı tasarlandı. FLQ giderim performansının her iki yöntem için de artan pH ile kısmen arttığı, daha sonra nötr bölgede ve sonrasında azalma eğilimi gösterdiği gözlemlendi. Ayrıca EO için pH 5.4 ve ECO için pH 5.0 optimum değerler olarak kabul edildi. Bu durum, çözeltinin pH'ı düştükçe proton adsorpsiyonuna bağlı olarak yüzeyde pozitif bir yüzey oluştuğunu, bu da söz konusu kirleticilerin elektrot ve partikül elektrotun yüzeyinde daha fazla adsorbe olduğunu gösterdi.

4.3.2.2. Katalizör miktarı etkisi

Tüm ECO deneylerinde, parçacık elektrodu olarak TiO_2/AC katalizörü kullanıldı. FLQ giderim verimini etkileyen bir diğer önemli parametre de katalizör miktarıdır. Katalizör miktarının etkisi Şekil 4.15d ve 4.15e'de gösterildiği gibi 0.05-0.3 (g/L) aralığında incelendi. Görüldüğü gibi, katalizör miktarı arttıkça % giderim değerleri de arttı. Katalizör miktarı 0,25 g/L olduğunda FLQ % giderimi maksimum değere ulaştı. Üç fazlı sistemlerde, elektrokimyasal hücredeki ana elektrotların yanı sıra parçacık elektrot malzemesi de büyük önem taşımaktadır. Partikül elektrotun adsorpsiyon etkisinin daha yüksek oranlarda arttığı gözlemlendi. Bu durum sentezlenen katalizör malzemesinin geniş yüzey alanına ve oldukça gözenekli bir yapıya sahip olmasıyla açıklanabilir. Ayrıca, aşırı miktarda katalizör kullanımı ECO aktivitesinde ve dolayısıyla giderim performansında düşüşe neden olmuştur (Chen vd., 2021).

4.3.2.3. Voltaj Etkisi

Elektrokimyasal oksidasyonun yanı sıra, partikül elektrodun polarizasyon davranışını etkileyen diğer bir önemli parametre akım yoğunluğudur. Akım yoğunluğu aynı

zamanda elektrot üzerindeki voltajı ve bozunması hızını belirler (Dong vd., 2023). Şekil 4.15a ve 4.15e'den görüldüğü gibi her iki yöntem için geniş bir voltaj aralığı tasarlandı. Voltajın artmasıyla birlikte, EO deneylerinde FLQ %giderim değerlerinin yükseldiği gözlemlendi. Genellikle, yüksek akım yoğunluğu daha iyi bir bozunma verimliliğine işaret etmektedir (Zhang vd., 2022). Ancak, ECO deneylerde %giderim verimliliği düşük voltaj değerlerinde maksimum seviyeye ulaştı. Üç fazlı sistemlerde düşük voltaj değerlerinde gözlenen yüksek giderim performansı, elektrokimyasal hücredeki partikül elektrotdan kaynaklı elektrokatalitik aktivitenin yüksek olması ile açıklanabilir. Yapılan deneylerde, EO yöntemi için 15V, ECO yöntemi için ise 7V optimum değerler olarak kabul edildi.

4.3.2.4. Başlangıç Konsantrasyon Etkisi

FLQ ilaç atığının elektrokimyasal yöntemlerle giderimi üzerinde başlangıç konsantrasyon etkisi Şekil 4.15b ve 4.15f'de gösterilmektedir. Optimum koşulların belirlenmesi için her iki yöntem 10-50 (mg/L) konsantrasyon aralığında çalışıldı. Başlangıç konsantrasyonunun 10'dan 50'e doğru artırılmasıyla, EO yöntem için %56'dan %34'e azalma, ECO yöntem için %72'den %82'e doğru artış olduğu gözlemlendi. Her iki yöntem için FLQ %giderim değerleri konsantrasyonun artmasıyla artan ve ardından azalan bir eğilim gösterdi. Optimum %giderim değerleri EO için 35 mg/L, ECO deneyleri için 40 mg/L olarak kabul edildi. Yüksek konsantrasyonlarda giderimin azalması FLQ moleküllerinin elektrot yüzeyine yapışmasına atfedilebilir ve bu da, kütle transfer verimliliğini ve hızını azaltır (Li vd., 2023). Bu azalma, antibiyotik molekülü ile reaktif türlerin etkileşimini engelleyebilecek yan ürünlerin varlığından da kaynaklanabilir.

4.3.2.5. Temas Süresi ve Elektrolit Konsantrasyon Etkisi

Şekil 4.15c ve 4.15f'den görüldüğü gibi, temas süresi FLQ giderimi üzerinde etkili olan parametrelerden biridir. Temas süresi arttıkça %giderim verimliliği EO yöntem için %8'den %74'e, ECO yöntem için %65'ten %92'e doğru artış gözlemlendi. Elektrokimyasal yöntemler için optimum değerler sırasıyla, 45 ve 60 dakika olarak

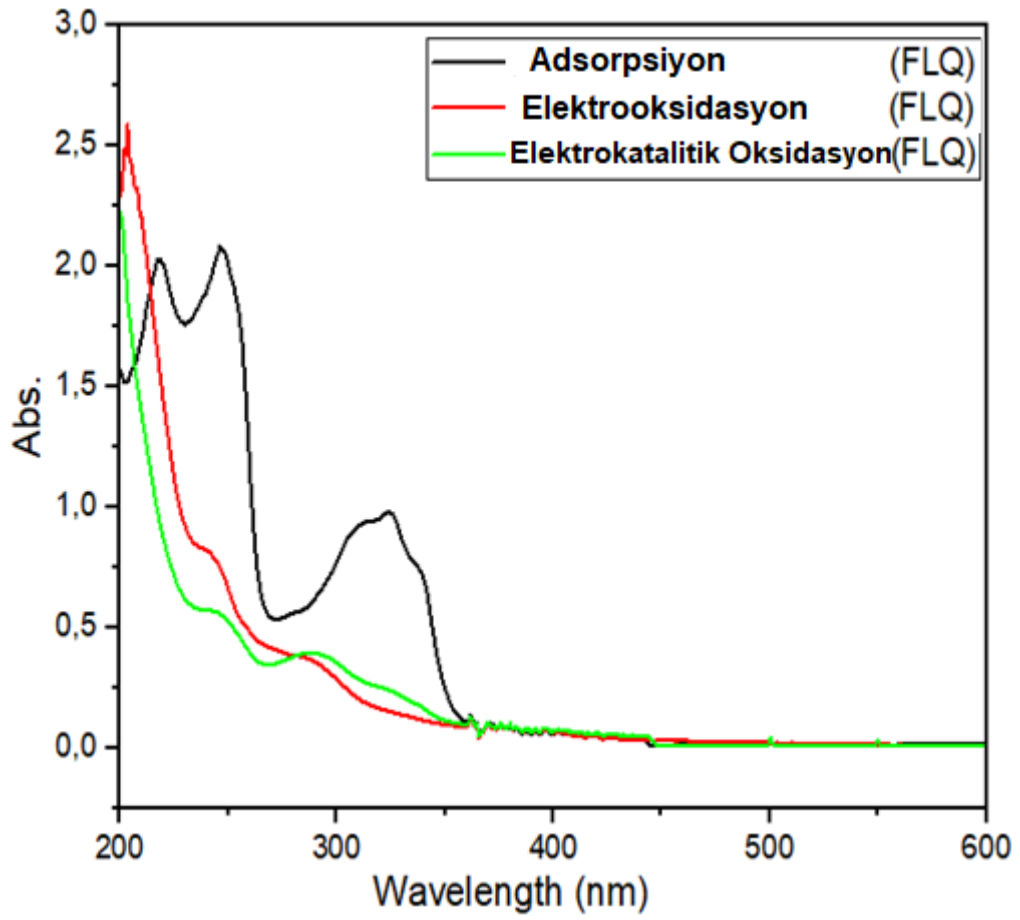
kabul edildi. Temas süresi arttıkça, akım yoğunluğunun seviyesine bağlı olarak giderim verimliliğinin arttığı ve daha sonra azaldığı gözlemlendi (Leili vd., 2020).

Elektrokatalitik bozunmayı belirleyen ana parametrelerden biri de çözeltinin iletkenliğidir. Yeterli iletkenliğin sağlanması için 0,1-0,67 (g/L) aralığında elektrolit olarak NaCl kullanıldı. Elektrolit konsantrasyonunun artırılmasıyla sistemin iletkenliği arttığı için %giderim verimliliğinin %16'dan %70'e doğru artış gözlemlendi. Bu durum, yüksek oranda elektron transferi ve elektrotun katalitik aktivitesinin artmasıyla da açıklanabilir (Emamjomeh vd., 2024). Ayrıca, elektrooksidasyon deneylerinde NaCl'nin optimum konsantrasyonu 0,5 g/L olarak belirlendi ve bu değer tüm ECO çalışmalarda sabit tutuldu.

4.3.3. Parametrelerin Optimizasyonu

FLQ %giderim verimliliğini arttırmak ve elektrokimyasal bozunmayı etkileyen beş ana parametreyi optimize etmek için CCD-RSM optimizasyon yöntemi uygulandı. Optimum koşullar, FLQ giderimi için istenilen hedefin maksimum olduğu ve diğer bağımsız parametrelerin belirli aralıklar içinde ayarlanmasıyla belirlendi. Deney seti tasarımı, EO çalışmaları için optimum koşullar 15 V voltaj, 0,5 g/L tuz miktarı, 5,4 pH değeri, 35 mg/L başlangıç konsantrasyonu ve 45 dakika temas süresi olarak belirlenmişken, ECO deneyler için ise bu koşullar 7 V voltaj, 0,25 g/L katalizör miktarı, 5 pH değeri, 40 mg/L başlangıç konsantrasyonu ve 60 dakika temas süresi olarak tespit edildi. Yapılan EO ve ECO deneyler sonucunda, simüle edilmiş FLQ atığı üzerinde sırasıyla %81 ve %98 giderim verimliliği elde edildi. Optimizasyon sonuçlarından elde edilen (R_1 Desirability = 1 ve R_2 Desirability = 0,96) değerler, tahmin edilen değerlerin deneysel verilere uyumlu olduğunu gösterdi.

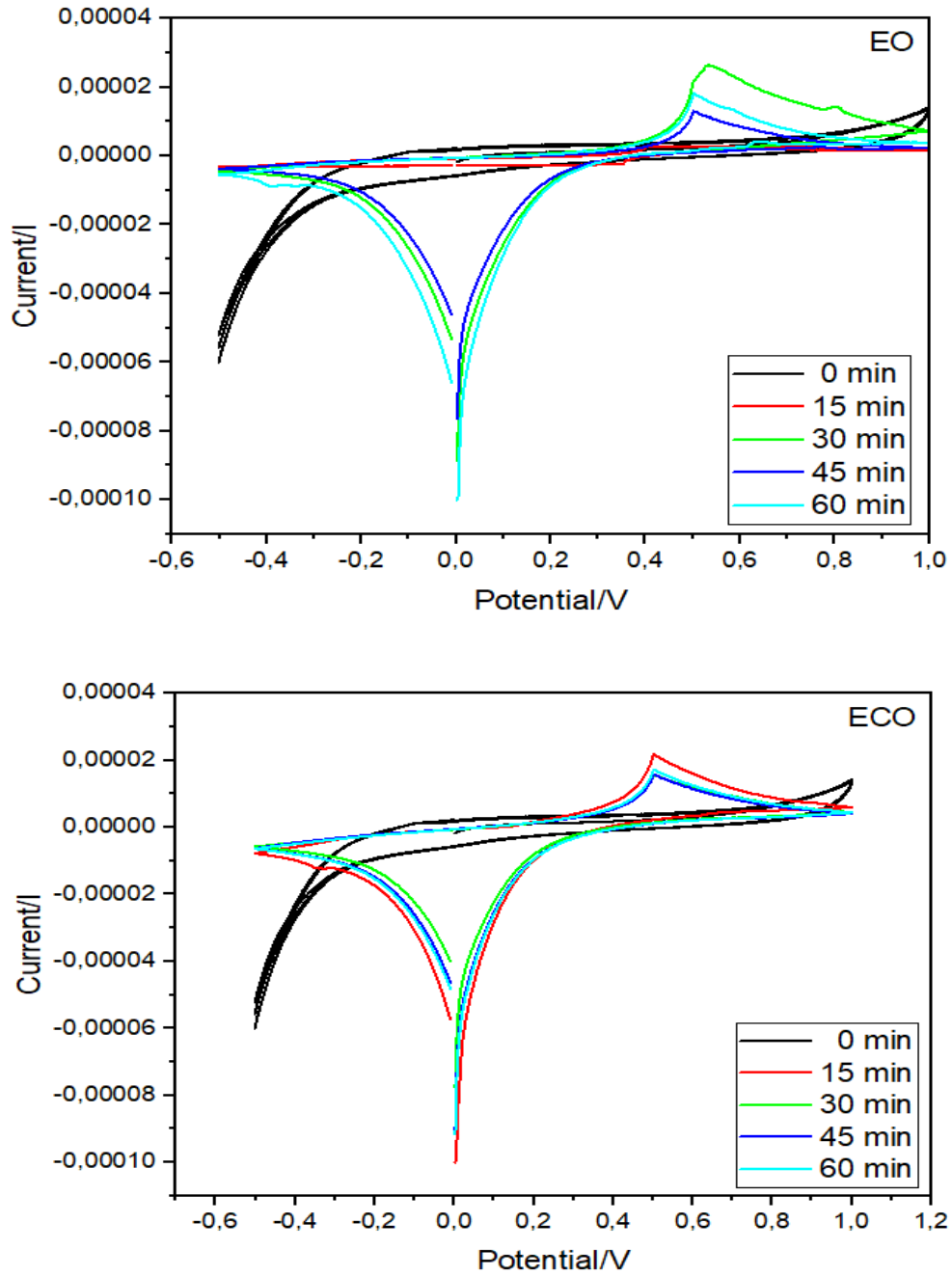
4.3.4. UV-Vis Spektrumlarının Değerlendirilmesi



Şekil 4.16. Adsorpsiyon, EO, ECO UV-Vis spektrumları

Şekil 4.16 FLQ ayrıştırma yönteminin giderim performansının UV-Vis spektrumlarını gösterir. Görüldüğü gibi ECO yöntemi diğer yöntemlere göre 60 dakikada daha etkili bir yöntemdir. Burada EO prosesi adsorpsiyondan daha aktif iken, ECO prosesi en etkili performansa sahiptir.

4.3.5. Döngüsel Voltammetri (CV) Analizi



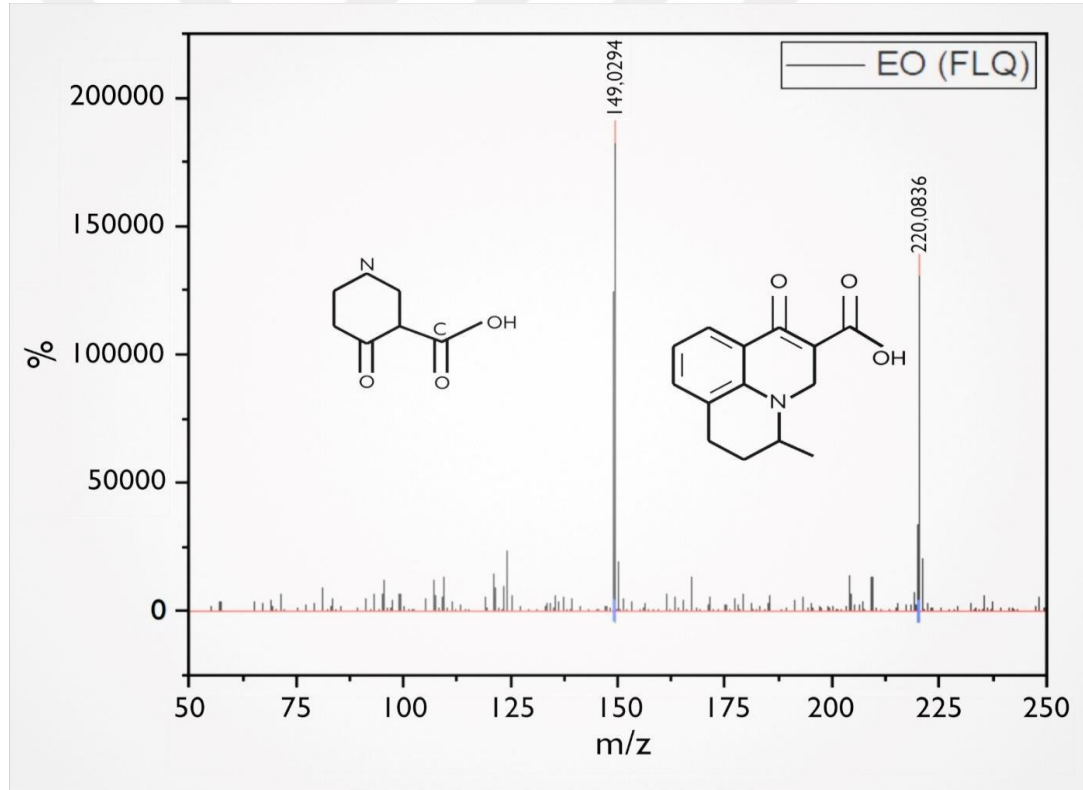
Şekil 4.17. FLQ CV analizi

EO ve ECO sonrası elde edilen CV eğrileri Şekil 4.17'de gösterilmiştir. Her iki yöntemin CV değerleri incelendiğinde, oksidasyon reaksiyonlarının redüksiyon reaksiyonlarına göre daha etkili olduğu görülmektedir. EO ve ECO sonrasında çözeltide kalan FLQ miktarının fotokatalitik bozunma nedeniyle azaldığı sonucuna

varılabilir. Dolayısıyla oksitlenebilen FLQ miktarı daha az olduğu için ortamdaki oksidasyon eğilimi daha düşüktür. Ayrıca her iki yöntemde de eğrilerin simetrik olması her iki reaksiyonun da tersinir olduğunu göstermektedir. CV çalışmalarında da belirtildiği gibi eğrinin genişliği reaksiyonun elektron transfer sayısı hakkında bilgi verebilmektedir. Bu bağlamda, EO'nun CV volta gramlarında görülen 30 dakikada gerçekleşebilecek elektron transferi miktarı elde edilirken, ECO bu miktar 15 dakikadır. Bu sonuçlar ECO'nun EO'a göre daha verimli olduğunu gösterdi.

4.3.6. Yüksek Çözünürlüklü Kütle Spektrometresi (HRMS) Analizi

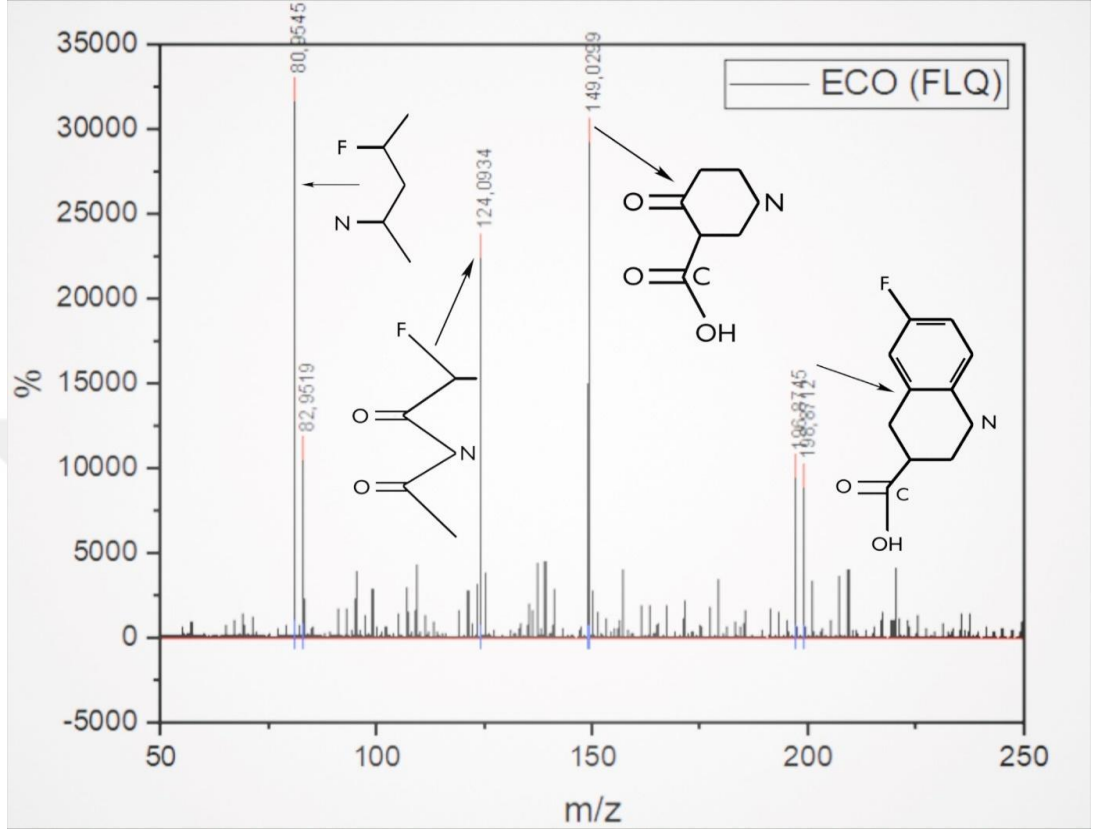
EO ürünlerinin HRMS sonuçları sırasıyla 149, 220 m/z'de iki ana pik göstermiştir. Bu, 149 için iki açık halka atomlarının uzaklaştırıldığını gösterir (Şekil 4.18).



Şekil 4.18. EO ürünlerinin HRMS analizi

FLQ'nun ECO sonucunda sırasıyla 80-82, 124, 149 ve 196 m/z'de dört ana pikin olduğu görülmektedir. ECO sürecinin EO sürecine göre daha yüksek performans gösterdiği sonucuna varılabilir. Şekil 4.19 80-82 ve 124'teki m/z değerleri Flumequine'i oluşturan tüm halkaların kırıldığını gösterir. 149 m/z değeri piridin

halkası hariç diğer halkalı yapının tamamen kırıldığını gösterir. 196 flumequindeki 3 halkadan birinin kırıldığını ve hem piridin hem de aromatik yapının korunduğunu gösterdi.



Şekil 4.19. ECO ürünlerinin HRMS analizi

4.4. OTC Giderim Çalışmalarına İlişkin Bulgular

OTC giderim çalışmalarında partikül elektrot olarak, aktif karbon destekli TiO_2/AC kompozit malzeme kullanıldı. Elektrooksidasyon yöntemiyle, OTC antibiyotiğinin farklı parametrelere bağlı olarak giderim verimliliği incelendi. FLQ antibiyotiğinin bozunması sonucu oluşan ara ürünler, çözeltideki elektroaktif bileşenlerin konsantrasyonları ve elektrokimyasal özellikleri belirlenmiş; parametrelerin etkileri ve optimizasyonu üzerine istatistiksel analizler yapıldı. Elde edilen bulgular aşağıda sunulmuştur.

4.4.1. OTC Giderim Çalışmalarının İstatistiksel Analizi

Elektrokimyasal yöntemlerle yürütülen deneylerde OTC'nin giderim performansı üzerindeki parametrelerin etkisi optimize edildi ve özellikleri değerlendirildi. Yanıt fonksiyonu ve deneysel parametreler arasındaki karşılıklı ilişkileri açıklayan ikinci dereceden $R_1(EO)$ ve $R_2(ECO)$ için Denklem 16 ve 17 olarak elde edildi:

$$\begin{aligned} Y_{R_1} = & 31,6109 + 5,4965 (A) - 44,8537 (B) + 1,7024 (C) - 34,885 (D) \\ & + 3,00842 (E) + 0,633103 (AB) - 0,00291636 (AC) \\ & + 0,0892462 (AD) - 0,0354237 (AE) - 0,888988 (BC) \\ & + 32,3948 (BD) - 0,730448 (BE) - 0,0370818 (CD) \\ & - 0,00264985 (CE) + 0,145123 (DE) - 0,141609 (A^2) \\ & - 50,0733(B^2) - 0,00598384(C^2) + 1,39991 (D^2) \\ & - 0,0407309(E^2) \end{aligned} \quad (16)$$

$$\begin{aligned} Y_{R_2} = & 227,545 + 9,02378 (A) + 553,427 (B) - 0,310612 (C) \\ & + 32,5444(D) + 3,1117 (E) - 19,8076 (AB) - 0,0307239 (AC) \\ & + 0,236908 (AD) + 0,0148122 (AE) + 1,3218 (BC) \\ & - 66,499 (BD) + 0,513083 (BE) + 0,0509152 (CD) \\ & - 0,00957839 (CE) - 0,0246331 (DE) - 0,196125 (A^2) \\ & + 599,906 (B^2) + 0,00511079 (C^2) \\ & - 1,76073 (D^2) \\ & - 0,0298004 (E^2) \end{aligned} \quad (17)$$

Burada, Y_{R1} ve Y_{R2} sırasıyla EO ve ECO yöntemlerle OTC % giderim performansını temsil eder. A, B, C, D ve E kodlanmış bağımsız değişkenlerdir. Değişkenlerin OTC % giderimi üzerindeki etkilerini tanımlamak için ikinci dereceden model seçildi. Tablo 3.2 ve 3.3'te, CCD'de tasarlanan kırk dört deneme çalışmaları tamamlanarak, elektrokimyasal yöntemlerle OTC % giderim verileri belirlendi (Çizelge 4.15,4.16). CCD-RSM'den elde edilen modelin değerlendirilmesi için her iki yöntemin varyans analiz (ANOVA) testi yapıldı (Çizelge 4.17,4.18).

Çizelge 4.15. EO OTC %giderim

	Bağımsız Parametreler					R ₁
	Voltaj (V)	Tuz Miktarı (g/L)	Temas Süresi (min)	pH (-)	Konsantrasyon (mg/L)	OTC giderim (%)
1	15	0,25	15	5	20	40,81
2	5	0,25	45	7	40	44,72
3	10	0,37	30	6	30	65,67
4	5	0,25	45	5	20	40,54
5	5	0,5	15	7	20	28,51
6	15	0,5	15	5	20	57,97
7	21	0,37	30	6	30	63,78
8	5	0,25	45	7	20	19,59
9	5	0,5	15	5	20	26,48
10	15	0,5	15	7	20	62,02
11	15	0,25	15	5	40	50,54
12	15	0,5	45	5	40	74,45
13	15	0,5	30	5	40	75,54
14	5	0,25	15	5	40	30,47
15	10	0,37	30	4	30	63,69
16	2	0,37	30	6	30	23,87
17	5	0,5	15	5	40	41,01
18	5	0,25	15	7	20	0,4
19	5	0,5	45	5	20	48,64
20	5	0,5	45	7	40	54,18
21	15	0,5	45	7	20	71,35
22	15	0,25	45	7	40	64,72
23	10	0,37	65	6	30	79
24	10	0,37	5	6	30	20,99
25	15	0,5	15	5	40	63,51
26	15	0,25	45	7	20	48,24
27	15	0,25	45	5	20	67,16
28	10	0,10	30	6	30	28,19
29	5	0,5	45	7	20	52,16
30	15	0,5	15	7	40	63,44
31	10	0,37	30	6	30	56,75
32	15	0,25	15	7	40	42,09
33	10	0,37	30	8	30	63,24
34	5	0,25	15	7	40	24,66
35	10	0,37	30	6	10	8,31
36	5	0,5	15	7	40	55,47
37	15	0,25	45	5	40	68,91
38	10	0,67	30	6	30	74,05
39	15	0,5	45	5	20	69,32
40	10	0,37	30	6	50	56,7
41	5	0,25	45	5	40	56,21
42	15	0,25	15	7	20	28,91
43	5	0,5	45	5	40	60
44	5	0,25	15	5	20	22,02

Çizelge 4.16. ECO OTC %giderim

	Bağımsız Parametreler					R ₂
	Voltaj (V)	Katalizör Miktarı (g/L)	Temas Süresi (min)	pH (-)	Konsantrasyon (mg/L)	OTC giderim (%)
1	21	0,25	30	5	20	65,91
2	7	0,25	60	5	20	79,36
3	21	0,2	60	9	40	58,08
4	7	0,2	60	5	40	75,89
5	14	0,1	80	7	30	71,82
6	7	0,2	60	9	40	65,14
7	14	0,3	45	7	30	85,18
8	14	0,1	45	7	30	81,40
9	21	0,2	60	5	40	70,35
10	14	0,1	10	7	30	76,13
11	21	0,25	30	9	20	56,67
12	21	0,2	60	9	20	42,03
13	7	0,2	30	5	20	47,04
14	7	0,2	60	9	20	35,69
15	14	0,1	45	7	30	74,63
16	7	0,25	60	9	20	75,40
17	7	0,25	30	9	40	51,88
18	7	0,25	30	9	20	23,16
19	3	0,1	45	7	30	9,55
20	21	0,2	60	5	20	40,31
21	7	0,25	30	5	20	69,47
22	14	0,1	45	11	30	65,66
23	14	0,1	45	7	10	42,63
24	7	0,2	30	9	20	38,07
25	7	0,25	60	5	40	84,34
26	21	0,25	30	9	40	74,70
27	30	0,1	45	7	30	58,54
28	14	0,05	45	7	30	59,77
29	21	0,25	60	9	20	45,46
30	21	0,25	60	5	20	44,80
31	14	0,1	45	3	30	13,68
32	7	0,25	60	9	40	69,16
33	21	0,2	30	9	40	66,53
34	21	0,2	30	9	20	34,37
35	7	0,2	30	9	40	69,49
36	14	0,1	45	7	50	69,21
37	21	0,25	30	5	40	80,44
38	21	0,2	30	5	40	65,21
39	21	0,25	60	9	40	67,45
40	7	0,25	30	5	40	80,11
41	7	0,2	60	5	20	41,63
42	21	0,2	30	5	20	27,91
43	7	0,2	30	5	40	76,68
44	21	0,25	60	5	40	70,75

Çizelge 4.17. EO modelin ANOVA'sı

Source	Sum of Squares	df	Mean Square	F-value	p-value	
Model	15719,03	20	785,95	18,10	< 0.0001	significant
A-Voltaj	4865,05	1	4865,05	112,03	< 0.0001	
B-Tuz Miktarı	3223,50	1	3223,50	74,23	< 0.0001	
C-Temas Süresi	3773,44	1	3773,44	86,89	< 0.0001	
D-pH	136,98	1	136,98	3,15	0,0890	
E-Konsantrasyon	2247,94	1	2247,94	51,77	< 0.0001	
AB	4,88	1	4,88	0,1123	0,7406	
AC	1,45	1	1,45	0,0334	0,8567	
AD	6,13	1	6,13	0,1411	0,7106	
AE	97,71	1	97,71	2,25	0,1472	
BC	84,13	1	84,13	1,94	0,1773	
BD	504,62	1	504,62	11,62	0,0024	
BE	25,97	1	25,97	0,5980	0,4472	
CD	9,37	1	9,37	0,2157	0,6467	
CE	4,78	1	4,78	0,1102	0,7430	
DE	64,81	1	64,81	1,49	0,2342	
A ²	293,59	1	293,59	6,76	0,0160	
B ²	22,52	1	22,52	0,5185	0,4787	
C ²	43,38	1	43,38	0,9989	0,3280	
D ²	72,08	1	72,08	1,66	0,2104	
E ²	610,23	1	610,23	14,05	0,0010	
Residual	998,79	23	43,43			
Lack of Fit	959,01	22	43,59	1,10	0,6502	not significant
Pure Error	39,78	1	39,78			
Cor Total	16717,82	43				

Çizelge 4.18. ECO modelin ANOVA'sı

Source	Sum of Squares	df	Mean Square	F-value	p-value	
Model	12544,54	20	627,23	20,07	< 0.0001	significant
A-Voltaj	797,24	1	797,24	5,18	< 0.0001	
B-Katalizör Miktarı	1439,04	1	1439,04	9,35	< 0.0001	
C-Temas Süresi	3,38	1	3,38	0,0219	0,0883	
D-pH	167,80	1	167,80	1,09	0,0307	
E-Konsantrasyon	3426,39	1	3426,39	22,25	< 0.0001	
AB	1763,27	1	1763,27	11,45	0,0026	
AC	333,03	1	333,03	2,16	0,1549	
AD	352,02	1	352,02	2,29	0,1441	
AE	34,40	1	34,40	0,2234	0,6409	

Çizelge 4.18. (Devam) ECO modelin ANOVA'sı

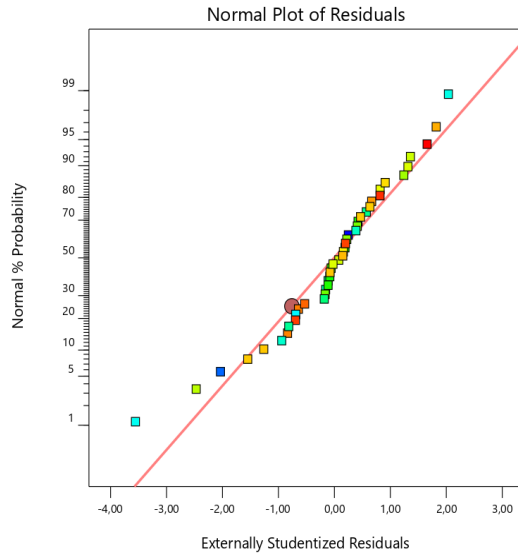
Source	Sum of Squares	df	Mean Square	F-value	p-value	
BC	57,76	1	57,76	0,3752	0,5462	
BD	2122,62	1	2122,62	13,79	0,0011	
BE	3,16	1	3,16	0,0205	0,8873	
CD	74,66	1	74,66	0,4849	0,4932	
CE	66,06	1	66,06	0,4290	0,5190	
DE	7,77	1	7,77	0,0504	0,8243	
A ²	1483,92	1	1483,92	9,64	0,0050	
B ²	125,69	1	125,69	0,8163	0,3756	
C ²	47,16	1	47,16	0,3063	0,5853	
D ²	956,17	1	956,17	6,21	0,0203	
E ²	171,19	1	171,19	1,11	0,3026	
Residual	3541,19	23	153,96			
Lack of Fit	3518,26	22	159,92	6,97	0,2914	not significant
Pure Error	22,93	1	22,93			
Cor Total	16085,73	43				

CCD-RSM'den elde edilen modelin yeterliliği ve parametrelerin önemi varyans analizi (ANOVA) ile kanıtlandı. OTC giderim çalışmalarında ikinci dereceden regresyon modelinin uyumluluğu ve parametrelerin önemi küçük bir p değeriyle doğrulandı (< 0.0001). Model katsayılarının anlamlılığı F ve p değerlerine göre değerlendirildi (Zahedinejad et al. 2023). Modelin F değerlerinin 18,10 (R_1) ve 20,07 (R_2) yüksek olması, istatistiksel olarak modelin anlamlı olduğunu gösterdi. EO ($R^2 = 0,94$) ve ECO ($R^2 = 0,95$) sonuçları, modelin gerçek ve tahmin edilen değerler arasında iyi korelasyon uyum olduğunu gösterir. Model, istatistiksel açıdan anlamlıdır ve gözlenen varyasyonun büyük kısmını açıklayabilmektedir (Bajpai et al. 2021). Modelin p değerlerinin 0,05'ten küçük olması, bağımsız değişkenlerin yanıt fonksiyonu üzerinde istatistiksel olarak anlamlı bir etkiye sahip olduğunu gösterir. Seçilen değişkenler ve bazı etkileşimler EO deneyleri için A, B, C, E, BD, A², E² ve ECO deneyleri için A, B, D, E, AB, BD, A², D² anlamlı model terimleridir. 0,1000'den büyük p değerlerinin olması istatistiksel olarak model terimlerinin anlamlı olmadığını gösterir. Dolayısıyla, modelin deneysel verilerle uyumlu olduğunu ve bağımsız parametrelerin yanıt fonksiyonu üzerinde önemli etkiye etkilere sahip olduğunu söyleyebiliriz.

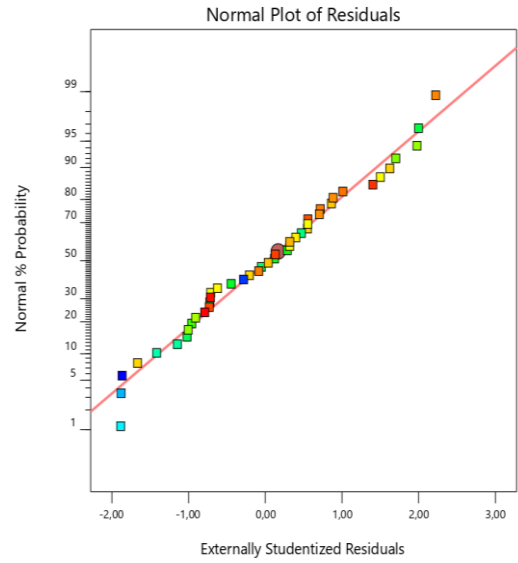
Çizelge 4.19. Elektrokimyasal yöntemlerin istatistiksel parametreleri

R₁				R₂			
Std. Dev.	6,59	R ²	0,9403	Std. Dev.	5,41	R ²	0,9517
Mean	49,05	Adjusted R ²	0,8883	Mean	45,13	Adjusted R ²	0,8984
C.V. %	13,43	Predicted R ²	0,7746	C.V. %	11,98	Predicted R ²	0,8135
Adeq Precision			17,3142	Adeq Precision			20,0661

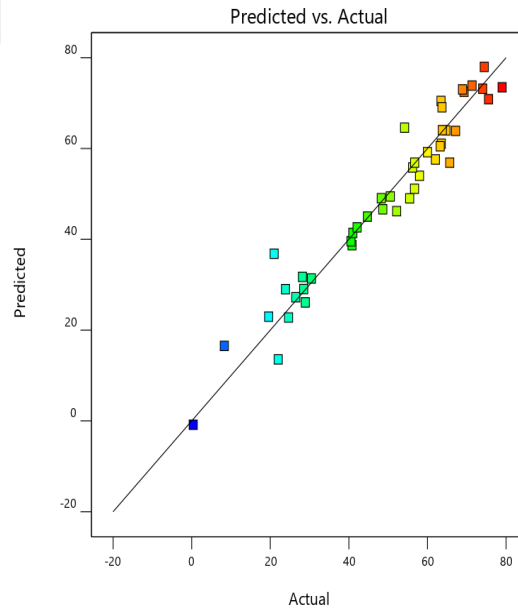
Çizelge 4.19'dan sunulan verilere göre, modelin standart sapmaları R₁ (EO) için 6,59 ve R₂ (ECO) için 5,41 olarak belirlendi. Bu değerler modelin her iki yöntem için de yüksek tahmin doğruluğuna sahip olduğunu gösterir. R₁ için tahmini R² değeri 0,7746 ve düzeltilmiş R² değeri 0,8883'tür. R₂ için bu değerler sırasıyla 0,8135 ve 0,8984'tür. Her iki yöntem için de yüksek R² değerleri, model tahminlerinin verilerle iyi bir uyum içinde olduğunu gösterir. R² değerleri arasındaki farkın 0,2'den az olması, model tahminlerinin gerçek değerlere ne kadar yakın olduğunu bir göstergesidir. Modelin doğruluk oranları R₁ ve R₂ sırasıyla 17,3142 ve 20,0661 olarak hesaplandı. Bu yüksek değerler modelin güvenilirliğinin ve istatistiksel anlamlılığının önemli bir göstergesidir.



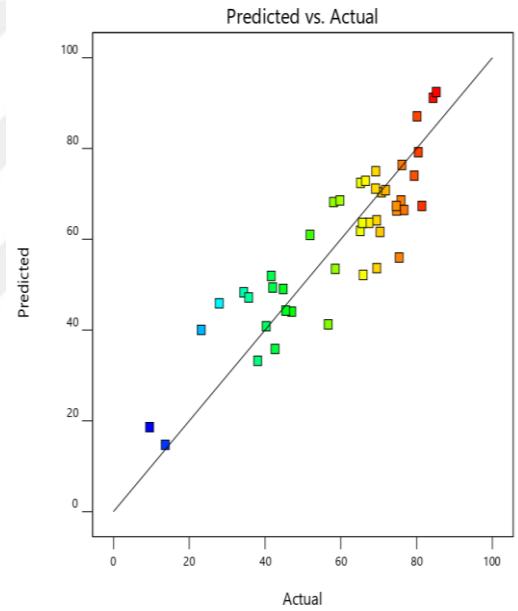
(a)



(b)



(c)



(d)

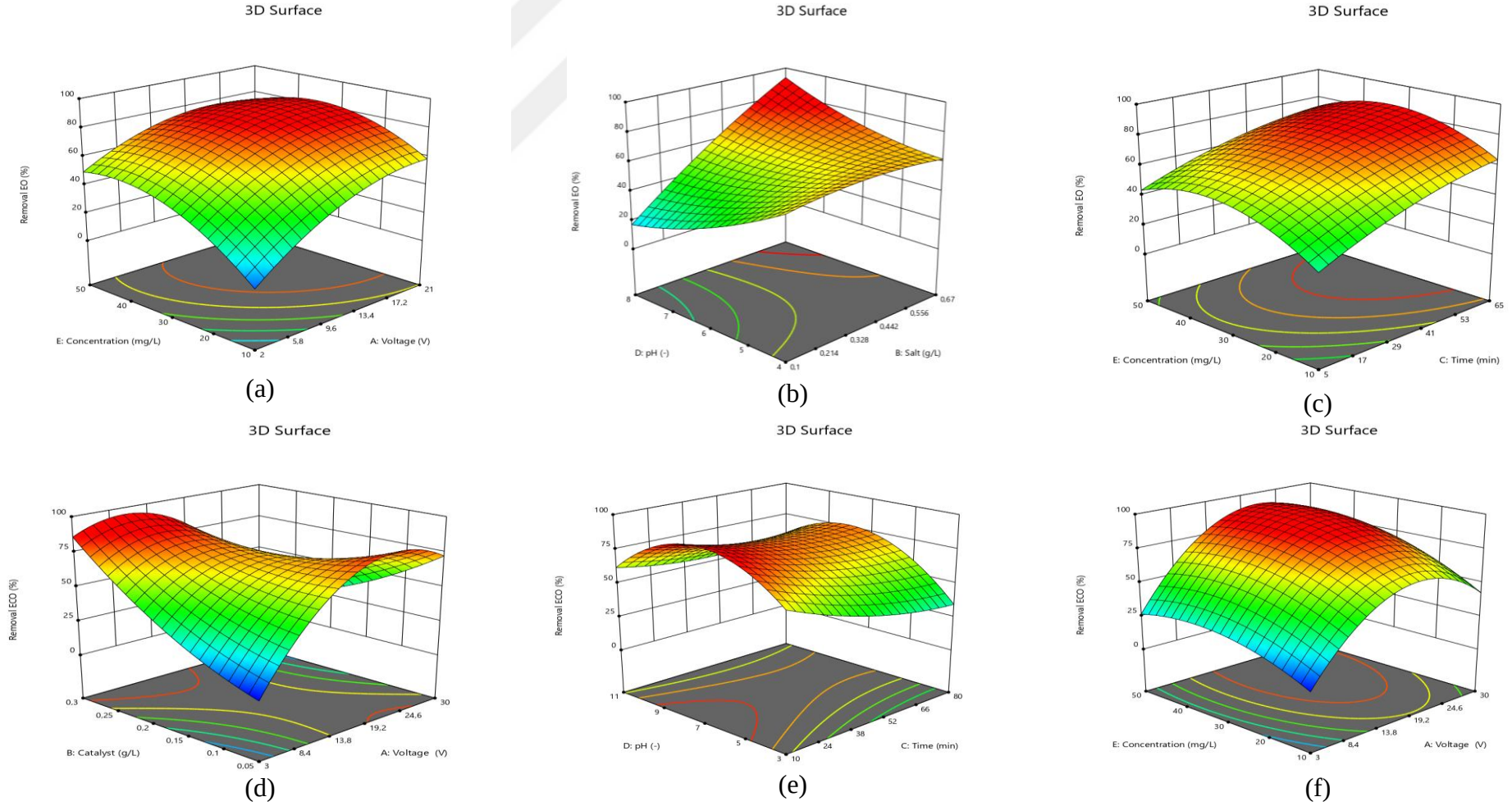
Şekil 4.20. R₁ ve R₂ deney kapasitesi kalıntıların normal % olasılık grafiği (a), (b) R₁ ve R₂ için OTC gideriminin tahmin edilen ve gerçek değerler arasındaki yakınlığı gösteren grafik (c), (d)

Şekil 4.20(a,b)'de sunulan normal yüzde olasılık grafiği, deneysel kapasite artıklarının normal bir dağılım izleme eğiliminde olduğunu gösterir. Grafikteki noktaların doğruya yakın dağılımı, verilerin normallik varsayımını büyük ölçüde karşıladığını ortaya koymakta ve böylece istatistiksel analizlerin güvenilirliğini artırmaktadır (Manzar vd., 2021). Bu durum, analizlerde kullanılan varsayımların karşılanmasını sağlamakta ve elde edilen sonuçların güvenilirliğini artırır. Şekil 4.20 (c,d), tahmin edilen elektrokimyasal veriler ile gerçek değerler arasındaki ilişkiyi görselleştirerek modelin

tahmin başarısını deęerlendirmemizi saęladı. Grafikteki noktaların doęrusala yakın daęılımı, modelin tahminlerinin gerek deęerlerle olduka tutarlı olduęunu ve modelin düşük bir hata oranına sahip olduęunu gösterir. Noktaların izgiden önemli ölçüde sapması, modelin bazı veri noktaları için yeterince iyi tahminler üretmedięini gösterir. Şekil 4.20'deki grafikler görsel analiz için kullanışlıdır ve deneysel sonuçların yorumlanmasına önemli katkılar saęladı.

4.4.2. Seçilen Parametrelerin OTC Giderimi Üzerindeki Etkileri

Elektrokimyasal yöntemlerle yürütölen OTC giderim alışmalarında parametrelerin etkisi 3 boyutlu yüzey grafiklerle analiz edildi. Tasarlanmış deęişkenlerin yanıt fonksiyonu üzerindeki etkileri Şekil 4.21'de gösterilmektedir.



Şekil 4.21. Parametrelerin OTC giderimi üzerindeki etkilerini gösteren 3D yüzey grafikleri

4.4.2.1. Başlangıç pH Etkisi

Elektrokimyasal yöntemlerle farklı pH değerlerinde OTC giderimi şekil 4.21b ve 4.21e'de gösterilmektedir. Çözelti pH'sı, katalitik bozunma hızını ve reaktif oksijen türlerinin oluşumunu etkileyen kritik bir parametredir (Zhang vd., 2024). Ayrıca pH, üç boyutlu ECO sistemlerde partikül elektrotun yüzey yük özelliklerini ve adsorplama kapasitesini etkileyebilmektedir. Optimum koşulların belirlenmesi için CCD-RSM tarafından geniş bir pH aralığı tasarlandı. Her iki elektrokimyasal yöntem için OTC bozunma verimliliği pH'ın artmasıyla arttı ve sonrasında azaldı. Yüksek pH değerlerinde, OH üretiminin engellendiği ve bu da, OTC gideriminin azalmasına neden olmuştur. EO ve ECO çalışmalarında pH 7 optimum değer olarak kabul edildi.

4.4.2.2. Katalizör Miktarı Etkisi

Şekil 4.21d, katalizör miktarının OTC giderim verimliliği üzerindeki etkisini göstermektedir. Üç fazlı sistemlerde, elektrokimyasal hücrenin performansı sadece ana elektrotlara değil, partikül elektrot malzemesine de büyük ölçüde bağlıdır. ECO deneylerinde TiO_2/AC katalizörü 0,05-0,3 (g/L) aralığında çalışıldı. Katalizör miktarının 0,05'ten 0,3'e doğru arttıkça, OTC giderim verimliliğinin %60'dan %85'e doğru attığı gözlemlendi. Artan giderim oranları, kompozit katalizör malzemenin daha geniş bir aktif alan sunmasından kaynaklanmaktadır (Liu vd., 2022). Ayrıca, bu durum partikül elektrodun adsorpsiyon kapasitesinin artmasıyla da açıklanabilir. ECO deneylerinde katalizör miktarı 0,25 g/L optimum değer olarak kabul edildi. Ancak, yüksek oranlarda katalizör miktarı, elektrokatalitik aktivitenin düşmesine ve OTC % giderim performansının azalmasına neden olmuştur (Chen vd., 2021).

4.4.2.3. Voltaj Etkisi

Elektrokimyasal sistemlerde akım yoğunluğu, bozunma hızını ve giderim verimliliğini doğrudan etkiler. Aynı zamanda, partikül elektrodun polarizasyon davranışını etkileyen önemli bir parametredir (Wang vd., 2022). Elektrokimyasal yöntemlerle OTC giderimi üzerinde voltaj etkisi Şekil 4.21a ve 4.21d'de gösterilmektedir. Yapılan EO deneylerinde voltaj arttıkça OTC % giderim oranlarının artması, yüksek akım yoğunluğundan kaynaklanmaktadır (Zhang vd., 2022). Ancak sonuçlar, voltaj artışının

elektrokatalitik sistem üzerinde çok az etkiye sahip olduğunu gösterdi. Dolayısıyla, düşük voltajlarda gözlenen yüksek giderim verimliliği, üç fazlı sistemlerdeki partikül elektrotun yüksek elektrokimyasal aktivitesinden kaynaklanmaktadır. Yapılan EO ve ECO deneylerde, sırasıyla 15V ve 10V optimum değerler olarak kabul edildi.

4.4.2.4. Başlangıç Konsantrasyon Etkisi

OTC giderimi üzerinde başlangıç konsantrasyon etkisi Şekil 4.21a ve 4.21f'de gösterilmektedir. Her iki elektrokimyasal yöntem için başlangıç konsantrasyonu 10 mg/L ila 50 mg/L aralığında çalışıldı. Başlangıç konsantrasyonun 10'dan 50'e doğru artırılmasıyla, EO yöntem için %8'den %57'e, ECO yöntem için %43'ten %69'a doğru OTC % giderim oranlarında artış olduğu gözlemlendi. Konsantrasyonun artmasıyla % giderim oranları her iki elektrokimyasal yöntem için arttı ve ardından azaldı. EO yöntem için 36 mg/L, ECO yöntem için 30 mg/L optimum % giderim değerleri olarak kabul edildi. Yüksek konsantrasyonlarda kütle transfer verimliliği azaldığı için OTC giderimin performansında bir düşüş gözlemlendi. Ayrıca, bu düşüş etkileşimi engelleyebilecek yan ürünlerin oluşumuyla da açıklanabilir (Nguyen vd., 2021).

4.4.2.5. Temas Süresi ve Elektrolit Konsantrasyon Etkisi

Görsel 4.21c ve 4.21e'den görüldüğü gibi, temas süresi OTC giderimi üzerinde etkili olan parametrelerden biridir. OTC %giderim performansı temas süresi arttıkça %21'den %79'a doğru artış gözlemlendi. EO deneyleri için 45 dakika, ECO deneyleri için ise 30 dakika optimum değerler olarak kabul edildi. Akım yoğunluğunun seviyesine bağlı olarak temas süresi arttıkça giderim verimliliğinin arttığı ve sonrasında azaldığı gözlemlenmiştir (Leili vd., 2020).

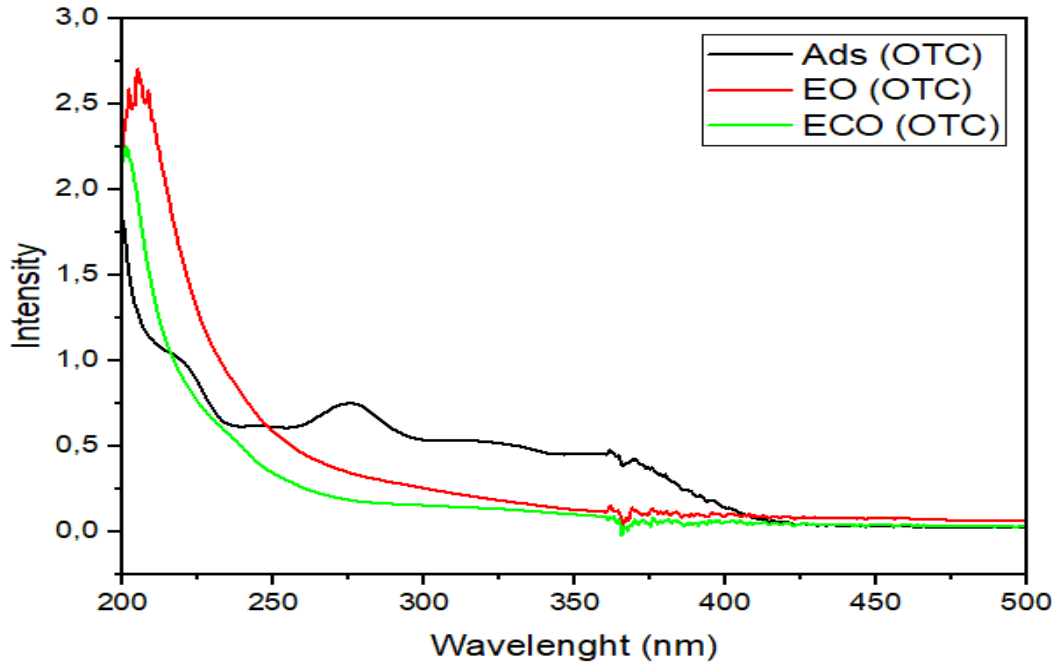
Çözeltinin iletkenliğini ve elektrokatalitik bozunmayı etkileyen ana parametrelerden biri olan elektrolit konsantrasyon etkisi 4.21b'de gösterilmektedir. OTC giderimi üzerinde elektrolit konsantrasyon etkisi 0,1-0,67 (g/L) aralığında NaCl kullanılarak incelenmiştir. OTC bozunma verimliliği, konsantrasyonun artmasıyla birlikte %28'den %74'e doğru arttı. Dolayısıyla, elektrolit konsantrasyonundaki artış, elektron transferini ve parçacıklar arasındaki çarpışma olasılığını arttırmıştır (Dai vd., 2014).

EO deneyleri için 0,5 g/L NaCl optimum değer olarak belirlendi. Ayrıca, elde edilen bu optimum değer tüm ECO deneyleri için sabit tutuldu.

4.4.3. Parametrelerin Optimizasyonu

Elektrokimyasal giderim verimliliğini etkileyen parametreler CCD-RSM yöntemiyle optimize edildi. OTC giderimi için istenilen hedefin maksimum ve aynı zamanda diğer bağımsız değişkenlerin belirli aralıklar içinde ayarlanmasıyla optimum koşullar belirlendi. Deney seti tasarımı, EO çalışmaları için optimum koşullar 15 V voltaj, 0,5 g/L tuz miktarı, 7 pH değeri, 36 mg/L başlangıç konsantrasyonu ve 45 dakika temas süresi olarak belirlenmişken, ECO deneyleri için ise bu koşullar 10 V voltaj, 0,25 g/L katalizör miktarı, 7 pH değeri, 30 mg/L başlangıç konsantrasyonu ve 30 dakika temas süresi olarak tespit edildi. EO ve ECO deneylerinin sonuçlarına göre, simüle edilmiş OTC atığı üzerinde sırasıyla %79 ve %86 oranında giderim verimliliği elde edildi. Optimizasyon sonuçlarından elde edilen (R_1 Desirability = 1 ve R_2 Desirability = 0,99) değerler, tahmin edilen değerlerin deneysel verilere uyumlu olduğunu gösterdi.

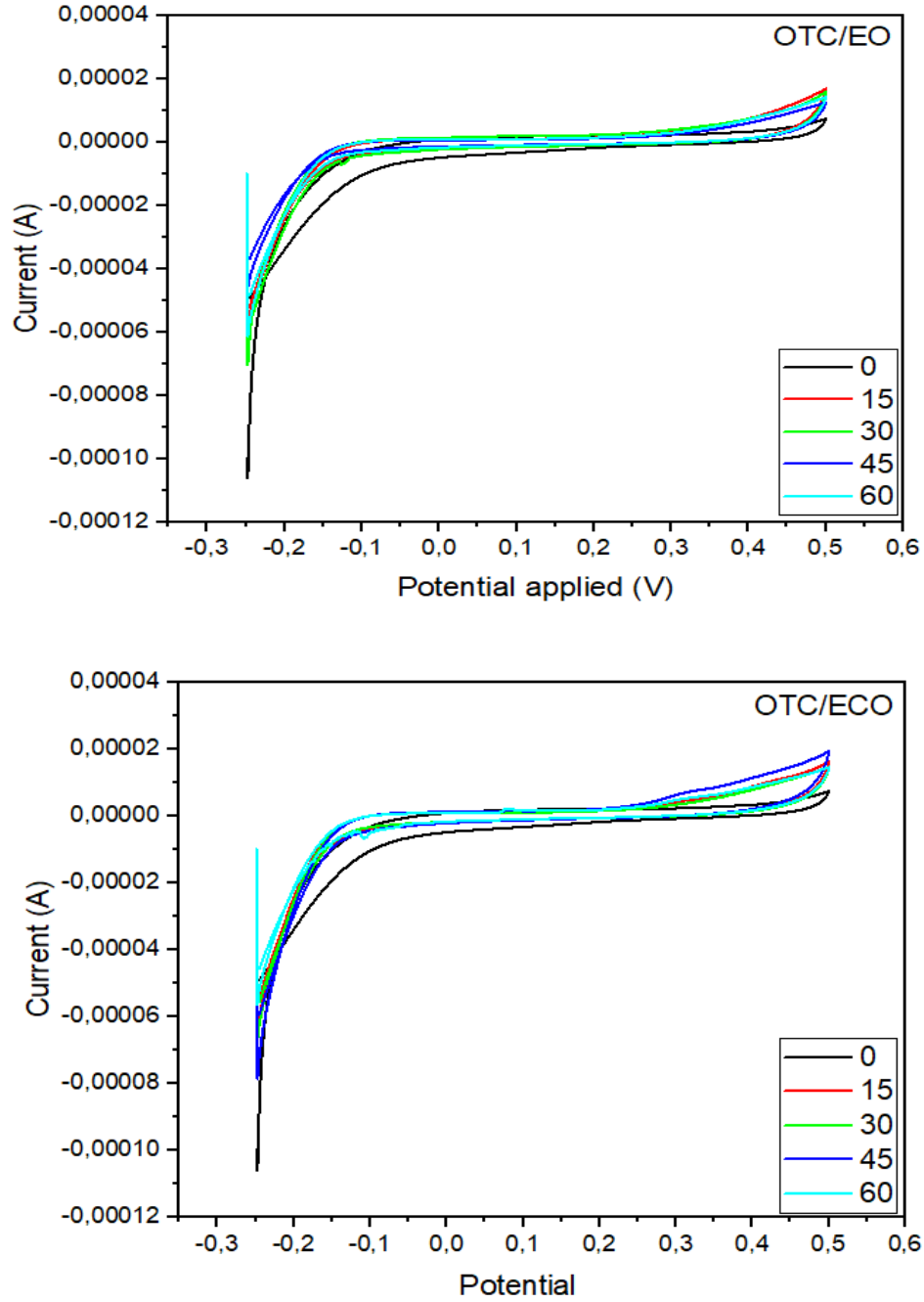
4.4.4. UV-Vis Spektrumları



Şekil 4.22. Adsorpsiyon, EO, ECO UV-Vis spektrumları

OTC giderim performansının UV-Vis spektrumları Şekil 4.22'de gösterilmektedir. Görüldüğü gibi ECO yöntemi, 60 dakikalık süre zarfında diğer yöntemlere kıyasla daha etkili bir yöntemdir. Burada EO prosesi adsorpsiyondan daha aktif iken, ECO prosesi en etkili performansa sahiptir.

4.4.5. Döngüsel Voltammetri (CV) analizi

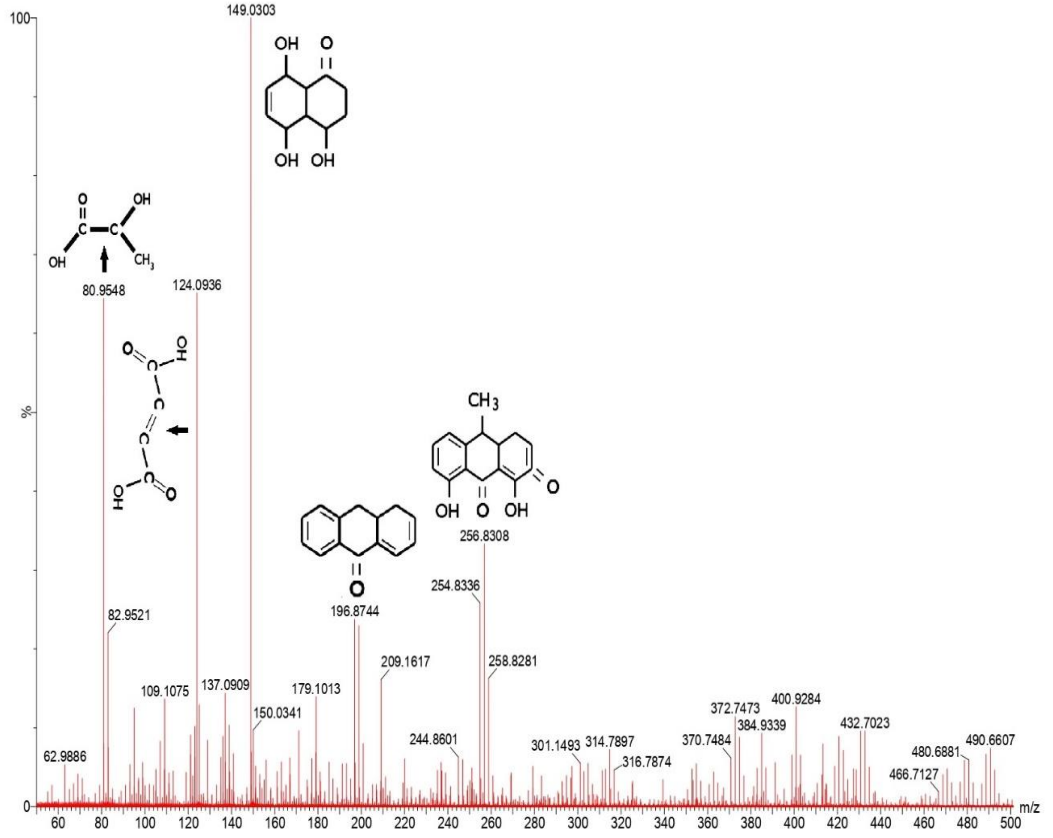


Şekil 4.23. OTC CV analizi

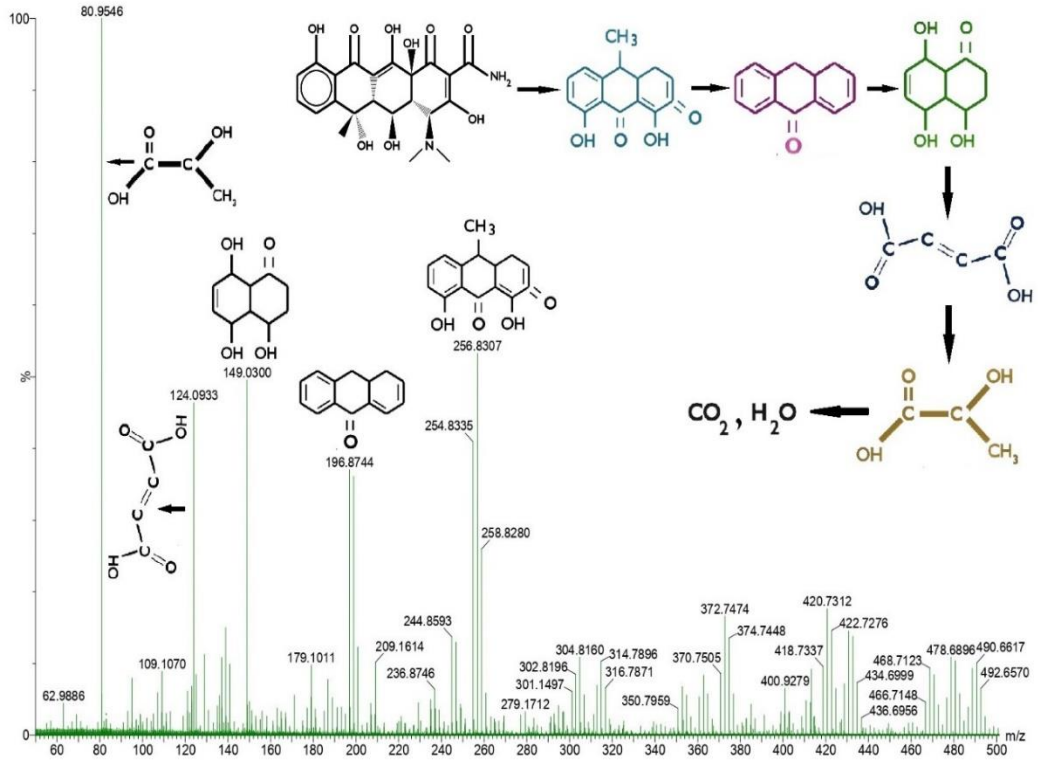
OTC antibiyotiğinin EO yöntemi ile degradasyonunda elde edilen döngüsel voltametri verileri Şekil 4.23'de gösterilmiştir. Bu şekle göre -0,3 ve 0,6volt potansiyel aralığında iki farklı fikir tanımlayabiliriz, bunlardan biri pozitif potansiyel alanına karşılık gelen 0,0volt ve 0,6volt arasındadır. Diğerisi ise -0,3 ile 0,3volt arasında olup pozitif potansiyel alana karşılık gelmektedir. Bu veriler dikkatle incelendiğinde, OTC antibiyotiğin indirgenmiş formu ilkinde tanımlanan potansiyel aralığında daha kolay oksitlenmektedir. İkinci potansiyel aralığı, birinci potansiyel aralığından daha düşük pikler üretmektedir. Bu, OTC antibiyotiğinin indirgenmiş formunun -0,3 ve 0,3 V potansiyel aralığında oksitlenmesinin daha zor olduğunu gösterir.

ECO verileriyle karşılaştırıldığında benzer spektrumlar elde edildi. Bu sonuç, OTC antibiyotiğinin elektrooksidasyonda olduğu gibi benzer redoks reaksiyonlarına sahip olduğunu gösterir. Bununla birlikte, bir fark, elektrokatalitik oksidasyonda, elektrooksidasyona göre pozitif alandaki potansiyel aralığının, sırasıyla 45 ve 15 dakikadaki bozunma sonucuna göre maksimum pik alanını vermesidir. Bu sonuç, antibiyotik molekülünün katalizör yüzeyine adsorpsiyonundan kaynaklanmaktadır.

4.4.6. Yüksek Çözünürlüklü Kütle Spektrometresi (HRMS) Analizi



Şekil 4.24. EO ürünlerinin HRMS analizi



Şekil 4.25. ECO ürünlerinin HRMS analizi

Şekil 4.22,4.23 malzemelerin EO ve ECO yöntemleriyle bozunmasına ilişkin HRMS sonuçlarını göstermektedir. Analiz sonuçları incelendiğinde, hem EO hem de ECO tarafından oluşturulan bozunma ürünleri neredeyse aynı görünmektedir. Ancak düşük m/z'nin kütle % değeri ECO yönteminde daha yüksektir. Bu sonuçlar ECO yönteminin EO'ya göre daha fazla aktivite gösterdiğini doğrulamaktadır. Kısacası, katalizör OTC molekülündeki yapıların bozunmasında daha etkili olduğu görüldü. Bu sonuçlar, oksidasyon işlemi sırasında oksitetrasiklinin yapısındaki çeşitli bağların bölünmesine uğrayabileceği gerçeğiyle açıklanabilir (Cheng vd., 2023). Bu, daha düşük moleküler ağırlığa sahip daha küçük parçaların oluşmasıyla sonuçlanır. HRMS analizinde, m/z bir iyonun kütle-yük oranını temsil eder. Daha düşük moleküler ağırlığa sahip fragmanlar, ana oksitetrasiklin molekülüne kıyasla daha düşük m/z değerlerine sahip olacaktır. Elektrokatalizörler, doğrudan elektrooksidasyona kıyasla daha güçlü oksitleyici koşulları teşvik edebilir. Bu, oksitetrasiklin molekülünün daha kapsamlı parçalanmasına yol açarak daha düşük m/z değerlerine sahip daha küçük parçaların oluşmasına neden olabilir. Ayrıca, numunedeki katalizör, oksitetrasiklin molekülü

içindeki belirli bağlara karşı seçicilik sergileyebilir. Bu, doğrudan elektrooksidasyonda gözlemlenen daha geniş parçalanma modeline kıyasla daha düşük m/z değerlerine sahip belirli parçaların tercihli oluşumuna yol açabilir.



5. SONUÇLAR

Sunulan tez çalışmasında, $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ manyetik nanoadsorban malzemenin adsorpsiyon özellikleri, simüle edilmiş atık su örneklerinden Pb^{2+} ve Cd^{2+} gibi tehlikeli ağır metallerin giderimi için araştırıldı. Karakterizasyon çalışmaları sonucunda, düz zincirli poliakrilamidin malzeme yüzeyinde spesifik aktif bölgeler sağladığı belirlendi. Toplu sorpsiyon deneysel verilerinin analizi ile aşağıdaki sonuçlara ulaşıldı:

- Adsorban miktarı (30 mg), pH değeri 7, sıcaklık (40°C), başlangıç Pb (80 mg/L), Cd (20 mg/L) konsantrasyonu ve 90 (dk) temas süresi Pb^{2+} ve Cd^{2+} etkili adsorpsiyonu için optimum koşullardır.
- Maksimum adsorpsiyon kapasiteleri Pb^{2+} ve Cd^{2+} için sırasıyla 66.54 ve 13.22 mg/g olarak belirlendi. Özellikle Cd^{2+} adsorpsiyon çalışmalarında düşük konsantrasyon aralıklarında etkili olduğu görüldü.
- Yüksek adsorpsiyon hızı nedeniyle kısa sürede dengeye ulaştığı ve kinetik sonuçlardan reaksiyon hızının yalancı ikinci dereceden reaksiyonu takip ettiği görüldü.
- Adsorpsiyon izoterm çalışmaları, verilerin Langmuir > Freundlich düzeninde daha iyi bir uyum gösterdiğini ortaya koydu.
- Her iki metalin adsorpsiyon kapasiteleri göz önüne alındığında, $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ nanoadsorbent malzemenin Pb^{2+} iyonlarına karşı yüksek afinite ve seçici adsorpsiyon özellikleri sergilediği görüldü.
- $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ suda iyi bir dağılıma sahiptir ve harici manyetik alan aracılığıyla sulu çözeltiden toplanabilir.

Elektrooksidasyon çalışmalarında partikül elektrot olarak, aktif karbon destekli TiO_2/AC kompozit malzemenin karakterizasyonu, yapısal, morfolojik ve yüzey özellikleri detaylı olarak incelendi. Elektrooksidasyon yöntemleriyle FLQ antibiyotiğinin farklı parametrelerde giderim performansı incelendi. FLQ antibiyotiğinin bozunması sonucu oluşan ara ürünler, çözeltideki elektroaktif bileşenlerin konsantrasyonunu ve elektrokimyasal özelliklerini belirlendi.

- Tasarlanan deney setinde, elektrooksidasyon çalışmaları için optimum koşullar 15 V voltaj, 0,5 g/L tuz miktarı, 5,4 pH değeri, 35 mg/L başlangıç konsantrasyonu ve 45 dakika temas süresi olarak belirlenirken, elektrokimyasal deneyler için bu koşullar 7 V voltaj olarak belirlendi. 0,25 g/L katalizör miktarı, 5 pH değeri, 40 mg/L başlangıç konsantrasyonu ve 60 dakika temas süresi olarak belirlendi.
- Elde edilen veriler, değişkenlerin her birinin elektrokimyasal işlem sırasında kirleticinin giderilmesinde önemli rol oynadığını ortaya koydu. Elektrooksidasyon ve elektrokimyasal deneyler sonucunda, simüle edilen FLQ atığında sırasıyla %81 ve %98 giderme verimi elde edildi. Bu, üç fazlı elektrokimyasal sistemin performansının geleneksel iki fazlı sistemlerden daha iyi olduğunu gösterdi.
- Döngüsel voltammetri sonuçlarından, elektrokimyasal oksidasyon sonucu 15 dakikada oluşan ürünlerin kolayca oksitlenebilen ve indirgenebilen maddeler olduğu, elektrooksidasyonda ise daha düşük verim gözlemlendiği görüldü.
- HRMS analiz sonuçlarından, ECO deneysel sonucu sonucunda FLQ'yu oluşturan tüm halkaların kırıldığı ve EO'dan daha yüksek performans gösterdiği sonucuna varıldı.
- Sudaki organik kirleticilerin giderilmesinde elektrokimyasal yöntemlerin etkinliğini değerlendirmek amacıyla yürütülen çalışma, optimizasyon model tabanlı bir yaklaşımı vurgulayarak başarılı bir çözüm sundu. Sunulan çalışma sonuçları, FLQ gibi kalıcı kirleticilerin elektrokimyasal atık su arıtma uygulamalarında etkili bir şekilde giderilebileceğini gösterdi.

Elektrooksidasyon yöntemleriyle OTC antibiyotiğinin farklı parametrelerde giderim performansı incelendi. OTC antibiyotiğinin elektrokimyasal olarak parçalanması sonucu oluşan ara ürünler ve bu ürünlerin çözeltideki elektroaktif bileşenlerin konsantrasyonları ve elektrokimyasal davranışları analiz edildi.

- EO-Deneysel set tasarımında optimum koşullar 15 V voltaj, 0,5 g/L tuz miktarı, 7 pH değeri, 36 mg/L başlangıç konsantrasyonu ve 45 dakika temas süresi olarak belirlendi. Optimum koşullar altında gerçekleştirilen deney sonuçlarına göre simüle edilen OTC antibiyotiğin giderim verimliliği %79

olarak bulundu. Ayrıca CV sonuçları EO yönteminde oluşan ürünlerin daha az ve daha düşük oranlarda oluştuğunu gösterdi.

- ECO-Deneysel set tasarımında optimum koşullar 10 V voltaj, 0,25 g/L katalizör miktarı, 7 pH değeri, 30 mg/L başlangıç konsantrasyonu ve 30 dakika temas süresi olarak belirlendi. Bu sonuçlar ECO yöntemi ile yapılan deneylerde çok daha kısa sürede %86 giderim verimliliği elde edilebileceğini gösterdi. CV sonuçları ECO deneyleri sonucunda oluşan ürünlerin kolayca oksitlenebilen ve indirgenebilen bileşikler olduğunu gösterdi.
- Ayrıca bu çalışmadan, HRMS analiz sonuçlarından üç fazlı elektrokimyasal sistemin (ECO) geleneksel iki fazlı (EO) sistemlere göre daha etkili olduğu ve ECO yönteminin OTC oluşturan halkaları kırarak EO'dan daha yüksek performans gösterdiği anlaşıldı. CCD-RSM optimizasyon modeli kullanılarak yapılan istatistiksel değerlendirmede, elektrokimyasal yöntemlerin etkinliği araştırılmış ve yöntemlerin OTC gibi dirençli antibiyotiklerin ortadan kaldırılmasında umut verici bir potansiyele sahip olduğu görüldü.

Sonuç olarak sunulan çalışmada adsorpsiyon ve elektrookidasyon yöntemleriyle organik ve inorganik çevre kirleticilerinin giderimi gerçekleştirildi. CCD-RSM optimizasyon modeli ile ağır metal ve antibiyotik kirleticilerinin ana parametreleri dikkate alınarak deney tasarım uygulandı. Bu tez çalışmasının atık su arıtımında çeşitli çevre kirleticilerinin giderilmesi için oldukça umut verici bir potansiyele sahip olacağı ve gelecekte yapılabilecek benzer çalışmalara önemli katkılar sağlayacağı düşünülmektedir.

KAYNAKLAR

- Ajam, F., Khourshidi, A., Rabieian, M., & Taghavijeloudar, M. (2025). Per-and polyfluoroalkyl degradation in a hybrid dielectric barrier discharge plasma and electrooxidation system through involving more reactive species by air and water circulation. *Journal of Hazardous Materials*, 137287.
- Al Masud, M. A., Shin, W. S., Septian, A., Samaraweera, H., Khan, I. J., Mohamed, M. M., ... & Rahman, S. (2024). Exploring the environmental pathways and challenges of fluoroquinolone antibiotics: A state-of-the-art review. *Science of The Total Environment*, 171944.
- Alsalmeh, A. (2023). Organic-Inorganic hybrid membrane for simultaneous heavy metal removal at drinking water pollution concentration levels. *Microchemical Journal*, 195, 109447.
- Argun, M. E., Dursun, S., Ozdemir, C., & Karatas, M. (2007). Heavy metal adsorption by modified oak sawdust: Thermodynamics and kinetics. *Journal of hazardous materials*, 141(1), 77-85.
- Aryee, A. A., Mpatani, F. M., Du, Y., Kani, A. N., Dovi, E., Han, R., ... & Qu, L. (2021). Fe₃O₄ and iminodiacetic acid modified peanut husk as a novel adsorbent for the uptake of Cu (II) and Pb (II) in aqueous solution: characterization, equilibrium and kinetic study. *Environmental Pollution*, 268, 115729.
- Azari, A., Malakoutian, M., Yaghmaeian, K., Jaafarzadeh, N., Shariatifar, N., Mohammadi, G., ... & Kamani, H. (2022). Magnetic NH₂-MIL-101 (Al)/Chitosan nanocomposite as a novel adsorbent for the removal of azithromycin: modeling and process optimization. *Scientific Reports*, 12(1), 18990.
- Badrudodoza, A. Z. M., Shawon, Z. B. Z., Tay, W. J. D., Hidajat, K., & Uddin, M. S. (2013). Fe₃O₄/cyclodextrin polymer nanocomposites for selective heavy metals removal from industrial wastewater. *Carbohydrate polymers*, 91(1), 322-332.
- Bajpai, M., Katoch, S. S., Kadier, A., & Ma, P. C. (2021). Treatment of pharmaceutical wastewater containing cefazolin by electrocoagulation (EC): Optimization of various parameters using response surface methodology (RSM), kinetics and isotherms study. *Chemical Engineering Research and Design*, 176, 254-266.
- Bensalah, N., Midassi, S., Ahmad, M. I., & Bedoui, A. (2020). Degradation of hydroxychloroquine by electrochemical advanced oxidation processes. *Chemical Engineering Journal*, 402, 126279.

- Bhatt, S., & Chatterjee, S. (2022). Fluoroquinolone antibiotics: Occurrence, mode of action, resistance, environmental detection, and remediation—A comprehensive review. *Environmental Pollution*, 315, 120440.
- Boulahbal, M., Malouki, M. A., Canle, M., Redouane-Salah, Z., Devanesan, S., AlSalhi, M. S., & Berkani, M. (2022). Removal of the industrial azo dye crystal violet using a natural clay: Characterization, kinetic modeling, and RSM optimization. *Chemosphere*, 306, 135516.
- Chen, Y., Jiao, X., Du, M., Li, R., Wei, Y., & Zhang, Y. (2023). Electrochemically promoted oxidation of oxytetracycline on $\text{MnO}_2@(\text{PSS/PDDA})$ Au anode with peroxymonosulfate: Mechanism and toxicity study. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 144, 104720.
- Chen, Y., Li, F., Dong, X., Guo, D., Huang, Y., & Li, S. (2021). Construction of $\text{rGO}@ \text{Ti/SnO}_2\text{-Sb}$ composite electrode for electrochemical degradation of fluoroquinolone antibiotic. *Journal of Alloys and Compounds*, 869, 159258.
- Chen, Z., Zhang, S., Liu, Y., Alharbi, N. S., Rabah, S. O., Wang, S., & Wang, X. (2020). Synthesis and fabrication of g-C₃N₄-based materials and their application in elimination of pollutants. *Science of the Total Environment*, 731, 139054.
- Cheng, X., Guan, R., Chen, Y., Qian, Y., Shang, Q., & Sun, Y. (2023). Adsorption and photocatalytic degradation process of oxytetracycline using mesoporous Fe-TiO₂ based on high-resolution mass spectrometry. *Chemical Engineering Journal*, 460, 141618.
- Chin, J. Y., Ahmad, A. L., & Low, S. C. (2023). Graphitic carbon nitride photocatalyst for the degradation of oxytetracycline hydrochloride in water. *Materials Chemistry and Physics*, 301, 127626.
- Choi, H., Han, H. H., Parale, V. G., Kim, T., Park, W., Kim, Y., ... & Park, H. H. (2024). Rigid amine-incorporated silica aerogel for highly efficient CO₂ capture and heavy metal removal. *Chemical Engineering Journal*, 483, 149357.
- Dai, Q., Xia, Y., Sun, C., Weng, M., Chen, J., Wang, J., & Chen, J. (2014). Electrochemical degradation of levodopa with modified PbO₂ electrode: Parameter optimization and degradation mechanism. *Chemical Engineering Journal*, 245, 359-366.
- Darabian, L. M., Gonçalves, G. R., Schettino Jr, M. A., Passamani, E. C., & Freitas, J. C. (2022). Synthesis of nanostructured iron oxides and study of the thermal crystallization process using DSC and in situ XRD experiments. *Materials Chemistry and Physics*, 285, 126065.
- Ding, Y., Zhu, W., Xu, Y., & Qian, X. (2015). A small molecular fluorescent sensor functionalized silica microsphere for detection and removal of mercury,

cadmium, and lead ions in aqueous solutions. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 220, 762-771.

- Dong, L., Zhuang, Z., Dong, G., Zhang, H., Zhu, M., Zhang, Z., ... & Zhang, W. (2023). A novel ZnFe_2O_4 intermediate layer for improving the electrocatalytic performance of Ti/Ce-PbO_2 anode toward Levofloxacin removal. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 11(5), 110865.
- Ebrahimpour, E., & Kazemi, A. (2023). Mercury (II) and lead (II) ions removal using a novel thiol-rich hydrogel adsorbent; $\text{PHPAm/Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2\text{-SH}$ polymer nanocomposite. *Environmental Science and Pollution Research*, 30(5), 13605-13623.
- Ece, M. Ş. (2021). Synthesis and characterization of activated carbon supported magnetic nanoparticles ($\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{AC}@\text{SiO}_2@\text{Sulfanilamide}$) and its application in removal of toluene and benzene. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 617, 126231.
- Ece, M. Ş. (2021). Synthesis and characterization of activated carbon supported magnetic nanoparticles ($\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{AC}@\text{SiO}_2@\text{Sulfanilamide}$) and its application in removal of toluene and benzene. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 617, 126231.
- Elsayed, A. E., Attia, S. K., Mahmoud, G. A., Mostafa, Y. M., Taman, A. R., & Osman, D. I. (2023). Environmentally friendly radiation EDTA modified hydrogel based on gelatin for adsorptive removal of cationic and anionic dye from synthetic wastewater. *Egyptian Journal of Petroleum*, 32(4), 30-35.
- El-Sharkawy, M., Li, J., Kamal, N., Mahmoud, E., Omara, A. E. D., & Du, D. (2023). Assessing and Predicting Soil Quality in Heavy Metal-Contaminated Soils: Statistical and ANN-Based Techniques. *Journal of Soil Science and Plant Nutrition*, 23(4), 6510-6526.
- Emamjomeh, M. M., Shabanloo, A., Ansari, A., Esfandiari, M., Mousazadeh, M., & Tari, K. (2024). Anodic oxidation of ciprofloxacin antibiotic and real pharmaceutical wastewater with Ti/PbO_2 electrocatalyst: Influencing factors and degradation pathways. *Journal of Water Process Engineering*, 57, 104662.
- Eskandari, P., Amarloo, E., Zangeneh, H., Rezakazemi, M., & Aminabhavi, T. M. (2023). Photocatalytic degradation of metronidazole and oxytetracycline by novel l-Arginine (C, N codoped)- $\text{TiO}_2/\text{g-C}_3\text{N}_4$: RSM optimization, photodegradation mechanism, biodegradability evaluation. *Chemosphere*, 337, 139282.
- Eslamian, S., Parvizi, S., Ostad-Ali-Askari, K., & Hossein, T. (2018). *Encyclopedia of engineering geology: water*. Springer, Cham.
- Faaizatunnisa, N., Ediati, R., Fansuri, H., Juwono, H., Suprpto, S., Hidayat, A. R. P., & Zulfa, L. L. (2023). Facile green synthesis of core-shell magnetic MOF

composites ($\text{Fe}_3\text{O}_4@ \text{SiO}_2@ \text{HKUST-1}$) for enhanced adsorption capacity of methylene blue. *Nano-Structures & Nano-Objects*, 34, 100968.

- Foroutan, R., Peighambaroust, S. J., Mohammadi, R., Peighambaroust, S. H., & Ramavandi, B. (2022). Development of new magnetic adsorbent of walnut shell ash/starch/ Fe_3O_4 for effective copper ions removal: treatment of groundwater samples. *Chemosphere*, 296, 133978.
- Gawande, M. B., Monga, Y., Zboril, R., & Sharma, R. K. (2015). Silica-decorated magnetic nanocomposites for catalytic applications. *Coordination Chemistry Reviews*, 288, 118-143.
- Gharaghani, M. A., Dehdarirad, A., Mahdizadeh, H., Hashemi, H., Nasiri, A., Samaei, M. R., & Mohammadpour, A. (2024). Photocatalytic degradation of Acid Red 18 by synthesized $\text{AgCoFe}_2\text{O}_4@ \text{Ch/AC}$: Recyclable, environmentally friendly, chemically stable, and cost-effective magnetic nano hybrid catalyst. *International Journal of Biological Macromolecules*, 269, 131897.
- Gharibzadeh, F., Kalantary, R. R., Esrafil, A., Ravanipour, M., & Azari, A. (2019). Desorption kinetics and isotherms of phenanthrene from contaminated soil. *Journal of Environmental Health Science and Engineering*, 17, 171-181.
- Gu, W., Xue, F., Han, W., Wang, Z., Zhao, J., Zhang, L., ... & Jiang, J. (2023). Assessment of the spatial association between multiple pollutants of surface water and digestive cancer incidence in China: a novel application of spatial machine learning. *Ecological Indicators*, 154, 110897.
- Gui, C. X., Li, Q. J., Lv, L. L., Qu, J., Wang, Q. Q., Hao, S. M., & Yu, Z. Z. (2015). Core-shell structured $\text{MgO}@$ mesoporous silica spheres for enhanced adsorption of methylene blue and lead ions. *RSC Advances*, 5(26), 20440-20445.
- Gul, I., Sayed, M., Shah, N. S., Khan, J. A., Polychronopoulou, K., Iqbal, J., & Rehman, F. (2020). Solar light responsive bismuth doped titania with Ti^{3+} for efficient photocatalytic degradation of flumequine: Synergistic role of peroxymonosulfate. *Chemical Engineering Journal*, 384, 123255.
- Guo, X., Du, B., Wei, Q., Yang, J., Hu, L., Yan, L., & Xu, W. (2014). Synthesis of amino functionalized magnetic graphenes composite material and its application to remove Cr (VI), Pb (II), Hg (II), Cd (II) and Ni (II) from contaminated water. *Journal of hazardous materials*, 278, 211-220.
- Guo, X., Du, B., Wei, Q., Yang, J., Hu, L., Yan, L., & Xu, W. (2014). Synthesis of amino functionalized magnetic graphenes composite material and its application to remove Cr (VI), Pb (II), Hg (II), Cd (II) and Ni (II) from contaminated water. *Journal of hazardous materials*, 278, 211-220.
- Harinath, Y., Reddy, D. H. K., Sharma, L. S., & Sessaiah, K. (2017). Development of hyperbranched polymer encapsulated magnetic adsorbent ($\text{Fe}_3\text{O}_4@ \text{SiO}_2\text{-NH}_2$ -

- PAA) and its application for decontamination of heavy metal ions. *Journal of environmental chemical engineering*, 5(5), 4994-5001.
- Hashemi, S. A., Mousavi, S. M., & Ramakrishna, S. (2019). Effective removal of mercury, arsenic and lead from aqueous media using Polyaniline-Fe₃O₄-silver diethyldithiocarbamate nanostructures. *Journal of Cleaner Production*, 239, 118023.
- Hashemi, S. Y., Azari, A., Raeesi, M., & Yaghmaeian, K. (2023). Application of response surface methodology (RSM) in optimisation of fluoride removal by magnetic chitosan/graphene oxide composite: kinetics and isotherm study. *International Journal of Environmental Analytical Chemistry*, 103(17), 5368-5386.
- Herraiz-Carboné, M., Cotillas, S., Lacasa, E., Vasileva, M., de Baranda, C. S., Riquelme, E., ... & Sáez, C. (2022). Disinfection of polymicrobial urines by electrochemical oxidation: Removal of antibiotic-resistant bacteria and genes. *Journal of Hazardous Materials*, 426, 128028.
- Iber, B. T., & Kasan, N. A. (2021). Recent advances in Shrimp aquaculture wastewater management. *Heliyon*, 7(11).
- Jin, Z., Xue, Z., Li, B., Ou, L., Yan, L., Yang, L., ... & Luo, S. (2024). High-performance spent coffee grounds-based 3D microporous biochar for the efficient capture of Cd²⁺ via a multi-pathway mechanism. *Chemical Engineering Journal*, 485, 149537.
- Jojoa-Sierra, S. D., Silva-Agredo, J., Herrera-Calderon, E., & Torres-Palma, R. A. (2017). Elimination of the antibiotic norfloxacin in municipal wastewater, urine and seawater by electrochemical oxidation on IrO₂ anodes. *Science of the Total Environment*, 575, 1228-1238.
- Jones, E. R., Van Vliet, M. T., Qadir, M., & Bierkens, M. F. (2021). Country-level and gridded estimates of wastewater production, collection, treatment and reuse. *Earth System Science Data*, 13(2), 237-254.
- Kamal, W., Mahmoud, R., Allah, A. E., Abdelwahab, A., Taha, M., & Farghali, A. A. (2022). Insights into synergistic utilization of residual of ternary layered double hydroxide after oxytetracycline as a potential catalyst for methanol electrooxidation. *Chemical Engineering Research and Design*, 188, 249-264.
- Kermani, M., Dowlati, M., Gholami, M., Sobhi, H. R., Azari, A., Esrafil, A., ... & Ghaffari, H. R. (2021). A global systematic review, meta-analysis and health risk assessment on the quantity of Malathion, Diazinon and Chlorpyrifos in Vegetables. *Chemosphere*, 270, 129382.
- Kim, J. E., Bhatia, S. K., Song, H. J., Yoo, E., Jeon, H. J., Yoon, J. Y., ... & Choi, Y. K. (2020). Adsorptive removal of tetracycline from aqueous solution by maple leaf-derived biochar. *Bioresource Technology*, 306, 123092.

- Kong, Y., Lu, H., Wang, R., Yang, Q., Huang, B., Zhou, Q., ... & Chen, Q. (2023). Adsorption characteristics of tetracycline hydrochloride and oxytetracycline by a MOF-525 (Co) metal organic framework. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 677, 132443.
- Kothavale, V. P., Sharma, A., Dhavale, R. P., Chavan, V. D., Shingte, S. R., Selyshchev, O., ... & Patil, P. B. (2023). Carboxyl and thiol-functionalized magnetic nanoadsorbents for efficient and simultaneous removal of Pb (II), Cd (II), and Ni (II) heavy metal ions from aqueous solutions: Studies of adsorption, kinetics, and isotherms. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 172, 111089.
- Kozłowski, H., Kolkowska, P., Watly, J., Krzywoszynska, K., & Potocki, S. (2014). General aspects of metal toxicity. *Current medicinal chemistry*, 21(33), 3721-3740.
- Lan, S., Leng, Z., Guo, N., Wu, X., & Gan, S. (2014). Sesbania gum-based magnetic carbonaceous nanocomposites: Facile fabrication and adsorption behavior. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 446, 163-171.
- Lee, D. W., & Yoo, B. R. (2016). Advanced silica/polymer composites: Materials and applications. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 38, 1-12.
- Leili, M., Khorram, N. S., Godini, K., Azarian, G., Moussavi, R., & Peykhoshian, A. (2020). Application of central composite design (CCD) for optimization of cephalexin antibiotic removal using electro-oxidation process. *Journal of Molecular Liquids*, 313, 113556.
- Li, Y., Yan, Z., & Sun, Z. (2023). Efficient electrocatalytic degradation of sulfamethoxazole with CuAl-LDO/HGF cathode in a neutral heterogeneous electro-Fenton process. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 11(3), 109762.
- Ling, L., Yuan, C., Xu, Q., Li, T., Zhu, M., & Zhai, C. (2023). Directional charge separation on 2D/2D BiVO₄/MXene for the enhanced photoelectrochemical detection of oxytetracycline antibiotic in water. *Surfaces and Interfaces*, 36, 102483.
- Liu, E., Hu, T., Al-Dhabi, N. A., Soyol-Erdene, T. O., Bayanjargal, O., Zuo, Y., ... & Tang, W. (2024). MOF-derived Fe/Ni@C marigold-like nanosheets as heterogeneous electro-Fenton cathode for efficient antibiotic oxytetracycline degradation. *Environmental Research*, 247, 118357.
- Liu, F., Niu, F., Peng, N., Su, Y., & Yang, Y. (2015). Synthesis, characterization, and application of Fe₃O₄@SiO₂-NH₂ nanoparticles. *RSC Advances*, 5(23), 18128-18136.

- Liu, P., Deng, K., Huang, Y., Liu, X., Lv, X., Tian, W., & Ji, J. (2023). In-situ generation of hollowed nanorods array with TiN/TiO₂ heterostructures for electrocatalytic degradation of metronidazole. *Chemical Engineering Science*, 281, 119148.
- Liu, R., Liu, L., Liu, Y., & Wang, L. (2025). Comprehensive evaluation of antibiotic pollution in a typical tributary of the Yellow River, China: Source-specific partitioning and fate analysis. *Journal of Hazardous Materials*, 137294.
- Liu, Y., Qiao, J., Sun, Y., & Guan, X. (2022). Simultaneous sequestration of humic acid-complexed Pb (II), Zn (II), Cd (II), and As (V) by sulfidated zero-valent iron: performance and stability of sequestration products. *Environmental Science & Technology*, 56(5), 3127-3137.
- Lu, Q., Dai, L., Li, L., Huang, H., & Zhu, W. (2021). Valorization of oxytetracycline fermentation residue through torrefaction into a versatile and recyclable adsorbent for water pollution control. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 9(4), 105397.
- Mahmoudian, M. H., Azari, A., Jahantigh, A., Sarkhosh, M., Yousefi, M., Razavinasab, S. A., ... & Ghasemian, M. (2023). Statistical modeling and optimization of dexamethasone adsorption from aqueous solution by Fe₃O₄@NH₂-MIL88B nanorods: Isotherm, kinetics, and thermodynamic. *Environmental Research*, 236, 116773.
- Maleky, S., Asadipour, A., Nasiri, A., Luque, R., & Faraji, M. (2022). Tetracycline adsorption from aqueous media by magnetically separable Fe₃O₄@Methylcellulose/APTMS: isotherm, kinetic and thermodynamic studies. *Journal of Polymers and the Environment*, 30(8), 3351-3367.
- Manzar, M. S., Khan, G., dos Santos Lins, P. V., Zubair, M., Khan, S. U., Selvasembian, R., ... & Kayed, T. S. (2021). RSM-CCD optimization approach for the adsorptive removal of Eriochrome Black T from aqueous system using steel slag-based adsorbent: Characterization, Isotherm, Kinetic modeling and thermodynamic analysis. *Journal of Molecular Liquids*, 339, 116714.
- Masindi, V., & Muedi, K. L. (2018). Environmental contamination by heavy metals. *Heavy metals*, 10(4), 115-133.
- Mathews, T. J., Looney, B. B., Bryan, A. L., Smith, J. G., Miller, C. L., Southworth, G. R., & Peterson, M. J. (2015). The effects of a stannous chloride-based water treatment system in a mercury contaminated stream. *Chemosphere*, 138, 190-196.
- Medeiros, V. L., De Araujo, L. G., Ratero, D. R., Paula, A. S., Molina, E. F., Jaeger, C., ... & Nery, J. G. (2020). Synthesis and physicochemical characterization of a novel adsorbent based on yttrium silicate: A potential material for removal of lead and cadmium from aqueous media. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 8(4), 103922.

- Mirgorod, Y., Emelianov, S., Fedosjuk, V., & Bolshanina, S. (2016). Influence of size effects on the properties of processed iron ore and schungite rock. *Журнал нано-та електронної фізики*, (8, № 2), 02053-1.
- Molajou, A., Afshar, A., Khosravi, M., Soleimani, E., Vahabzadeh, M., & Variani, H. A. (2021). A new paradigm of water, food, and energy nexus. *Environmental Science and Pollution Research*, 1-11.
- Moreira, F. C., Boaventura, R. A., Brillas, E., & Vilar, V. J. (2017). Electrochemical advanced oxidation processes: a review on their application to synthetic and real wastewaters. *Applied Catalysis B: Environmental*, 202, 217-261.
- Mutahir, S., Akram, S., Khan, M. A., Deng, H., Naglah, A. M., Almehezia, A. A., ... & Refat, M. S. (2024). Facile synthesis of Zn/Co LDH for the removal of oxytetracycline from wastewater: experimental and DFT-based analysis. *Chemical Engineering Science*, 283, 119399.
- Najafi, A. (2017). A novel synthesis method of hierarchical mesoporous MgO nanoflakes employing carbon nanoparticles as the hard templates for photocatalytic degradation. *Ceramics International*, 43(7), 5813-5818.
- Nasiri, A., Rajabi, S., Amiri, A., Fattahizade, M., Hasani, O., Lalehzari, A., & Hashemi, M. (2022). Adsorption of tetracycline using CuCoFe₂O₄@ Chitosan as a new and green magnetic nanohybrid adsorbent from aqueous solutions: Isotherm, kinetic and thermodynamic study. *Arabian Journal of Chemistry*, 15(8), 104014.
- Nematollahi, M. J., Keshavarzi, B., Moore, F., Vogt, R. D., & Nasrollahzadeh Saravi, H. (2021). Trace elements in the shoreline and seabed sediments of the southern Caspian Sea: investigation of contamination level, distribution, ecological and human health risks, and elemental partition coefficient. *Environmental Science and Pollution Research*, 28(43), 60857-60880.
- Nguyen, C. H., Tran, M. L., Van Tran, T. T., & Juang, R. S. (2021). Efficient removal of antibiotic oxytetracycline from water by Fenton-like reactions using reduced graphene oxide-supported bimetallic Pd/nZVI nanocomposites. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 119, 80-89.
- Nidheesh, P. V., Zhou, M., & Oturan, M. A. (2018). An overview on the removal of synthetic dyes from water by electrochemical advanced oxidation processes. *Chemosphere*, 197, 210-227.
- Ohno, M., Hayashi, H., Suzuki, K., Kose, T., Asada, T., & Kawata, K. (2011). Preparation and evaluation of magnetic carbonaceous materials for pesticide and metal removal. *Journal of colloid and interface science*, 359(2), 407-412.
- Padder, F. A., & Bashir, A. (2023). Scarcity of water in the twenty-first century: Problems and potential remedies. *MEDALION JOURNAL: Medical Research, Nursing, Health and Midwife Participation*, 4(1), 1-5.

- Panahi, F. H., Peighambaroust, S. J., Davaran, S., & Salehi, R. (2017). Development and characterization of PLA-mPEG copolymer containing iron nanoparticle-coated carbon nanotubes for controlled delivery of Docetaxel. *Polymer*, 117, 117-131.
- Pasalari, H., Ghaffari, H. R., Mahvi, A. H., Pourshabanian, M., & Azari, A. (2017). Activated carbon derived from date stone as natural adsorbent for phenol removal from aqueous solution. *Desalin. Water Treat*, 72, 406-417.
- Phoon, B. L., Ong, C. C., Saheed, M. S. M., Show, P. L., Chang, J. S., Ling, T. C., ... & Juan, J. C. (2020). Conventional and emerging technologies for removal of antibiotics from wastewater. *Journal of hazardous materials*, 400, 122961.
- Phouthavong, V., Hagio, T., Park, J. H., Nijpanich, S., Duangkhai, K., Rujiravanit, R., ... & Ichino, R. (2024). Removal of heavy metals by BEA zeolite/Fe₃O₄ composite prepared via dry-gel conversion method using agrowaste-derived raw material. *Solid State Sciences*, 149, 107473.
- Rahmani, A. R., Nematollahi, D., Samarghandi, M. R., Samadi, M. T., & Azarian, G. (2018). A combined advanced oxidation process: Electrooxidation-ozonation for antibiotic ciprofloxacin removal from aqueous solution. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 808, 82-89.
- Reddy, D. H. K., Wei, W., Shuo, L., Song, M. H., & Yun, Y. S. (2017). Fabrication of stable and regenerable amine functionalized magnetic nanoparticles as a potential material for Pt (IV) recovery from acidic solutions. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 9(22), 18650-18659.
- Sahmoune, M. N. (2019). Evaluation of thermodynamic parameters for adsorption of heavy metals by green adsorbents. *Environmental Chemistry Letters*, 17(2), 697-704.
- Saifuddin M, N., & Kumaran, P. (2005). Removal of heavy metal from industrial wastewater using chitosan coated oil palm shell charcoal. *Electronic journal of Biotechnology*, 8(1), 43-53.
- Salem, A. R., Haggag, E. S. A., Mohamed, M. M., & Mahmoud, G. A. (2025). Efficient Adsorption of Lanthanum (III) and Yttrium (III) Ions Using Polyvinyl alcohol/Polyvinylpyrrolidone/Polyacrylamide Terpolymer Hydrogel. *Surfaces and Interfaces*, 105801.
- Sarangi, N. V., & Rajkumar, R. (2024). Biosorption potential of *Stoechospermum marginatum* for removal of heavy metals from aqueous solution: Equilibrium, kinetic and thermodynamic study. *Chemical Engineering Research and Design*, 203, 207-218.
- Sarani, P., Sabbaghi, S., Rasouli, K., Mirbagheri, N. S., & Rasouli, J. (2024). Optimization of chloride ion removal from drinking water using graphene

oxide modified with AgNO₃ via CCD-based RSM method. *Inorganic Chemistry Communications*, 160, 111930.

- Savari, A., Hashemi, S., Arfaeinia, H., Dobaradaran, S., Foroutan, R., Mahvi, A. H., ... & Ramavandi, B. (2020). Physicochemical characteristics and mechanism of fluoride removal using powdered zeolite-zirconium in modes of pulsed & continuous sonication and stirring. *Advanced Powder Technology*, 31(8), 3521-3532.
- Saya, L., Malik, V., Gautam, D., Gambhir, G., Singh, W. R., & Hooda, S. (2022). A comprehensive review on recent advances toward sequestration of levofloxacin antibiotic from wastewater. *Science of The Total Environment*, 813, 152529.
- Sebastian, A., Nangia, A., & Prasad, M. N. V. (2018). A green synthetic route to phenolics fabricated magnetite nanoparticles from coconut husk extract: Implications to treat metal contaminated water and heavy metal stress in *Oryza sativa* L. *Journal of Cleaner Production*, 174, 355-366.
- Shafiee, M., Foroutan, R., Fouladi, K., Ahmadlouydarab, M., Ramavandi, B., & Sahebi, S. (2019). Application of oak powder/Fe₃O₄ magnetic composite in toxic metals removal from aqueous solutions. *Advanced Powder Technology*, 30(3), 544-554.
- Shagholani, H., Ghoreishi, S. M., & Mousazadeh, M. (2015). Improvement of interaction between PVA and chitosan via magnetite nanoparticles for drug delivery application. *International journal of biological macromolecules*, 78, 130-136.
- Shi, C., Yu, S., Wang, L., Zhang, X., Lin, X., & Li, C. (2021). Degradation of tetracycline/oxytetracycline by electrospun aligned polyacrylonitrile-based carbon nanofibers as anodic electrocatalysis microfiltration membrane. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 9(6), 106540.
- Shrestha, R., Ban, S., Devkota, S., Sharma, S., Joshi, R., Tiwari, A. P., ... & Joshi, M. K. (2021). Technological trends in heavy metals removal from industrial wastewater: A review. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 9(4), 105688.
- Singh, V. P., & Su, Q. (2022). Water-environment-energy-food nexus: challenges and opportunities under climate change. *Indian Journal of Soil Conservation*, 50(3), 177-189.
- Sodhi, K. K., & Singh, D. K. (2021). Insight into the fluoroquinolone resistance, sources, ecotoxicity, and degradation with special emphasis on ciprofloxacin. *Journal of Water Process Engineering*, 43, 102218.
- Srivastava, V., Zare, E. N., Makvandi, P., Zheng, X. Q., Iftekhhar, S., Wu, A., ... & Sillanpaa, M. (2020). Cytotoxic aquatic pollutants and their removal by nanocomposite-based sorbents. *Chemosphere*, 258, 127324.

- Su, H., Xu, W., Hu, X., Xu, Y., Wen, G., & Cao, Y. (2021). Spatiotemporal variations and source tracking of antibiotics in an ecological aquaculture farm in Southern China. *Science of The Total Environment*, 763, 143022.
- Sun, W., Sun, Y., Shah, K. J., Zheng, H., & Ma, B. (2019). Electrochemical degradation of oxytetracycline by Ti-Sn-Sb/ γ -Al₂O₃ three-dimensional electrodes. *Journal of environmental management*, 241, 22-31.
- Tan, Y., Chen, M., & Hao, Y. (2012). High efficient removal of Pb (II) by amino-functionalized Fe₃O₄ magnetic nano-particles. *Chemical engineering journal*, 191, 104-111.
- Teğin, İ., Öc, S., & Saka, C. (2024). Facile phosphorus and oxygen heteroatom functionalization of biochar based on biomass prepared by microwave pyrolysis for adsorption process of cadmium in aqueous solution. *Biomass Conversion and Biorefinery*, 1-10.
- Thomas, M., Nałęcz-Jawecki, G., Giebułtowicz, J., & Drzewicz, P. (2024). Degradation of oxytetracycline by ferrate (VI): Treatment optimization, UHPLC-MS/MS and toxicological studies of the degradation products, and impact of urea and creatinine on the removal. *Chemical Engineering Journal*, 485, 149802.
- Uğurlu, M., & Kula, İ. (2007). Decolourization and removal of some organic compounds from olive mill wastewater by advanced oxidation processes and lime treatment. *Environmental Science and Pollution Research-International*, 14, 319-325.
- Uğurlu, M., Gürses, A., Doğar, Ç., & Yalçın, M. (2008). The removal of lignin and phenol from paper mill effluents by electrocoagulation. *Journal of environmental management*, 87(3), 420-428.
- Wang, J., & Zhuan, R. (2020). Degradation of antibiotics by advanced oxidation processes: An overview. *Science of the Total Environment*, 701, 135023.
- Wang, Q., Liu, R., Men, C., Guo, L., & Miao, Y. (2019). Temporal-spatial analysis of water environmental capacity based on the couple of SWAT model and differential evolution algorithm. *Journal of Hydrology*, 569, 155-166.
- Wang, X., Wang, H., Li, F., Hu, X., Xie, Z., & Hua, T. (2022). Activation of peroxymonosulfate in an electrochemical filter by MnFe₂O₄-rGO electro-assisted catalytic membrane for the degradation of oxytetracycline. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 10(1), 107008.
- Wang, X., Wei, W., Yoo, C., & Liu, H. (2025). Data-Driven Fault Detection and Diagnosis Methods in Wastewater Treatment Systems: A Comprehensive Review. *Environmental Research*, 120822.

- Wang, Y., Bing, Z., Zhao, Q., Wang, K., Wei, L., Jiang, J., ... & Xue, R. (2025). Synthesis of MnFe₂O₄-biochar with surficial grafting hydroxyl for the removal of Cd (II)-Pb (II)-Cu (II) pollutants: Competitive adsorption, application prospects and binding orders of functional groups. *Journal of Environmental Management*, 375, 124280.
- Wang, Z., Li, T. T., Peng, H. K., Ren, H. T., Lou, C. W., & Lin, J. H. (2021). Low-cost hydrogel adsorbent enhanced by trihydroxy melamine and β -cyclodextrin for the removal of Pb (II) and Ni (II) in water. *Journal of Hazardous Materials*, 411, 125029.
- Wierzbinski, P., Hubska, J., Henzler, M., Kucharski, B., Bieś, R., & Krzystanek, M. (2023). Depressive and other adverse CNS effects of fluoroquinolones. *Pharmaceuticals*, 16(8), 1105.
- Xie, J., Ma, J., Zhang, C., Kong, X., Wang, Z., & Waite, T. D. (2020). Effect of the presence of carbon in Ti₄O₇ electrodes on anodic oxidation of contaminants. *Environmental Science & Technology*, 54(8), 5227-5236.
- Xu, J., Ju, C., Sheng, J., Wang, F., Zhang, Q., Sun, G., & Sun, M. (2013). Synthesis and characterization of magnetic nanoparticles and its application in lipase immobilization. *Bulletin of the Korean Chemical Society*, 34(8), 2408-2412.
- Zahedinejad, M., Sohrabi, N., & Mohammadi, R. (2023). Magnetic multi-walled carbon nanotubes as an efficient sorbent for pirimicarb removal from aqueous solutions in continuous (FBAC) and batch formats: thermodynamic, kinetic, isotherm study, optimization and modeling by RSM-ANN. *Journal of Molecular Liquids*, 370, 120915.
- Zamani, F., & Izadi, E. (2014). Polyvinyl amine coated Fe₃O₄@ SiO₂ magnetic microspheres for Knoevenagel condensation. *Chinese Journal of Catalysis*, 35(1), 21-27.
- Zhang, J., Ren, J., Wang, F., Zhang, L., Wang, B., & He, W. (2024). Zero-dimensional N-doped carbon quantum dots and palladium co-modified titanium electrodes enhance the electrocatalytic degradation of oxytetracycline hydrochloride. *Journal of Alloys and Compounds*, 971, 172776.
- Zhang, R., Hua, S., Dang, Y., Zhang, B., Sun, X., Yu, S., ... & Zhou, Y. (2022). Strategy for enhancing the electrocatalytic performance of Ti/ β -PbO₂ anode: Optimizing SnO₂ intermediate layer by Cs doping and application for the efficient removal of mixed fluoroquinolones. *Journal of Alloys and Compounds*, 895, 162528.
- Zhao, L., Dai, T., Qiao, Z., Sun, P., Hao, J., & Yang, Y. (2020). Application of artificial intelligence to wastewater treatment: A bibliometric analysis and systematic review of technology, economy, management, and wastewater reuse. *Process Safety and Environmental Protection*, 133, 169-182.

Zhao, S., Zhang, H., Zhu, Y., Xing, Z., Chen, W., Dong, B., ... & Liu, X. (2025). Residual heavy metals and antibiotic pollution in abandoned breeding areas along the northeast coast of Hainan Island, China. *Marine Pollution Bulletin*, 212, 117518.



ÖZGEÇMİŞ

Kişisel Bilgiler

Ad Soyad : H***** O*****
Uyruk : A*****
Doğum Yeri : B***
Medeni Hali : B*****
Telefon : 0*** ** *
E-posta : e*****g*****.com

Eğitim

Alınan Derece	Aldığı Kurum/Üniversite	Mezuniyet Yılı
Lisans	Azerbaycan Devlet İktisat Üniversitesi	2017
Yüksek Lisans	Muğla Sıtkı Koçman Üniversitesi	2019

Yabancı Dil(ler)

Dil (İngilizce, Rusca vs)	Başlangıç	Orta	İleri
Yazma			X
Konuşma			X
Anlama			X
Okuma			X

Projelerde Yaptığı Görevler:

Tamamlanmış projelerde alınan görevler

1. Aktif karbon destekli manyetik polimer kompozitlerin sentezi ve endüstriyel kirlilikleringiderilmesinde kullanılması, **Araştırmacı:** 2020
2. $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ manyetik malzeme sentezi, adsorpsiyon ve elektrooksidasyon yöntemiyle atık sulardan organik ve inorganik maddelerin giderimi **Araştırmacı:**2024

Devam eden projelerde alınan görevler

1. $\text{Ag}_2\text{WO}_4/\text{rGO}$ sentezi ve katalitik reaksiyonlar ile atık sulardan 2,4 diklorofenol giderimi: karakterizasyon, istatistiksel modelleme ve optimizasyonu **Araştırmacı:**2025

ESERLER

Uluslararası hakemli dergilerde yayımlanan makaleler (SCIE):

- 1- Uğurlu, M., **Osman, H.**, Vaizoğullar, A. İ., & Chaudhary, A. J. (2022). Adsorptive Removal of Oxytetracycline Using Polymer Coated Magnetic Nanoparticulate Activated Carbon: Synthesis, Characterization and Adsorption Isotherms and Kinetics Studies. Iran. J. Chem. Chem. Eng. Research Article Vol, 41(9).
- 2- İlteriş Yılmaz, S., **Osman, H.**, Uğurlu, M., Ali İmran, V., & Chaudhary, A. J. (2024). Synthesis of Activated Carbon-Supported Catalysis Systems and Research for Electrocatalytic Performance on Wastewater Treatment. Iranian Journal of Chemistry and Chemical Engineering, 43(1), 132-152.
- 3- **Osman, H.**, Uğurlu, M., Vaizoğullar, A. İ., Atasoy, M., & Chaudhary, A. J. (2024). Statistical modeling and optimization of heavy metals (Pb and Cd) adsorption from aqueous solution by synthesis of $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$: isotherm, kinetics, and thermodynamic. Polymer Bulletin, 1-33.
- 4- **Osman, H.**, Uğurlu, M., Yılmaz, S. İ., Vaizoğullar, A. İ., & Chaudhary, A. J. (2024). Investigation of synthesis and sonocatalytic performance of activated carbon-supported catalysis systems. Journal of Solid State Electrochemistry, 1-19.

- 5- **Osman, H., & Uğurlu, M.** (2025). Optimization and statistical modelling of electrochemical removal of oxytetracycline from aqueous solutions. International Journal of Environmental Science and Technology, 1-22.
- 6- Vaizoğullar, A. İ., Artagan, Ö., **Osman, H., & Uğurlu, M.** (2025). Photocatalytic performance of single and co-doped Ag/Ni-BaWO₄ for H₂ production, methyl violet degradation, and bacterial disinfection under visible light irradiation. Research on Chemical Intermediates, 51(1), 83-110.
- 7- **Osman, H., Uğurlu, M., Vaizoğullar, A. İ., Akpolat, O., & Chaudhary, A. J.** Flumequine (FLQ) Removal from Aqueous Solution by Electrochemical Methods and Optimization with Central Composite Design Under Response Surface Methodology (CCD-RSM) Model, Environmental Progress & Sustainable Energy (**Under Review**)
- 8- **Osman, H., İlteriş Yılmaz, S., Uğurlu, M., Ali İmran, V., & Chaudhary, A. J.** Synthesis and Characterisation of Activated Carbon Supported Catalysts: Photocatalytic Degradation of Olive Wastewater Solutions using these Catalysts, Journal of Sol-Gel Science and Technology (**Under Review**)

Diğer uluslararası hakemli dergide yayımlanmış makale

- 1- Uğurlu, M., **Osman, H.,** Vaizoğullar, A. İ., & Chaudhary, A. J. (2021). Fluoroquinolones antibiotics adsorption onto polymer coated magnetic nanoparticulate activated carbon. International Journal of Engineering Science Technologies

TR Dizin kapsamındaki dergide yayımlanmış makale

- 1- **Osman, H., Uğurlu, M., Vaizogullar, A. I., Yılmaz, S. I., & Chaudhary, A. J.** (2021). Synthesis of Polymer-Coated Magnetic Nanoparticles to the Surface of Activated Carbon and Kinetic Studies. NanoEra, 1(2), 45-53.

ULUSLARARASI KONGRELER:

- 1- M. Uğurlu, **H. Osman** and A.İ. Vaizoğullar “Sulu çözeltilerden florokinolon (FLQ) giderimi için Polimer modifiyeli manyetik aktif karbon nanokompozit sentezi” 2.Uluslararası Türk Dünyası Mühendislik ve Bilim Kongresi (11/2019)
- 2- M. Uğurlu and **H. Osman** “Oksitetrasiklinin (OTC) sudan adsorpsiyonu için polimer modifiyeli manyetik nanoparçacıkların sentezi: kinetik ve termodinamik çalışmalar” 2. Uluslararası Türk Dünyası Mühendislik ve Bilim Kongresi (11/2019)
- 3- S.İ. Yılmaz, M. Uğurlu, **H. Osman**, A.İ. Vaizoğullar “Electrocatalytic Treatment Of Olive Black Water” Hodja Akhmet Yassawı 5. Uluslararası Bilimsel Araştırma Konferansı, Nahçıvan Devlet Üniversitesi, Azerbaycan (11/2021)
- 4- **H. Osman**, M. Uğurlu, M. Mukhtarov, O. Akpolat, A.İ. Vaizoğullar, A.J. Chaudharyd “Removal Of Phenol Using Polymer Coated Magnetic Nanoparticulate Activated Carbon” Karabağ II. Uluslararası Uygulamalı Bilimler Kongresi Azerbaycan Ulusal Bilimler Akademisi, Azerbaycan (11/2021)
- 5- M. Mukhtarov, O. Akpolat, **H. Osman**, M. Uğurlu “Analysis Of Waste Water Characteristics By Data Mining” Karabağ II. Uluslararası Uygulamalı Bilimler Kongresi Azerbaycan Ulusal Bilimler Akademisi, Azerbaycan (11/2021)
- 6- **H. Osman**, G. Ertürk, A.İ. Vaizoğullar, M. Uğurlu, O. Akpolat “Elektrooksidasyon Yöntemiyle Sulu Çözeltilerden Flumekuin Giderimi Ve Ccd-Rsm Modeli İle Optimizasyonu” EGE 8th INTERNATIONAL CONFERENCE ON APPLIED SCIENCES JUNE 2-4, 2023 – IZMİR
- 7- **H. Osman**, G. Ertürk, M. Uğurlu, O. Akpolat, A.İ. Vaizoğullar “Sodyum Perborat ($\text{NaBO}_3 \cdot \text{H}_2\text{O} \cdot 3\text{H}_2\text{O}$) Kullanılarak Zeytin Karasuyundan Lignin Giderimi” EGE 8th INTERNATIONAL CONFERENCE ON APPLIED SCIENCES JUNE 2 - 4, 2023 – IZMİR
- 8- A.İ. Vaizoğullar, M. Uğurlu, **H. Osman** “Effect Of Ag On Photocatalytic Degradation Performance Of CuO : Preparation, Characterization And Photocatalytic Degradation Of 2,6 Dichlorophenol Under Uv Light Irradiation” EGE 8th INTERNATIONAL CONFERENCE ON APPLIED SCIENCES JUNE 2 - 4, 2023 – IZMİR
- 9- G. Ertürk, **H. Osman**, M. Uğurlu, O. Akpolat “Kemometrik Hesaplamalarda Veri Madenciği Kullanımı” EGE 8th INTERNATIONAL CONFERENCE ON APPLIED SCIENCES JUNE 2 - 4, 2023 – IZMİR
- 10- **H. Osman**, G. Ertürk, A.İ. Vaizoğullar, M. Uğurlu, O. Akpolat “Atık Sulardan Ağır Metal Giderimi için $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{PAM}$ Manyetik Malzeme Sentezi ve CCD-RSM Modeli ile Optimizasyonu” AVRASYA 9th INTERNATIONAL CONFERENCE ON APPLIED SCIENCES

- 11- G. Ertürk, **H. Osman**, O. Akpolat, M. Uğurlu “Atık Su Analizlerinin Değerlendirilmesinde Kümeleme Yöntemi” AVRASYA 9th INTERNATIONAL CONFERENCE ON APPLIED SCIENCES
- 12- **H. Osman**, G. Ertürk, A.İ. Vaizoğullar, M. Uğurlu, O. Akpolat “Fe₃O₄/SiO₂/PAM Manyetik Malzeme Sentezi, Atık Sulardan Cd²⁺ Giderimi ve CCDRSM Modeli ile Optimizasyonu” AVRASYA 9th INTERNATIONAL CONFERENCE ON APPLIED SCIENCE
- 13- A.İ. Vaizoğullar, M. Uğurlu, K. Ataman, **H. Osman** “THE EFFECT of Ni on COWO₄ of Photocatalytic Performance Under Visible Light Irradiation” AVRASYA 9th INTERNATIONAL CONFERENCE ON APPLIED SCIENCE

