

**T.C.  
SÜLEYMAN DEMİREL ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**IRAK METAKAOLİNİNDEN HAZIRLANAN ZEOLİTİN SENTEZİ VE  
KARAKTERİZASYONU VE RODAMİN B BOYASININ ATIK SUDAN  
UZAKLAŞTIRILMASINDA UYGULANMASI**

**Mustafa ALANI**

**Danışman  
Dr. Öğr. Üyesi Aziz ŞENCAN**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ  
KİMYA MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI  
ISPARTA - 2024**



© 2024 [Mustafa ALANI]

## İÇİNDEKİLER

	<b>Sayfa</b>
İÇİNDEKİLER.....	i
ÖZET .....	ii
ABSTRACT .....	iii
TEŞEKKÜR.....	iv
ŞEKİLLER DİZİNİ .....	v
ÇİZELGELER DİZİNİ .....	vi
SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ .....	vii
1. GİRİŞ.....	1
1.1. Zeolitin kullanım alanları.....	3
2. KAYNAK ÖZETLERİ.....	5
3. MATERYAL VE METOT .....	12
3.1. Zeolit Hazırlığı (Sentezi): .....	12
3.1.1. Birinci metot (Sol-jel prosesi) .....	12
3.1.2. İkinci metot .....	12
3.1.3. Üçüncü metot.....	13
3.2. Karakterizasyon ve adsorpsiyon deneyleri .....	13
4. TARTIŞMA VE SONUÇLAR.....	22
KAYNAKLAR .....	23
ÖZGEÇMİŞ.....	29

# ÖZET

## Yüksek Lisans Tezi

### IRAK METAKAOLİNİNDEN HAZIRLANAN ZEOLİTİN SENTEZİ VE KARAKTERİZASYONU VE RODAMİN B BOYASININ ATIK SUDAN UZAKLAŞTIRILMASINDA UYGULANMASI

Mustafa ALANI

Süleyman Demirel Üniversitesi  
Fen Bilimleri Enstitüsü  
Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı

Danışman: Dr. Öğr. Üyesi Aziz ŞENCAN

Bu tezde, Irak metakaolininin zeolit sentezi için hammadde olarak kullanımı araştırılmıştır. Zeolit sentezlemek için üç farklı metodoloji kullanılmıştır, sadece ilk yaklaşımda zeolit A (LTA) üretilmiş kalan iki yöntem iyi zeolit ürünü vermemiştir. Sentezlenen zeolit A'nın yapısal ve morfolojik özelliklerini değerlendirmek için X-ışını kırınımı (XRD), Fourier dönüşümü kızılötesi spektroskopisi (FTIR), taramalı elektron mikroskobu (SEM) ve Brunauer-Emmett-Teller (BET) analizi kullanılarak kapsamlı karakterizasyon yapılmıştır. Bulgular, zeolit LTA'nın başarılı bir şekilde üretildiğini açıkça doğrulamaktadır. Sentezlenen zeolit, çevre ve sucul ekosistemler üzerindeki tehlikeli etkileri nedeniyle Rodamin B boyasının uzaklaştırılmasındaki etkinliğini araştırmak için kullanılmıştır. Sentezlenen zeolit (LTA)'nın herhangi bir konsantrasyonda Rodamin B boyasını uzaklaştıramadığı görülmüştür. Bu sonuca göre boyayı uzaklaştırmak için zeolit (A)'yı hidroklorik asit ile işlenmiş ve yüzey alanını ve gözenek boyutunu genişletilmeye çalışılmıştır. 0.1 M hidroklorik asit konsantrasyonu ile gözenek boyutu 8.3578 nanometre artmış ancak yüzey alanı önemli ölçüde artış göstermemiştir. 2 g asitle işlenmiş zeolitin yaklaşık olarak 13 ppm'lik boyayı 3 dakikada uzaklaştırdığı gözlemlenmiştir. Buna karşılık, Rodamin B'yi uzaklaştırmak için 0.8 gram metakaolin (ham maden) test edildiğinde, boya yaklaşık olarak 46 ppm uzaklaştırılmıştır. Son olarak, sonuçların hangi model ile uygunluk gösterdiğini belirlemek için Langmuir ve Freundlich izotermleri test edilmiştir. Zeolit için R-kare değerlerinden, Langmuir modelinin daha iyi uyduğu,  $q_{max}$  (mg/g) değerinin 0.179 olduğu bulunmuştur. Sonuç olarak, Sentezlenen zeolit LTA (A)'nın Rodamin B boyasını uzaklaştırmak için etkili veya ekonomik olarak uygun olmadığı ve iyi performansı nedeniyle uzaklaştırma sürecinde doğrudan metakaolin kullanmanın tercih edilebilir olduğu sonucuna varılmıştır.

**Anahtar Kelimeler:** Adsorpsiyon, metakaolin, Rodamin B, Zeolit A.

2024, 29 sayfa

## **ABSTRACT**

**M.Sc. Thesis**

### **SYNTHESIS AND CHARACTERIZATION OF ZEOLITE PREPARED FROM IRAQI METAKAOLIN AND ITS APPLICATION IN THE REMOVAL OF RODAMIN B DYE FROM WASTEWATER**

**Mustafa ALANI**

**Süleyman Demirel University  
Graduate School of Natural and Applied Sciences  
Department of Chemical Engineering**

**Supervisor: Asst. Prof. Dr. Aziz ŞENCAN**

In this thesis, the use of Iraqi metakaolin as primary raw material for zeolite synthesis was investigated. Three different methodologies were used to synthesize zeolite, only the first approach produced zeolite A (LTA) and the remaining two methods did not give good zeolite product. Comprehensive characterization using X-ray diffraction (XRD), Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR), scanning electron microscope (SEM) and Brunauer-Emmett-Teller (BET) analysis was carried out to evaluate the structural and morphological properties of the synthesized zeolite A. The findings clearly confirm the successful production of zeolite LTA. The synthesized zeolite was used to investigate its effectiveness in removing Rodamin B dye due to its hazardous effects on the environment and aquatic ecosystems. It was observed that the synthesized zeolite (LTA) could not remove Rodamin B dye at any concentration. Thereupon, zeolite (A) was treated with hydrochloric acid to remove the dye and an attempt was made to expand the surface area and pore size. With a 0.1 M hydrochloric acid concentration, the pore size increased to 8.3578 nanometers but its area did not increase significantly. It was observed that 2g of acid-treated zeolite removed approximately 13 ppm of dye in 3 minutes. In contrast, when 0.8 grams of metakaolin (raw material) was tested to remove Rodamin B, approximately 46 ppm of dye was removed. Finally, Langmuir and Freundlich isotherms were tested to determine which model the results were compatible with. From the R-squared values, it was found that the Langmuir model fitted better, with a  $q_{max}$  (mg/g) value of 0.179. As a result, it was concluded that the synthesized zeolite LTA (A) was not effective or economically suitable for removing Rodamin B dye and that it would be preferable to use metakaolin directly in the removal process due to its good performance.

**Keywords:** Adsorption, Metakaolin, Rodamin B, Zeolite A

**2024, 29 pages**

## TEŐEKKÜR

Öncelikle, bu çalışmayı sürdürme gücü veren ve tüm zorlukların üstesinden gelme yeteneđi bahşeden Allah'a şükrederim. Ayrıca, değerli denetimleri, rehberlikleri, desteđi, çabaları ve önerileri için Dr. Öğr. Üyesi Aziz ŞENCAN hocama özel teşekkürlerimi ve saygılarımı iletmek istiyorum.

Dr.Mohammed Ibrahim'e de çabaları ve Süleyman Demirel Üniversitesi'nde yüksek lisansımı sürdürmeme yönelik önerisi ve Isparta'da yardımcı için en içten şükranlarımı sunmak istiyorum.

Babamın ruhuna ve anneme, çalışmam boyunca verdikleri teşvik ve desteđe olan minnettarlığımı ifade etmek için yeterli bir tek kelime ya da ifade bulunmamaktadır.

Son olarak, geri kalan aileme de çok teşekkür etmek istiyorum.

Mustafa ALANI  
ISPARTA, 2024

## ŞEKİLLER DİZİNİ

	<b>Sayfa</b>
Şekil 1.1. Zeolit LTA'nın çerçeve yapısı (3D) (Abdullahi vd., 2017; Fron vd., 2012) .....	4
Şekil 3.1. metakaolin XRD.....	15
Şekil 3.2. Zeolit A XRD.....	15
Şekil 3.3. Sentezlenen zeolitin SEM görüntüsü .....	16
Şekil 3.4. Sentezlenen (1. metot) zeolitin FTIR grafiği.....	16
Şekil 3.5. Kalibrasyon eğrisi.....	17
Şekil 3.6. LTA zeoliti ile asit modifikasyonu sonrası zeolit arasındaki FTIR karşılaştırması .....	18
Şekil 3.7. Asit uygulamasından sonraki SEM görüntüsü .....	19
Şekil 3.8. Langmuir izoterm grafiği.....	21
Şekil 3.9. Freundlich izoterm grafiği. ....	21

## ÇİZELGELER DİZİNİ

	<b>Sayfa</b>
Çizelge 1.1. Kaolinin karakterizasyonu .....	2
Çizelge 1.2. Zeolit türleri .....	3
Çizelge 3.1. LTA zeolitinin ve 1. metot ile elde edilen zeolitın 2 theta değerleri arasındaki karşılaştırma .....	17
Çizelge 3.2. Karşılaştırma: LTA zeoliti ve asitle modifiye edilmiş zeolitın 2 theta değerleri .....	18
Çizelge 3.3. Asit modifikasyonu öncesi ve sonrası yüzey alanı ve gözenekleri ...	19
Çizelge 3.4. Asit işlemi sonrası zeolit dozajının optimize edilmesi .....	20
Çizelge 3.5. Asit işlemi sonrası zeolitın adsorpsiyon süresinin optimize edilmesi .....	21
Çizelge 3.6. Freundlich ve Langmuir sonuçlarının karşılaştırılması .....	21



## SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ

°C	Santigrat derece
cm <sup>3</sup>	Santimetre küp
g	Gram
Kg	Kilogram
M	Molarite
m <sup>3</sup>	Metre küp
mg	Miligram
mm	Milimetre
nm	Nanometre
µm	Mikrometre



## 1. GİRİŞ

Endüstriyel atıklar nedeniyle, Rodamin B (RhB) de dahil olmak üzere çeşitli sentetik boyalar su canlıları ve çevre için önemli bir tehdit oluşturmaktadır. Bu kalıcı kirleticiler, yalnızca sucul canlıların büyümesini engellemekle kalmayıp, aynı zamanda fotosentetik faaliyetleri ve su altı solunumu derinden etkileyen anoksik koşullar yaratarak sucul türlerin ölümüne de yol açmaktadır. Ayrıca bu bileşiklerin su kütlelerine boşaltılmaları, aromatik yapıları gereği tehlikeli ve potansiyel olarak kanserojen olmaları nedeniyle, ölümcül sonuçlar doğurabilecek önemli bir tehlike oluşturmaktadır. Bu nedenle su canlılarını ve ekosistemleri korumak amacıyla ters ozmoz, koagülasyon-flokülasyon, elektrokoagülasyon, kimyasal oksidasyon, solvent ekstraksiyonu, iyon değişimi ve adsorpsiyon gibi arıtma yöntemlerini de kapsayan çeşitli tedbir ve düzenlemeler araştırılmaktadır.

Biyolojik arıtma yöntemleri, sentetik boya yapılarının karmaşıklığı ve termal kararlılığı nedeniyle daha az başarılı olmuştur. Ancak adsorpsiyon yöntemi, düşük arıtma maliyeti, tasarım ve işletme kolaylığı ve hızlı kinetikler nedeniyle yaygın olarak uygulanabilen üstün bir teknik olarak kabul edilmektedir. Adsorpsiyonun etkinliği, adsorbentlerin atık sularından kirleticileri uzaklaştırma kapasitesi ile belirlenir. Bu nedenle, bu kalıcı kirleticilerin zararlı etkilerinden çevreyi ve su yaşamını korumak için bu tür katı önlemlerin ve düzenlemelerin benimsenmesi önemlidir (Oyekanmi vd., 2019). Kaolin, kokusuz beyaz ila sarımsı veya gri bir tozdur. Esas olarak, kaolin kili, hidratlı bir alümino-silikat olan kil minerali kaolinit ( $Al_2Si_2O_5(OH)_4$ ) içerir. Kaolinitin erime noktası 740-1785 °C ve yoğunluğu 2.65 g/cm<sup>3</sup>'tür, Kaolin su içinde çözünmez. Kaolinit olarak da bilinen kaolin kili, seramik, boya ve pigmentlerden kozmetik, ilaç ve tarım ürünlerine kadar çeşitli endüstriyel uygulamalarda kullanılan doğal oluşumlu bir kil mineralidir (PubChem, 2012).

Bilindiği üzere, kaolin metakaolin ve ardından zeolite dönüşebilir. Mousa Gougazeh vd., (2014) tarafından yapılan çalışmada, kaolinin karakterizasyonu Çizelge 1.1'e göre yapılmıştır.

Çizelge 1.1. Kaolinin karakterizasyonu

<b>Kimyasal Bileşenler wt.% (XRF)</b>	
SiO <sub>2</sub>	53.86
TiO <sub>2</sub>	0.74
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	32.45
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.65
MnO	0.01
MgO	0.08
CaO	0.13
Na <sub>2</sub> O	0.06
K <sub>2</sub> O	0.54
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.12
(LOI)	11.21
TOPLAM	99.85
SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ratio	1.65
<b>Partikül Boyutu Dağılımı wt.%</b>	
MİKRONLAR 63-45 µm	1.2
MİKRONLAR-45+6 µm	5.2
MİKRONLAR-6+2 µm	20.6
MİKRONLAR -2 µm	73
<b>Kantitatif Analiz wt.% (XRD + XRF)</b>	
Kaolin	72
KUVARS	27
diğerleri	1
PARLAKLIK (% ISO)	82.73

Zeolitler, alümina ve silikanın birbirine bağlı tetrahedrallerinden oluşan bir hidratlı (sulu) alüminosilikat mineralleridir. Bunlar; alüminyum, silisyum ve oksijen içeren, alkali veya toprak alkali metaller (sodyum, potasyum ve magnezyum gibi) ve iç içe geçmiş su molekülleriyle birlikte üç boyutlu kristal yapı oluşturan katılar olarak tanımlanırlar.

Zeolitler, tipik olarak küçük moleküllerle yaklaşık olarak aynı boyutta muntazam bir dizilime sahip büyük açık porlu birçok farklı kristal yapıda olabilirler (Broach vd., 2000)

Zeolitler ikiye ayrılır: poröz olmayan doğal zeolitler, ve poröz ve belirli bir yapıdaki sentetik zeolitler. Sentetik zeolitler, kaolin, feldispat ve soda külünün

birlikte ısıtılmasıyla elde edilir ve birim ağırlık başına doğal zeolitlere göre daha yüksek değişim kapasitesine sahiptir. Volkanik ve tortul kayalarda yaklaşık 40 çeşit doğal zeolit bulunmaktadır. ABD Jeoloji Araştırmaları Kurumuna göre en çok çıkarılan maden türleri arasında şabazit, klinoptilolit ve mordenit yer almaktadır. Belirli amaçlar için tasarlanan yaklaşık 150 sentetik zeolit bulunmaktadır. Belirli amaçlar için tasarlanmış yaklaşık 150 sentetik zeolit bulunmaktadır. Bunlar arasında, çamaşır deterjanlarında yaygın olarak kullanılan zeolit A, katalitik krakingde kullanılan iki farklı faujasit türü olan zeolit X ve Y ve bir petrol katalizörü olan ZSM-5 (bir marka adı) en iyi bilinenlerden bazılarıdır. Yaygın mineral zeolitlerden bazıları Çizelge 1.2'de verilmiştir, Harraz (2017).

Çizelge 1.2. Zeolit türleri

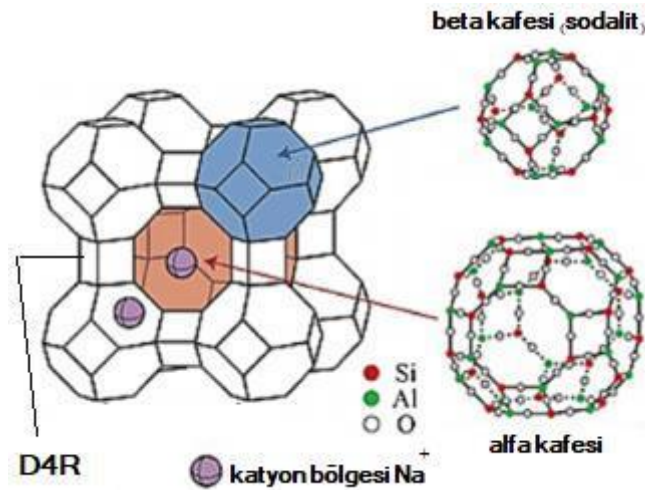
İsim	Kimyasal yapı
Analkim	$\text{NaAlSi}_2\text{O}_6 \cdot \text{H}_2\text{O}$
Chabazit	$(\text{Ca}_{0.5}, \text{Na}, \text{K})_4[\text{Al}_4\text{Si}_8\text{O}_{24}].12\text{H}_2\text{O}$
Klinoptilolit	$(\text{Na}, \text{K}, \text{Ca})_2\text{-}3\text{Al}_3(\text{Al}, \text{Si})_2\text{Si}_{13}\text{O}_{36} \cdot 12(\text{H}_2\text{O})$
Hulandit	$(\text{Ca}, \text{Na})_2\text{-}3\text{Al}_3(\text{Al}, \text{Si})_2\text{Si}_{13}\text{O}_{36} \cdot 12\text{H}_2\text{O}$
Natrolit	$\text{Na}_2\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{10} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$
Phillipsit	$(\text{Na}, \text{K}, \text{Ca})_1\text{-}2(\text{Si}, \text{Al})_8\text{O}_{16} \cdot 6(\text{H}_2\text{O})$
Stilbit	$\text{NaCa}_4(\text{Si}_{27}\text{Al}_9)\text{O}_{72} \cdot 28(\text{H}_2\text{O})$
Thomsonit	$\text{NaCa}_2\text{Al}_5\text{Si}_5\text{O}_{20} \cdot 6\text{H}_2\text{O}$
Mordenit	$(\text{Ca}, \text{Na}_2, \text{K}_2)\text{Al}_2\text{Si}_{10}\text{O}_{24} \cdot 7(\text{H}_2\text{O})$
Erionit	$(\text{Ca}, \text{K}_2, \text{Na}_2)_2[\text{Al}_4\text{Si}_{14}\text{O}_{36}] \cdot 15(\text{H}_2\text{O})$
Ferrierit	$(\text{Na}, \text{K})_2\text{Mg}(\text{Si}, \text{Al})_{18}\text{O}_{36} \cdot 9(\text{H}_2\text{O})$

### 1.1. Zeolit kullanım alanları

Zeolitler, su yumuşatma ve filtrasyon gibi çeşitli amaçlarla kullanılırlar bununla birlikte kalsiyum ve magnezyum gibi maddeleri uzaklaştırarak suyu yumuşatmak için çamaşır ve bulaşık deterjanları gibi ürünlerde de kullanılmaktadırlar. Ek olarak, koku kontrolü ve evcil hayvan kumu gibi alanlarda yaygın olarak kullanılırlar ve radyoaktif atıklardan parçacıkları uzaklaştırmada ve toksik ağır metallerle kirlenmiş toprakları temizlemede etkili oldukları kanıtlanmıştır. Diğer kullanım alanları arasında beton üretimi, toprak şartlandırma, hayvan yemi ve kataliz bulunur.

M. M. Abdel-Rahim vd. (2017) yaptıkları çalışmada, doğal zeolitin fiziksel özellikleri, çoğu numunede 0,65 nm'den daha küçük bir parçacık boyutu dağılımı ve 0,4-0,7 nm'lik ortalama gözenek çapı ile karakterize etmişlerdir. Buna göre zeolitlerin yoğunluğu 800 ila 1041 Kg/m<sup>3</sup> arasında, katyon değişim kapasitesi ise 1,6 ila 2 meq/100 g aralığında değişmektedir. Zeolitlerin yüzey alanının 24,9 - 40 m<sup>2</sup>/g aralığında değişiklik gösterdiğini ve nem içeriğini %10 olarak rapor etmişlerdir. Ayrıca, çalışmada incelenen doğal zeolitler beyaz, gri veya yeşil renklere sahiptir.

Metakaolin tipik olarak yaklaşık 700-900 °C sıcaklık aralığında kaolin kilini ısıtarak üretilir (Wang vd., 2014). Deneyler sırasında Irak metakaolin numuneleri kullandık. Bu tezde ürünümüz zeolit A veya LTA (Linde Tip A) veya Linda tipi idi. Zeolit LTA (Linde Tip A), Zeolit A (Na<sub>12</sub>(AlO<sub>2</sub>)<sub>12</sub>(SiO<sub>2</sub>)<sub>12</sub>•xH<sub>2</sub>O) olarak da bilinir, üç boyutlu kübik yapısı ve 0,42 nm gözenek açıklığı ile karakterize edilen ve eşit sayıda hareketli Na katyonları ve Al atomları içeren bir zeolit türüdür. Bu özelliklerden dolayı zeolit A, diğer zeolitlere kıyasla nispeten yüksek bir değişim kapasitesine sahiptir (Selim vd., 2017). Bu ürün ilk olarak hidrotermal kristallendirme yöntemi ile elde edilen en temsili sentetik zeolitlerden biridir. Mezogözenekli ve mikrogözenekli yapıları nedeniyle adsorpsiyon, iyon değişimi, zeolit membranları ve katalizde yaygın olarak kullanılmıştır (Belaabed vd., 2016).



Şekil 1.1. Zeolit LTA'nın çerçeve yapısı (3D) (Abdullahi vd., 2017; Fron vd., 2012)

## 2. KAYNAK ÖZETLERİ

Bu bölümde, tez ile ilgili önceki arařtırmalar özetlenmiřtir. Rodamin-B boyasının adsorpsiyon yöntemiyle nasıl uzaklařtırılacađı ve kaolinden ve metakaolinden zeolit nasıl hazırlanacađı gösterilmiř ve arařtırmaların sonuçları gözden geçirilmiřtir. Bu çalıřmalarda, etkili bir adsorpsiyon yöntemi olarak zeolit kullanımının potansiyel faydaları vurgulanmaktadır.

Hayeeye vd. (2013), rodamin-B boyasının kauçuk meyvesinin (PrAC) perikarpından elde edilen aktif karbon üzerindeki adsorpsiyonu, ticari aktif karbon ile karřılařtırmalı olarak incelenmiřtir. Her iki aktif karbon da tarama ile karakterize edilmiřtir. Sıfır yük noktasındaki elektron mikroskopisi (SEM), özgül yüzey alanı ve pH, temas süresi, boya konsantrasyonu, aktif karbon miktarı, pH ve sıcaklık gibi çeřitli deneysel parametrelerin etkileri analiz edilmiřtir. Adsorpsiyon izotermi, Langmuir modeline iyi bir řekilde uymaktadır. Ayrıca sıcaklıđa bađlılıđının etkisinin incelenmesi, adsorpsiyonların endotermik süreçler olduđunu göstermiřtir. Rodamin B'nin PrAC üzerindeki adsorpsiyon etkinliđi yaklařık %80-90'dır.

Mohammed Ibrahim vd. (2016), dođal bentoniti (B) %5 oranında çok duvarlı karbon nanotüplerle karıřtırarak ve ardından inert atmosferde 650 °C'ye ısıtarak ucuz ve etkili bir nanokompozit malzeme sentezlemiřlerdir. Bu nanokompozit malzeme atık sularından rodamin B boyasını (RhB) adsorbe etmiřtir. BCA adı verilen nanokompozit adsorban, XRD, SEM ve FTIR kullanılarak detaylı olarak incelenmiřtir. Temas süresi, adsorban dozu, bařlangıç boya konsantrasyonu ve pH'ın boya giderimi üzerindeki etkileri arařtırılmıřtır. Adsorpsiyon izotermi incelenmiř ve Langmuir ve Freundlich modellerine uyumlarının iyi olduđu görülmüřtür. B ve BCA örneklerinin maksimum adsorpsiyon kapasiteleri (qm) sırasıyla 8,6 ve 142,8 mg/g olarak belirlenmiřtir. Hem bentonitin hem de modifiye bentonitin, RhB boyasını sudan uzaklařtırabildiđi gözlemlenmiřtir. Genel olarak, BCA nanokompozit örneđi, RhB boyasının sulu çözeltilerden uzaklařtırılmasını önemli ölçüde artırmıřtır. Ek olarak, BCA'nın renkli atık sudan boyayı uzaklařtırmak için çevre dostu bir adsorban olarak kullanılabileceđi sonucuna varılmıřtır.

Dharmambal vd. (2015) tarafından yapılan bir arařtırmada, toplu adsorpsiyon tekniđi kullanılarak rodamin-B'nin tik ađacı (*Tectona Grandis*) kabuđu tozu kmr zerinde adsorpsiyon yoluyla sulu zltisinden ayrıldıđı bildirilmiřtir. Bu alıřmada, temas sresi, sıcaklık ve pH gibi eřitli deneysel deđiřkenler ile farklı adsorban dozları kullanılmıřtır. Artan adsorban dozaları sayesinde rodamin-B'nin uzaklařtırılması sađlanmıřtır. Deneysel veriler, Langmuir ve Freundlich izoterm modelleri kullanılarak incelenmiřtir. Elde edilen adsorpsiyon denge verileri, birinci merteye kinetiđine uygunluk gstermektedir.

Postai vd. (2016) tarafından yapılan bir alıřmada, atık tohumlar kullanılarak bir batch sisteminde rodamin-B'nin uzaklařtırılması arařtırılmıřtır. Adsorbanın karakterizasyonu Fourier dnřml kızılotesi spektroskopisi (FTIR), termogravimetrik analiz (TGA), sıfır yk noktası lm ve Boehm titrasyon yntemi kullanılarak gerekleřtirilmiřtir. Arařtırmada, temas sresi ve pH deđerinin boya giderimi zerindeki etkileri de incelenmiřtir. pH deđerinin 3'ten 9'a artırılması, adsorbe edilen boya miktarında yaklařık  kat artıřa neden olmuřtur. Adsorpsiyon denge deđerleri, Langmuir, Freundlich, Sips ve Redlich-Peterson denklemleri kullanılarak elde edilmiř ve analiz edilmiřtir. Sips izotermi, deneysel deđerlerle en iyi korelasyonu gsteren model olmuřtur. RhB iin maksimum adsorpsiyon kapasiteleri 117 mg/g olarak belirlenmiřtir. Elde edilen sonular, atık *A. moluccana* tohumlarının atık suyun boya giderimi iin dřk maliyetli bir malzeme olarak kullanılabileceđini gstermektedir.

Abdolrahimi vd. (2019) tarafından, badem kabuđundan hazırlanan ve kimyasal olarak H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> ile aktive edilen aktif karbonun, sudaki rodamin-B'nin adsorpsiyonu zerindeki etkisi arařtırılmıřtır. Bu alıřmada, sz konusu adsorbanların pH deđerleri, bařlangı konsantrasyonu ve dozajının rodamin-B adsorpsiyonu zerindeki etkileri incelenmiřtir. Sonular, adsorpsiyon srecinin nemli lde pH'a bađlı olduđunu gstermiřtir. Maksimum rodamin-B giderimine, nihai pH 11 olduđunda ulařılmıřtır. Adsorpsiyon sonuları, rodamin-B adsorpsiyonunun Langmuir izotermi kullanılarak daha iyi tanımlanabileceđini ortaya koymuřtur. Ayrıca, badem kabuđundan hazırlanan aktif karbonun, rodamin-B'nin sudan uzaklařtırılması iin etkili bir adsorban olarak kullanılabileceđi belirlenmiřtir.

Xiao vd. (2020), beyaz şekerden asit dehidrasyon yöntemi kullanarak karbon üretmiştir. Üretilen karbon, aktif şeker bazlı karbon (ASC) oluşturmak için nitrojen ortamında aktive edilmiştir. ASC, Brunauer-Emmett-Teller (BET), taramalı elektron mikroskobu (SEM), X-ışını kırınımı (XRD), Fourier Dönüşümü Kızılötesi (FTIR) ve X-ışını fotoelektron spektroskopisi (XPS) gibi klasik tekniklerle karakterize edilmiştir. Elde edilen bulgular, ASC'nin adsorpsiyon için yeterli gözenek parametrelerine sahip olduğunu göstermektedir. Yüzey alanı, gözenek hacmi ve gözenek boyutu sırasıyla 1144,77 m<sup>2</sup>/g, 0,53 cm<sup>3</sup>/g ve 2,17 nm olarak kaydedilmiştir. Ayrıca, ASC kullanılarak rodamin B çözeltisinin adsorpsiyonu araştırılmıştır. 12 dakikalık temas süresinde maksimum %98,28 adsorpsiyon verimi ve 123,46 mg/g adsorpsiyon kapasitesine ulaşılmıştır.

Y. Lu vd. (2020) bir biyokömür hazırlayarak, bu biyokömürü RhB'nin sulu çözeltiden çıkarılması için bir adsorban olarak kullanmışlardır. Adsorbanın yapısı ve özellikleri BET, SEM ve FTIR kullanılarak incelenmiştir. Solüsyon pH'ının, biyokömür dozajının, temas süresinin, RhB'nin başlangıç konsantrasyonunun ve sıcaklığın adsorpsiyon davranışları üzerindeki etkileri, ayrıca adsorpsiyon mekanizmasını önceden tartışmak için kullanılan toplu adsorpsiyon yöntemi ile araştırılmıştır. Sonuçlar, 150 dakikada %96,5 oranında bir RhB giderim oranıyla adsorpsiyon dengesine ulaşılabilceğini göstermiştir. RhB'nin adsorban üzerine adsorpsiyon davranışı, ikinci derece kinetik model (pseudo-second order) modelini takip etmiş ve Freundlich adsorpsiyon izotermi ile daha iyi tanımlanabilmiştir.

Minyuan Yin vd. (2019), farklı koşullar altında Rodamin B (RhB) giderimi için grafit oksidin (GO) adsorpsiyon özelliklerini incelemişlerdir. Maksimum adsorpsiyon kapasitesinin 303,15 K'de 578,0 mg/g olduğu belirlenmiştir. Ayrıca pH değerinin GO'nun adsorpsiyon özellikleri üzerinde önemli bir etkiye sahip olduğu gözlemlenmiştir. GO'nun RhB için adsorpsiyon kapasitesi önce artmış, ancak pH değerinin yükselmesiyle azalmıştır. Adsorpsiyon kinetiği üzerine yapılan çalışma, adsorpsiyon işleminin ikinci derece kinetik model adsorpsiyon işlemine uygun olduğunu doğrulamıştır. İzotermal model ise Langmuir izotermal modeli ile tutarlılık göstermiştir.

Khan vd. (2011) tarafından yapılan çalışmada, asitle aktive edilmiş mango yaprağı tozu RhB boyasının sulu çözeltiden çıkarılması için bir adsorban olarak kullanılmıştır. Toplu adsorpsiyon çalışmaları, değişen boya konsantrasyonu, adsorban dozu, partikül boyutu, temas süresi, pH ve sıcaklık koşulları altında gerçekleştirilmiştir. pH 6,0 ve 30°C'de 45 dakikada giderim veriminin %77 olduğu belirlenmiştir. Denge verileri, en iyi uyum sağlayan modelin Langmuir izotermal modeli olduğunu göstermiştir. Sonuçlar, mango yaprağı tozunun atık suların RhB'nin uzaklaştırılması için etkili bir adsorban olduğunu ortaya koymaktadır.

Cheng vd. (2016), ham zeolitlerin hidroklorik asit (HCl) ve setil trimetil amonyum bromür (CTAB) kullanarak modifiye edilmesini sağlamışlardır. Daha sonra, modifiye edilmiş zeolitlerin özellikleri bir Zeta-Potansiyel ölçer ve XRD kullanılarak incelenmiştir. Ayrıca, adsorpsiyon mekanizmaları kapsamlı bir şekilde araştırılmıştır. Deneysel sonuçlar, RhB'nin sudan adsorpsiyon kapasitesi bakımından modifiye edilmiş zeolitlerin, ham zeolitlere göre daha uygun olduğunu göstermiştir. Adsorban dozu arttıkça, sudaki RhB giderim yüzdesi artmış, ancak adsorpsiyon kapasitesi azalmıştır. Hem Langmuir hem de Freundlich izotermal adsorpsiyon modelleri, modifiye zeolitlerin RhB (su ortamındaki) adsorpsiyonunu doğru bir şekilde tanımlamıştır. En iyi sonuçlar, bir Freundlich izotermal modeli kullanılarak elde edilmiştir. Kinetik sonuçlar, modifiye edilmiş zeolitler kullanılarak su içindeki RhB'nin adsorpsiyonunun ikinci derece kinetik modele iyi uyduğunu göstermiştir.

Olarumu vd. (2018), kil mineralinden zeolit üretmek için bir işlemin geliştirmişlerdir Kaolin kil, 600 °C'de metakaoline dönüştürülmüş ve daha sonra zeolit sentezi için gerekli silika-alümina oranına ulaşmak için sülfürik asit ile yıkanmıştır. Daha sonra metakaolini zeolite dönüştürmek için alkali füzyon aşaması gerçekleştirilmiştir. X-ışını kırınımı analizi ile kristal fazının tanımlanması hem zeolit X hem de Y'nin varlığını göstermiştir. Kızılötesi spektroskopisi (IR) analizi, zeolit çerçeve yapısının varlığını doğrulamıştır. Sentezlenen zeolitinin geçirimli elektron mikroskobu (**TEM**) karakterizasyonu (yüzey alanı ve gözenek hacmi ölçümleri), zeolitinin kaolin kilinden üretilebileceğini (Tüm analiz sonuçlarının da gösterdiği gibi) doğrulamıştır.

Lim vd, (2021)'de füzyon/hidrotermal bir yöntem kullanarak doğal kaolinden iyi kristalleşmiş Na-A zeolitini sentezlemiştir. Kristal morfolojisi ve kristalinite, NaOH/kaolin oranına, Si/Al mol oranına ve parçacık boyutuna bağlı olarak karakterize edilmiştir. Sonuçlar, NaOH/kaolin oranının 0,6'dan 0,9'a artmasıyla Na-A zeolitinin bağıl kristalinitesinin %64,36'dan %83,98'e yükseldiğini, ancak oranın 1,2 olduğunda bağıl kristallenme değerinin artmadığını göstermiştir. TEM görüntüleri, Na, Al, O ve Si içeren bir hibrit silika matrisinde nanokristallerin varlığını göstermiştir. NaOH/kaolin oranı arttıkça, Na-A zeolit kristallerinin boyutu azaldı ve 1,2 oranında ~1,67 µm'den daha küçük ince kristaller oluşmuştur. Füzyon/hidrotermal yönteminin, düşük alkali koşullar altında doğal kaolinden yüksek kristalliliğe sahip Na-A zeolitinin sentezlenmesinde etkili olduğu kanıtlanmıştır ve bu, basit kimyasal işlemler kullanılarak doğal malzemelerden uygun maliyetli ticari ürünler üretme potansiyeli sunmaktadır.

Alkan vd. (2005), doğal kaolinit kullanılarak hidrotermal yöntemle zeolit Na-A ve hidroksisodalit malzemelerini başarılı bir şekilde sentezlenmişlerdir. Başlangıçta, kaolinit 600°C'de 2 saat kalsine edilmiştir. IR spektrumu ve DTA-TG analizi, kalsinasyon işlemi sırasında kaolinitin metakaolinite dönüştüğünü doğrulamıştır. İkinci aşamada, metakaolinit içeren farklı NaOH konsantrasyonlu çözeltiler kullanılarak 105°C sıcaklıkta 2 saat süreyle hidrotermal koşullar altında zeolitleştirme deneyleri gerçekleştirilmiştir. 4 N NaOH çözeltisi kullanılarak elde edilen reaksiyon ürünü ağırlıklı olmak üzere zeolit NaA olarak bulunmuştur. Katı/sıvı oranının reaksiyon ürünleri üzerindeki etkisi de incelenmiştir. Katı/sıvı oranları 1,25-5,00 g/25 ml olduğunda ana ürün olarak zeolit NaA gözlemlenmiş ve bunu reaksiyon karışımında hidroksisodalit oluşumu izlenmiştir. Deneylerden elde edilen ürünler X-ışını kırınımı (XRD), FTIR ve DTA/TGA yöntemleri kullanılarak karakterize edilmiştir. Sonuçlar, zeolit NaA uygulanan koşullar altında kaolinitten elde edilebildiğini ve bu koşullar altında metakaolinizasyon meydana gelebildiğini göstermiştir.

SM Kamyab vd. (2021), Linde tip J zeolit sentezlemek için ham madde olarak kaoliniti hidrotermal reaksiyonlarla işlemişler ve aktivatör olarak potasyum hidroksit kullanmışlardır. Sentezlenen zeolit fizikokimyasal özellikleri XRD,

SEM/EDX ve FT-IR analitik yöntemleri kullanılarak incelenmiştir. Ayrıca bu çalışmada, sulu çözeltilerden Linde Tip J zeolit kullanarak amonyum iyonu giderim kapasitesi kitle adsorpsiyon deneyleri yoluyla değerlendirilmiştir. Ek olarak, kalıntı lizatlarında kalan amonyum iyonu konsantrasyonu fotometrik analiz kullanılarak ölçülmüştür. Adsorpsiyon çalışmalarından elde edilen verileri açıklanmasında Langmuir, Freundlich, Temkin ve Dubinin-Radushkevich izoterm modelleri kullanılmıştır. Ham kaolinitten sentezlenen Linde Tip J zeoliti, sulu çözeltilerden amonyum iyonunun tutulması işleminde mükemmel bir performans sergilemiştir. Bu durum LTJ zeolitinin arıtma uygulamalarındaki potansiyelini göstermektedir.

Ayele vd. (2016), Etiyopya'dan düşük kaliteli Bombowha kaolinit kullanarak zeolit A sentezlemek için iki yöntemi araştırmışlardır: konvansiyonel hidrotermal sentez ve alkali füzyonu takiben hidrotermal işlem. Her iki yöntemde de zeolit A, 3 M NaOH konsantrasyonu, 100 °C reaksiyon sıcaklığı ve 3 saat kristalleşme süresi kullanılarak başarıyla sentezlenmiştir. Her iki yöntemde de en iyi sentez koşulları için optimum mol oranı  $\text{Na}_2\text{O} : \text{Al}_2\text{O}_3 : 2\text{SiO}_2 : 37\text{H}_2\text{O}$  olmuştur. Alkali füzyon yöntemi, saflaştırmaya gerek kalmadan düşük kaliteli, saf Bombowha kaolinitinin kullanılmasına izin verirken, geleneksel yöntem saf kaolinit gerektirmiştir. Ürünler çeşitli teknikler kullanılarak karakterize edilmiş ve alkali füzyon yöntemi, kübik kristaller, yuvarlak kenarlar, yaklaşık %85 oranında kristalinite ve 300 mg  $\text{CaCO}_3/\text{g}$  kation değişim kapasitesine sahip zeolit A üretilmiştir.

Wang vd. (2014), geleneksel yüksek sıcaklık kalsinasyonuna ihtiyaç duymadan doğal kaolinden yüksek saflıkta zeolit A sentezlemek için hidrotermal bir yöntem kullanmışlardır. Bu yöntem, doğal kaolinin NaOH ile hidrotermal reaksiyonuyla hidratlı sodyum alüminosilikatların oluşumunu içermektedir. Bu hidratlar seyreltik HCl'de çözülmüştür. Kuvars ve muskovit gibi reaktif olmayan mineral safsızlıklarını gidermek için reaksiyonun filtrelenmesi gerçekleştirilmiştir. Elde edilen asidik çözelti pH = 7'ye ayarlanarak amorf bir Si ve Al jeli oluşturulmuş ve bu jel daha sonra zeolit A'nın hidrotermal sentezinde kullanılmıştır.

Bu yeni yöntemin bir diğer büyük avantajı, doğal kaolindeki kuvars, muskovit ve feldspat gibi yaygın olan kirlilik minerallerinin uzaklaştırılmasıdır. Bu, yüksek saflıkta zeolit A'nın elde edilmesine olanak tanır ve düşük kaliteli kaolin kullanımına da genişletilebilir.

Bu yeni yöntemle sentezlenen zeolit A örneklerinin ve geleneksel kalsinasyon yöntemlerinden elde edilenlerin karşılaştırmalı çalışmaları, birincisinin daha yüksek parlaklığa ve daha fazla kation değişim kapasitesine sahip olduğunu, daha kontrol edilebilir parçacık boyutu ve morfolojiye sahip olduğunu göstermiştir. Bu yeni yöntemin bir diğer önemli avantajı, kuvars, muskovit ve feldspat gibi doğal kaolindeki yaygın safsızlık minerallerinin giderilmesidir, bu da yüksek saflıkta zeolit A üretimine olanak sağlamış ve potansiyel olarak düşük kaliteli kaoline kullanımını genişletmiştir.

Krongkrachang vd. (2019), Lampang eyaletinden çıkarılan kaolin ile iki aşamalı bir hidrotermal yöntem kullanarak Zeolit Y'yi başarıyla sentezlemişlerdir. İlk hidrotermal aşamada, sodyum hidroksit (NaOH) ile karıştırılmış kaolin, sodyum silikat ( $\text{NaSi}_3\text{O}_7$ ) veya tetraetil ortosilikat (TEOS) eklenerek 6, 8 ve 10 saatlik farklı reaksiyon süreleri boyunca 200 °C'de otoklavlanmıştır. Bileşik karışımı, pH'nı sodyum hidroksit ve hidroklorik asit ile ayarlanarak jelleştirilmiştir. İkinci hidrotermal işlem 90°C'de 2 gün boyunca gerçekleştirilmiş, katı ürün filtrelenerek deiyonize su ile yıkanmış ve bir gece boyunca kurutulmuştur. Sentezlenen zeolit, türünü ve kristalleşmesini belirlemek için X-ışını kırınım spektroskopisi (XRD), morfoloji için taramalı elektron mikroskobu (SEM), fonksiyonel gruplarını belirlemek için Fourier dönüşümlü kızılötesi spektroskopisi (FTIR) ve adsorpsiyon/desorpsiyon izotermi ve gözenek dağılımını incelemek için N<sub>2</sub> adsorpsiyonu ile karakterize edilmiştir. N<sub>2</sub> adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi, bu yöntemle elde edilen zeolit, 571 m<sup>2</sup>/g yüzey alanına ve yaklaşık 4,89 nm gözenek boyut dağılımına sahip olduğunu ortaya koymuştur.

### **3. MATERYAL VE METOT**

Çalışmada materyal olarak, Isparta Süleyman Demirel Üniversitesi Doğu Kampüsü'nde yer alan Hukuk Fakültesi (Şekil 4.1), İnsan ve Toplum Bilimleri Fakültesi (Şekil 4.2) ve Diş Hekimliği Fakültesi (Şekil 4.3) seçilmiştir.

Deney gereksinimlerine uygun olarak aşağıdaki malzemeler ve ekipmanlar kullanılmıştır.

Irak metakaolini, sodyum hidroksit, sülfürik asit, distile su, cam huni, cam laboratuvar malzemeleri, manyetik karıştırıcı, filtre kağıdı, pH kağıdı, hassas terazi, laboratuvar fırını ve havan ile tokmak.

#### **3.1. Zeolit Hazırlığı (Sentezi):**

##### **3.1.1. Birinci metot (Sol-jel prosesi)**

Zeolit A, NaOH çözeltisine 2,85 g metakaolin, 3,3 g NaOH tabletleri ve 30 mL distile su eklenerek sentezlenmiştir. Elde edilen jel, 6 saat boyunca oda sıcaklığında manyetik karıştırıcıda bekletildi ve ardından 90 dakikalık reaksiyon süresi boyunca 100 °C'de paslanmaz çelik bir otoklavda kristalleşmeye bırakılmıştır. Kristalleşen ürün soğumaya bırakılmıştır, pH'ı 7'ye ulaşana kadar birkaç kez distile suyla yıkanmış ve ardından 80°C'de 3 saat boyunca bir fırında kurutulmuştur (Alaya-Ibrahim vd., 2018).

##### **3.1.2. İkinci metot**

20 g metakaolin 250 ml 2M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>'te seyreltilmiştir. Karışım manyetik karıştırıcı ile karıştırılmış ve 80°C'de 4 saat reaksiyona bırakılmıştır. İşlemin sonunda katı madde filtrasyonla ayrılmış ve ardından 80°C'de bir gece kurutulmuştur. Hedeflenen zeolit için gereken silika-alümina mol oranını karşılamak amacıyla metakaolinin sülfürik asit ile dealüminasyonu yapılmıştır.

Kurutulan katı madde, 24 g NaOH ile karıştırılmıştır (1: 1,2). Karışım daha sonra homojen bir toz elde etmek için öğütülmüştür. Elde edilen toz 20 dakika boyunca 550 °C'lik bir erime sıcaklığında kalsine edilmiştir. Kalsine edilen

malzeme daha sonra 500 ml distile su ile karıştırıldı, oda sıcaklığında 24 saat boyunca karıştırılmış, ardından karışım 100°C'ye ısıtılmış ve 3 saat boyunca filtre edilmiştir. Ardından distile su ile yıkanmış ve 80°C'de bir gece kurutulmuştur (Olaremu vd., 2018).

### **3.1.3. Üçüncü metot**

Silva vd. (2017) yöntemine göre yapılmıştır, burada da reaksiyon karışımı ilk yöntemdekiyle aynıdır (NaOH+Metakaolin). Reaksiyon karışımı 2 dakika mikrodalga ışınımına maruz bırakılmış, daha sonra oda sıcaklığında 20 saat bekletilmiş ve son olarak 2 saat mikrodalga ile ısıtılmıştır. Ardından distile suyla yıkanmış ve kurutulmuştur.

## **3.2. Karakterizasyon ve adsorpsiyon deneyleri**

Irak Metakaolinine ait XRD sonuçları Şekil 3.1'de gösterilmiştir. Bu sonuçlar, amorf kuvars ve kaolinite karşılık gelen tepe noktaları göstermektedir diğer tepe noktaları ise safsızlıklardan kaynaklanmaktadır. Şekil 3.1'deki tepe noktaları, Kim vd, (2020) ve Cao vd. (2022)'nin benzer çalışmalarındaki XRD grafikleriyle yakın eşleşmeler vermektedir.

Birinci yöntemin XRD sonuçları Şekil 3. 2'de gösterilmiştir. Bu yöntemin XRD verilerine göre, yapının ağırlıklı olarak zeolit LTA'ya (zeolit A) ait olduğu göz önüne alınarak, elde edilen pik değerlerinin zeolit A'ya ait piklerle örtüştüğü, diğer piklerin ise safsızlıklara ait olduğu görülmektedir. Gougazeh vd. (2014)'ne göre Zeolit LTA'nın 2 theta değerleri (7.2°, 10.3°, 12.6°, 16.2°, 21.8°, 24°, 26.2°, 27.2°, 30°, 30.9°, 31.1°, 32.6°, 33.4°) iken, ürettiğimiz bu zeolit 2 theta değerleri (7.3°, 10.3°, 12.6°, 16.2°, 21.8°, 24.1°, 26.2°, 27.2°, 30.01°, 31°, 31.3°, 32.5°, 33.5°) şeklindedir.

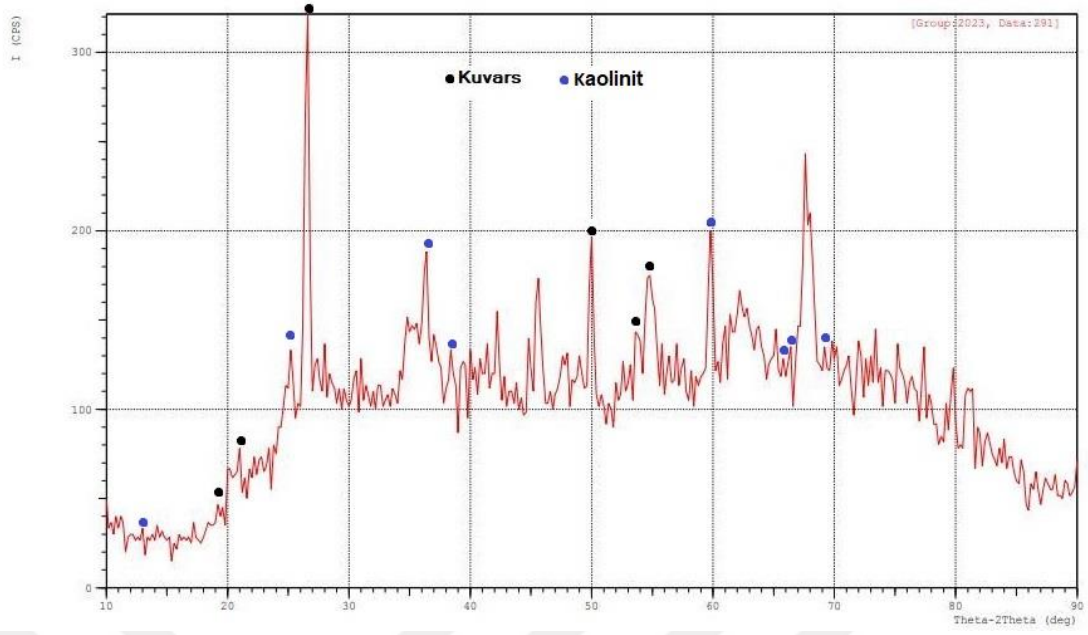
Çizelge 3.1'deki karşılaştırmadan görüleceği gibi, açıkça Zeolit A elde edilmiştir. 2. metot ve 3. metottan elde edilen XRD sonuçları zeolit LTA ile ilişkili değildir. Aşağıda 2. ve 3. metodun 2 theta değerleri verilmiştir.

2. Metod ile elde edilen malzemenin 2 theta deęerleri: (14.99°, 20.85°, 25.34°, 25.88°, 27.66°, 29.25°, 32.56°, 35.64°, 38.54°, 43.78°, 53.01°, 59.16°, 61.14°, 64.96°).

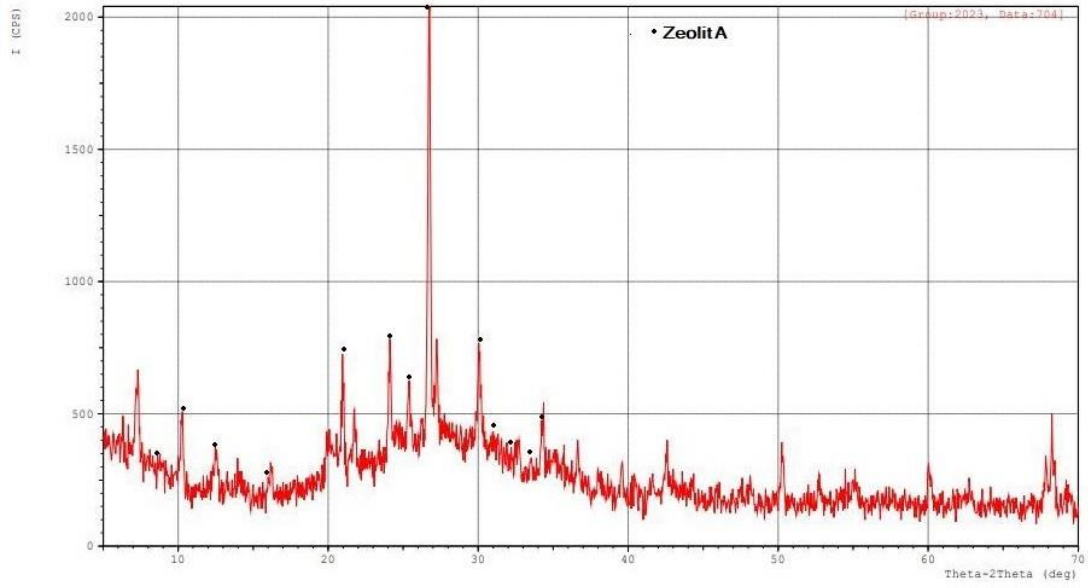
3. Metod ile elde edilen malzemenin 2 theta deęerleri:(5.72°, 6.07°, 8.34°, 12.03°, 13.08°, 19.23°, 21.02°, 21.85°, 20.26°, 23.18°, 25.74°, 26.30°, 27.0°, 27.63°, 28.00°, 28.29°, 28.83°, 31.07°, 31.98°, 32.44°, 33.58°, 34.30°, 35.00°, 35.38°, 37.39°, 37.59°, 40.44°, 41.82°, 42.13°, 43.45°, 44.25°, 44.58°, 44.86°, 46.81°, 50.84°, 51.12°, 51.72°, 52.69°, 55.85°, 60.32°, 60.93°, 62.11°, 65.04°, 69.02°, 69.30°).

Birinci metod ile üretilen ürünün morfolojisi Şekil 3.3. 'te gösterilmiştir. Yapı kristalin gibi görünmektedir, bu da Zeolit LTA veya Zeolit A'nın oluşumuna işaret etmektedir.

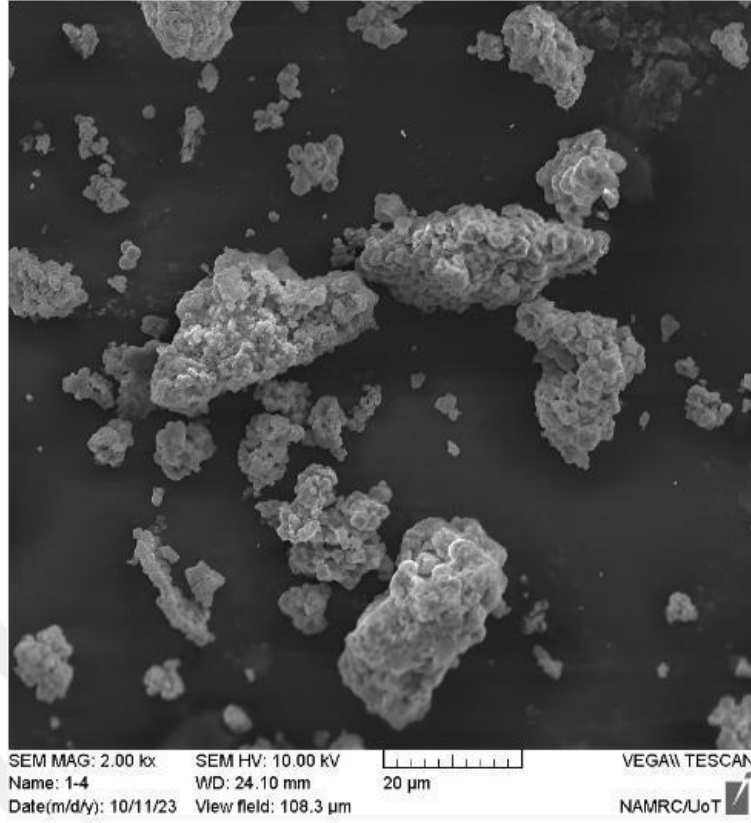
LTA zeolitin hazırlanması, FTIR spektroskopisi ile orta kızılötesi bölgede doğrulanmıştır. Şekil 3.4, sentezlenen LTA zeolitin FTIR spektrumunu göstermektedir. Spektrum, içsel tetrahedralın asimetric germe titreşimi için 947, 660, 554 ve 452 cm<sup>-1</sup>'de dört emilim bandı göstermektedir. 947, 660 ve 452 cm<sup>-1</sup>bantları, TO<sup>4</sup> tetrahedralındaki (T=Si veya Al) simetric germe titreşimi ve bükülme titreşim modlarına işaret eder. 554 cm<sup>-1</sup> bandı, LTA zeolitteki ana ikincil yapı birimi olan D4R'e atfedilir. 1653 cm<sup>-1</sup>'deki bant, adsorbe edilmiş suyun OH grubunun eğilme titreşimine atfedilir. Son olarak, 3367 cm<sup>-1</sup> civarında tipik bir su germe bandı bulunmaktadır. FTIR sonuçları, Belaabed vd. (2016)'nin sonuçlarına oldukça yakındır.



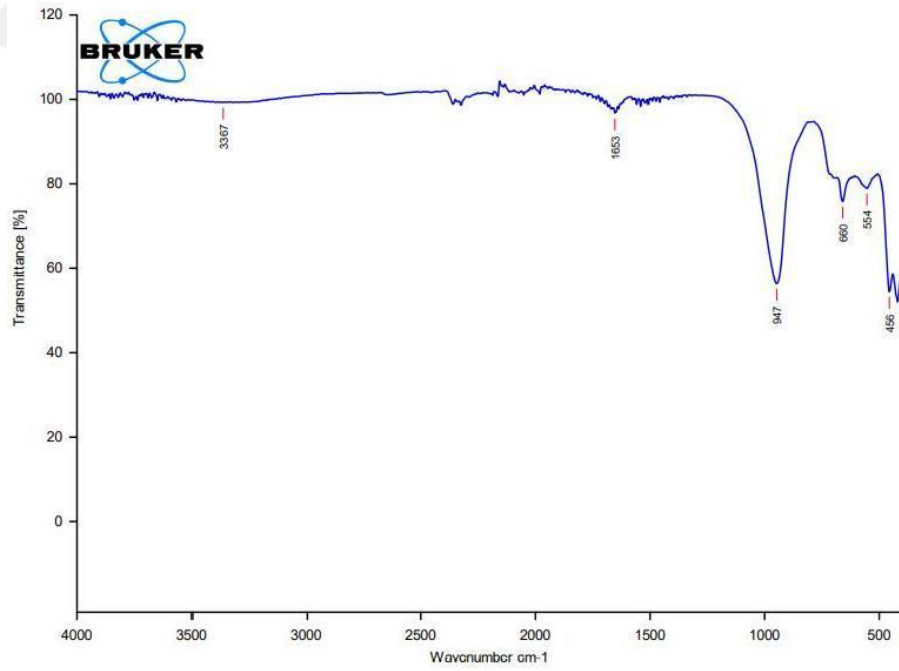
Şekil 3.1. metakaolin XRD



Şekil 3.2. Zeolit A XRD



Şekil 3.3. Sentezlenen zeolitin SEM görüntüsü

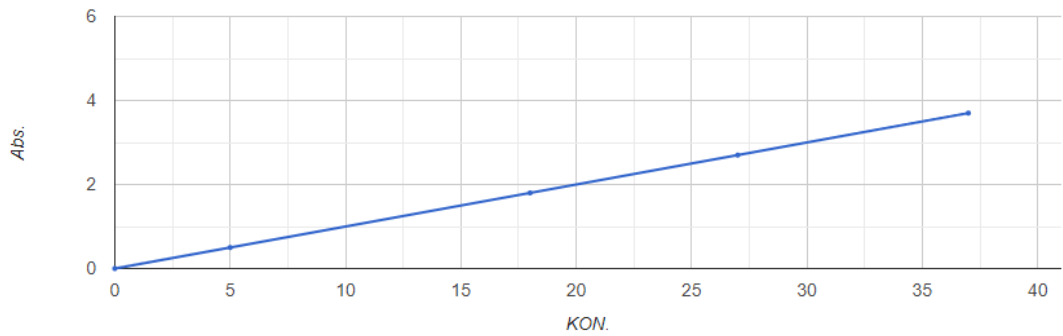


Şekil 3.4. Sentezlenen (1. metot) zeolitin FTIR grafiği

Çizelge 3.1. LTA zeolitinin ve 1. metot ile elde edilen zeolitin 2 theta değerleri arasındaki karşılaştırma

Zeolitimiz	Zeolit LTA
7.3°	7.2°
10.3°	10.3°
12.6°	12.6°
16.2°	16.2°
21.8°	21.8°
24.1°	24°
26.2°	26.2°
27.2°	27.2°
30.01°	30°
31°	30.9°
31.3°	31.1°
32.5°	32.6°
33.5°	33.4°

UV spektroskopisini kullanarak boyar maddenin absorbansını elde etmek için bilinen konsantrasyon değerleri için bir kalibrasyon eğrisi hazırlanmıştır (Şekil 3.5).



Şekil 3.5. Kalibrasyon eğrisi

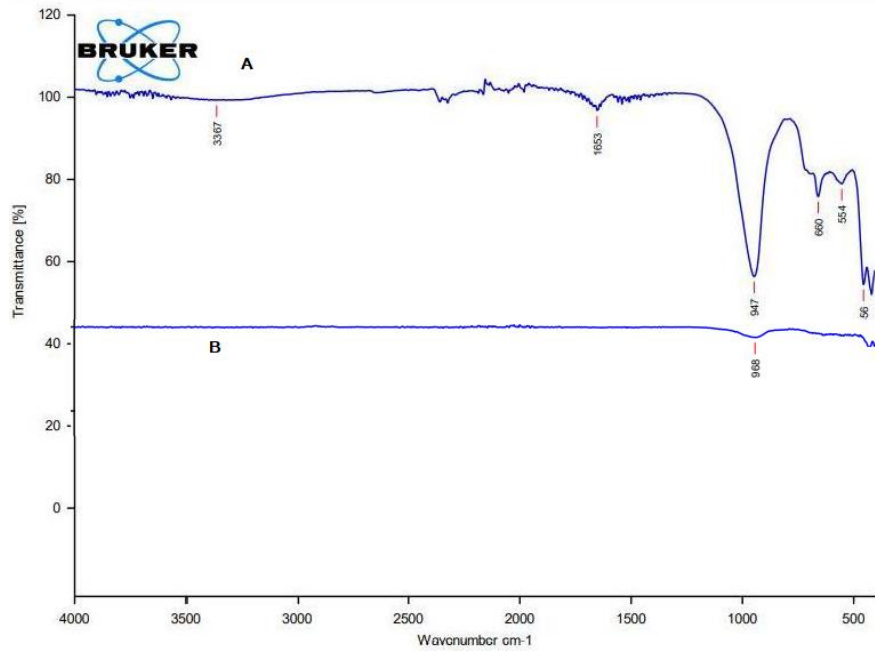
Grafiğin denklemi (absorbans = 0,1 konsantrasyon) biçimindedir. Adsorpsiyon deneylerinden sonra, herhangi bir bilinmeyen konsantrasyon için boya maddesinin konsantrasyonunu elde etmek için absorbans değerleri kullanıldı.

Sentezlenen zeolit (LTA) hiçbir konsantrasyonda rodamin B boyasını uzaklaştırmamıştır. Ancak, boyayı gidermek için hazırlanan zeolit (A), yüzey alanını ve gözenek boyutunu genişletmek amacıyla hidroklorik asitle işlemeye çalışılmıştır.

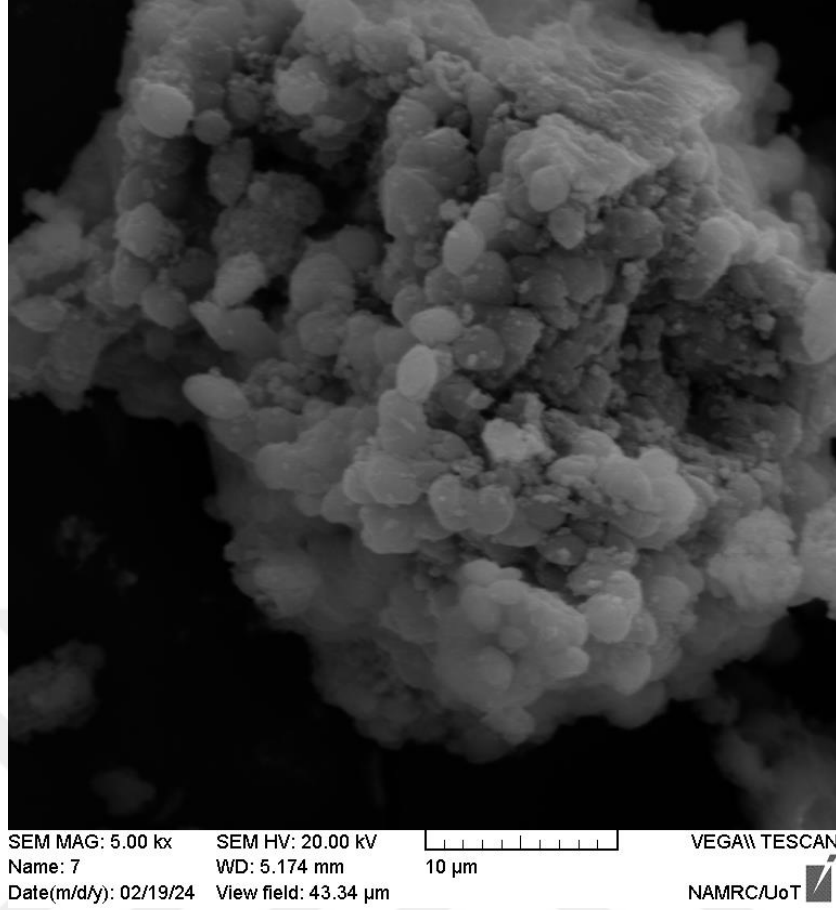
Bunun için 0,1 M hidroklorik asit konsantrasyonunu kullanmıştır, 15 gram zeolit A tartılmış ve 50 ml 0,1 M HCl çözeltisiyle karıştırılmıştır. 10 dakikalık karıştırma işleminde asidite 5'e ayarlanmıştır ve ardından 6 saat boyunca bekletilmiştir. Daha sonra süzölmüş ve nötralizasyon sağlanana kadar distile su ile yıkanmıştır. Asit ile işlenmiş zeolitin karakterizasyonunu (LTA) zeolit ile karşılaştırılmış ve Çizelge 3.2 elde edilmiştir.

Çizelge 3.2. Karşılaştırma: LTA zeoliti ve asitle modifiye edilmiş zeolitin 2 theta değerleri

LTA Zeoliti	Asitli Zeolit
7.2°	.....
10.3°	.....
12.6°	.....
16.2°	.....
21.8°	22.2°
24°	24.4°
26.2°	26.4°
27.2°	27.4°
30°	29.8°
30.9°	30.8°
31.1°	31.8°
32.6°	.....
33.4°	.....



Şekil 3.6. LTA zeoliti ile asit modifikasyonu sonrası zeolit arasındaki FTIR karşılaştırması



Şekil 3.7. Asit uygulamasından sonraki SEM görüntüsü

XRD, FTIR ve SEM sonuçları karşılaştırıldığında, zeolit yapısının asit işleminden sonra tamamen değiştiği gözlenmiştir. LTA Zeolit ve asitle işlenmiş LTA zeolitin BET yüzey alanı ve gözenek boyutunu öğrenmek için Bağdat'ta Petrol Araştırma ve Geliştirme Merkezindeki laboratuvarında numunler test edilmiştir. Gözenek boyutu 8.3578 nanometre arttığı ve yüzey alanının önemli oranda artmadığı belirlenmiştir (Çizelge 3.3).

Çizelge 3.3. Asit modifikasyonu öncesi ve sonrası yüzey alanı ve gözenekleri

Sonuçlar	Test Adı	Örnek Adı
15.979	BET Yüzey Alanı (m <sup>2</sup> /g)	A-Asitten sonra
25.1464	Gözenek Boyutu (nm)	
15.53	BET Yüzey Alanı (m <sup>2</sup> /g)	B-Asitten önce
16.7886	Gözenek Boyutu (nm)	

Asitle muamele edilmiş numunle ile boya gidermek için bir adsorpsiyon deneyi gerçekleştirilmiştir. Zeolitin asitle muamelesinden önce elde edilen sonuca yakın sonuçlar alınmıştır.

pH'in adsorpsiyon üzerindeki etkisi test edildi, ancak açıkça pH'in adsorpsiyon üzerinde hiçbir etkisi olmadığı görülmüştür (pH 3, 5, 7, 9 de denenmiştir).

Absorbsiyon değerleri için Zeolit dozajı optimize edilmiş ve en iyi sonucun 2 gramla elde edildiği görülmüştür.

Deneyler 15 ml boya çözeltisi ile gerçekleştirilmiştir. Son olarak optimum konsantrasyonu kullanarak zamanı optimize edilmiştir. Çizelge 3.4 ve 3.5 deneyleri özetlemektedir.

Son olarak, sonuçlarımızla hangi modelin daha iyi olduğunu görmek için Langmuir ve Freundlich izoterm modellerini test ettik, R kare sonuçlarından Langmuir'in daha iyi olduğunu bulduk çünkü bir idi. Aşağıdaki grafikler sırasıyla Langmuir ve Freundlich'i temsil etmektedir.

Her 2g zeolit için yaklaşık 3 dakikada yaklaşık 13 ppm boyayı giderilmiştir. Bu iyi bir giderim oranı olarak kabul edilmez ve ayrıca Campoverde vd. (2023) tarafından yürütülen ve zeolit (LTA) bu boyayı gidermek için kullanılamayacağını belirten çalışmanın sonuçlarına da yakındır.

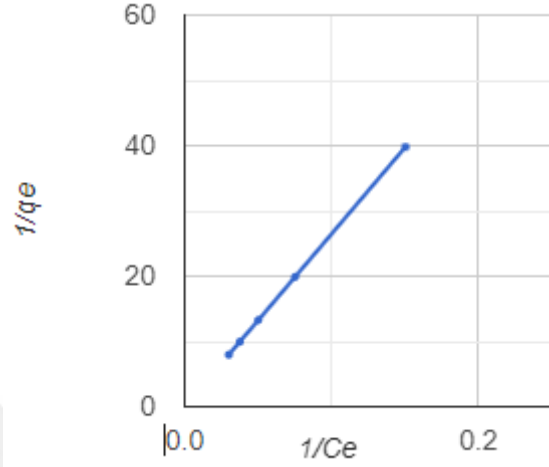
Diğer taraftan rodamin B'yi gidermek için 0,8 gram metakaolin test edilmiş ve metakaolinin yaklaşık 46 ppm boyayı giderdiği bulunmuştur. Son olarak, hangi modelin bu sonuçlara daha iyi uyduğunu görmek için Langmuir ve Freundlich izoterm modelleri test edilmiştir. R kare sonuçlarına göre Langmuir'in daha iyi olduğunu bulunmuştur ( $R^2 = 1$ ). Şekil 3.8, 3.9 ve Çizelge 3.6, her iki izoterm sonucunun özetini sunmaktadır.

Çizelge 3.4. Asit işlemi sonrası zeolit dozajının optimize edilmesi

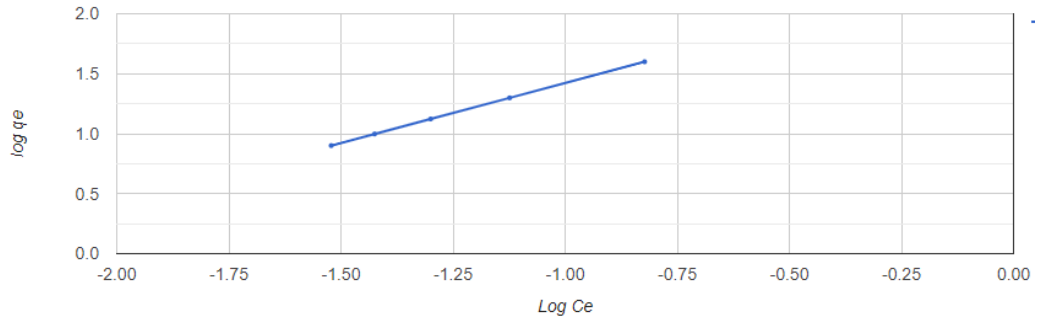
zeolit doz	abs at 555.6	kons.	%q
0.5g	4.45	44.5	11
1 g	4.1	41	18
1.5 g	3.75	37.5	25
<b>2 g</b>	<b>3.43</b>	<b>34.3</b>	<b>31.4</b>
2.5 g	3.55	35.5	29

Çizelge 3.5. Asit işlemi sonrası zeolitın adsorpsiyon süresinin optimize edilmesi

zeolit doz	abs at 555.6	kons.	%q
1	3.42	34.2	31.6
2	3.39	33.9	32.2
<b>3</b>	<b>3.325</b>	<b>33.25</b>	<b>33.5</b>
4	3.37	33.7	32.6



Şekil 3.8. Langmuir izoterm grafiği.



Şekil 3.9. Freundlich izoterm grafiği.

Çizelge 3.6. Freundlich ve Langmuir sonuçlarının karşılaştırılması

Langmuir	intercept	slope	qmax mg\g	KL	RL	R <sup>2</sup>
	5.5785	265.33	0.179259658	0.021025	0.090736	1
freundlich	intercept	slope	1\n	Kf	R <sup>2</sup>	
	2.4227	1	1	264.6671	0.9998	

#### **4. TARTIŐMA VE SONUÇLAR**

Bu alıŐmanın sonucu olarak, sentezlen LTA zeolitinin rodamin B boyasını gidermek iin kullanıŐlı olmadığı ve ekonomik olarak etkisiz olduĐu grlmŐtr. Dolayısıyla, uzaklaŐtırma iŐlemi iin doĐrudan metakaolin kullanmanın daha iyi olduĐu sylenebilir.



## KAYNAKLAR

- Abdel-Rahim, M. M. (2017). Sustainable use of natural zeolites in aquaculture: a short review. *Oceanography & Fisheries*, 2(4), 1-5.
- Abdolrahimi, N., & Tadjarodi, A. (2019). Adsorption of rodamin-B from aqueous solution by activated carbon from almond shell. *Multidisciplinary Digital Publishing Institute Proceedings*, 41(1), 51.
- Abdullahi, T., Harun, Z., & Othman, M. H. D. (2017). A review on sustainable synthesis of zeolite from kaolinite resources via hydrothermal process. *Advanced Powder Technology*, 28(8), 1827-1840.
- Ahmad A, Mohd-Setapar SH, Chuong CS, Khatoon A, Wani WA, Kumar R, et. al. (2015) Recent advances in new generation dye removal technologies: novel search for approaches to reprocess wastewater. *RSC Adv* 5: 30801–818
- Ahmad T, Danish M, Rafatullah M, Ghazali A, Sulaiman O, Hashim R, et. al. (2012) The use of date palm as a potential adsorbent for wastewater treatment: a review. *Environ Sci Pollut Res* 19: 1464–84.
- Ahmad T, Rafatullah M, Ghazali A, Sulaiman O, Hashim R (2011) Oil palm biomass-Based adsorbents for the removal of water pollutants—A review. *J Environ Sci Health Part C* 29: 177–222
- Alaya-Ibrahim, S., Kovo AS, Abdulkareem AS, Adeniyi OD and MD Yahya (2018), Synthesis and Characterization of Magnetic Zeolite A for Removal of Methylene blue from Textile wastewater, *Proceedings of Nigerian Society of Chemical Engineers, 48th Annual Conference, Abeokuta, Ogun (8-10th Nov. 2018)*. *Proceedings of Nigerian Society of Chemical Engineers, 48th Annual Conference, Abeokuta, Ogun (8-10th Nov. 2018)*
- Al-Ghouti MA, Khraisheh MAM, Allen SJ, Ahmad MN (2003) The removal of dyes from textile wastewater: a study of the physical characteristics and adsorption mechanisms of diatomaceous earth. *J Environ Manage* 69: 229–238
- Alkan, M., Hopa, Ç., Yilmaz, Z., & Güler, H. (2005). The effect of alkali concentration and solid/liquid ratio on the hydrothermal synthesis of zeolite NaA from natural kaolinite. *Microporous and Mesoporous Materials*, 86(1-3), 176-184.
- Aravind P, Selvaraj H, Ferro S, Neelavannan GM, Sundaram M (2018) A one-pot approach: Oxychloride radicals enhanced electrochemical oxidation for the treatment of textile dye wastewater trailed by mixed salts recycling. *J Clean Prod* 182: 246–258

- Ayele, L., Pérez-Pariente, J., Chebude, Y., & Díaz, I. (2016). Conventional versus alkali fusion synthesis of zeolite A from low grade kaolin. *Applied Clay Science*, 132, 485-490.
- Belaabed, R., Elabed, S., Addaou, A., Laajab, A., Rodríguez, M. A., & Lahsini, A. (2016). Synthesis of LTA zeolite for bacterial adhesion. *boletín de la sociedad española de cerámica y vidrio*, 55(4), 152-158.
- Belviso, C., Giannossa, L. C., Huertas, F. J., Lettino, A., Mangone, A., & Fiore, S. (2015). Synthesis of zeolites at low temperatures in fly ash-kaolinite mixtures. *Microporous and Mesoporous Materials*, 212, 35-47.
- Berber-Villamar NK, Netzahuatl-Muñoz AR, Morales-Barrera L, Cha´vez-Camarillo GM, Flores-Ortiz CM, Cristiani-Urbina E (2018) Corncob as an effective, eco-friendly, and economic biosorbent for removing the azo dye Direct Yellow 27 from aqueous solutions. *PLoS ONE* 13(4): e0196428
- Broach, R. W., Jan, D. Y., Lesch, D. A., Kulprathipanja, S., Roland, E., & Kleinschmit, P. (2000). Zeolites. *Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry*.
- Bukman L, Fernandes-Machado NR, Caetano W, Tessaro AL, Hioka N (2017) Treatment of wastewater contaminated with ionic dyes: Liquid-liquid extraction induced by reversed micelle followed by photo degradation. *Sep Purif Technol* 189: 162–169.
- Buyondo, K. A., Kasedde, H., & Kirabira, J. B. (2022). A comprehensive review on kaolin as pigment for paint and coating: Recent trends of chemical-based paints, their environmental impacts and regulation. *Case Studies in Chemical and Environmental Engineering*, 100244.
- Campoverde, J., & Guaya, D. (2023). From Waste to Added-Value Product: Synthesis of Highly Crystalline LTA Zeolite from Ore Mining Tailings. *Nanomaterials*, 13(8), 1295.
- Canning, J., Huyang, G., Ma, M., Beavis, A., Bishop, D., Cook, K., ... & Crossley, M. J. (2014). Percolation diffusion into self-assembled mesoporous silica microfibrils. *Nanomaterials*, 4(1), 157-174.
- Cao, R., Fang, Z., Jin, M., & Shang, Y. (2022). Study on the activity of metakaolin produced by traditional rotary kiln in China. *Minerals*, 12(3), 365.
- Cheng, W. Y., Li, N., Pan, Y. Z., & Jin, L. H. (2016). The adsorption of Rodamin B in water by modified zeolites. *Modern applied science*, 10(5), 67.
- Dharmambal, S., Mani, N., & Kannan, D. (2015). Adsorption of Rodamin-B Dye from the aqueous Solution by using Tectonagrandis Bark Powder. *Asian Journal of Research in Chemistry*, 8(5), 346-350.

- Doumic LI, Soares PA, Ayude MA, Cassanello M, Boaventura RA, Vilar VJ (2015) Enhancement of a solar photo-Fenton reaction by using ferrioxalate complexes for the treatment of a synthetic cotton-textile dyeing wastewater. *Chem Eng J* 277: 86–96
- Fron, E. (2021). Zeolites as Scaffolds for Metal Nanoclusters. *Advances in Geopolymer-Zeolite Composites-Synthesis and Characterization*.
- Ginting, S. B., Yulia, Y., Wardono, H., Hanif, M., & Iryani, D. A. (2019, November). Synthesis and Characterization of Zeolite Lynde Type A (LTA): Effect of Aging Time. In *Journal of Physics: Conference Series* (Vol. 1376, No. 1, p. 012041). IOP Publishing.
- Gougazeh, M., & Buhl, J. C. (2014). Synthesis and characterization of zeolite A by hydrothermal transformation of natural Jordanian kaolin. *Journal of the Association of Arab Universities for Basic and Applied Sciences*, 15, 35-42.
- Han L, Xue S, Zhao S, Yan J, Qian L, Chen M (2015) Biochar Supported Nanoscale Iron Particles for the Efficient Removal of Methyl Orange Dye in Aqueous Solutions. *PLoS ONE* 10(7): e0132067.
- Harraz, H. Z. (2017). Zeolite and its uses. no. March.
- Hayeeye, F., Sattar, M., Tekasakul, S., & Sirichote, O. (2014). Adsorption of Rodamin B on activated carbon obtained from pericarp of rubber fruit in comparison with the commercial activated carbon. *Songklanakarin Journal of Science & Technology*, 36(2)
- <https://www.acsmaterial.com/blog-detail/introduction-to-zeolites.html>
- <https://www.laboratuar.com/testler/kimyasal-testler/sem-taramali-elektron-mikroskopisi/>
- Huang J, Long Q, Xiong S, Shen L, Wang Y (2017) Application of poly (4-styrenesulfonic acid-co-maleic acid) sodium salt as novel draw solute in forward osmosis for dye-containing wastewater treatment. *Desalination* 421: 40–46.
- Kamyab, S. M., & Williams, C. D. (2021). Pure zeolite LTJ synthesis from kaolinite under hydrothermal conditions and its ammonium removal efficiency. *Microporous and Mesoporous Materials*, 318, 111006.
- Khan, T. A., Sharma, S., & Ali, I. (2011). Adsorption of Rodamin B dye from aqueous solution onto acid activated mango (*Magnifera indica*) leaf powder: equilibrium, kinetic and thermodynamic studies. *J Toxicol Environ Health Sci*, 3(10), 286-297.
- Kim, B., & Lee, S. (2020). Review on characteristics of metakaolin-based geopolymer and fast setting. *Journal of the Korean Ceramic Society*, 57, 368-377.

- Koby M, Gengec E, Demirbas E (2016) Operating parameters and costs assessments of a real dyehouse wastewater effluent treated by a continuous electrocoagulation process. *Chem Eng Process: Process Intensification* 101: 87–100
- Koutnik, P. E. T. R., Soukup, A., Bezucha, P., Šafář, J., Hájková, P. A. V. L. Í. N. A., & Čmelík, J. (2019). Comparison of kaolin and kaolinitic claystones as raw materials for preparing meta-kaolinite-based geopolymers. *Ceramics–Silikáty*, 63(1), 110-123.
- Krongkrachang, P., Thungngern, P., Asawaworarit, P., Houngkamhang, N., & Eiad-Ua, A. (2019). Synthesis of zeolite Y from kaolin via hydrothermal method. *Materials Today: Proceedings*, 17, 1431-1436.
- Lam SM, Low XZD, Wong KA, Sin JC (2018) Sequencing coagulation–photodegradation treatment of Malachite Green dye and textile wastewater through ZnO micro/nanoflowers. *Chem Eng Commun* 205: 1143–1156
- Liang CZ, Sun SP, Li FY, Ong YK, Chung TS (2014) Treatment of highly concentrated wastewater containing multiple synthetic dyes by a combined process of coagulation/flocculation and nanofiltration. *J Membr Sci* 469: 306–315.
- Lim, W. R., Lee, C. H., & Hamm, S. Y. (2021). Synthesis and characteristics of Na-A zeolite from natural kaolin in Korea. *Materials Chemistry and Physics*, 261, 124230.
- Lu, Y., Chen, J., Zhao, L., Zhou, Z., Qiu, C., & Li, Q. (2020). Adsorption of Rodamin B from Aqueous Solution by Goat Manure Biochar: Kinetics, Isotherms, and Thermodynamic Studies. *Polish Journal of Environmental Studies*, 29(4).
- Mohammed, M. I., & Baytak, S. (2016). Synthesis of bentonite–carbon nanotube nanocomposite and its adsorption of rodamin dye from water. *Arabian Journal for Science and Engineering*, 41, 4775-4785.
- Olaremu, A. G., Odebunmi, E. O., Nwosu, F. O., Adeola, A. O., & Abayomi, T. G. (2018). Synthesis of zeolite from kaolin clay from Erusu Akoko southwestern. *Journal of Chemical Society of Nigeria*, 43(3).
- Oyekanmi, A. A., Ahmad, A., Hossain, K., & Rafatullah, M. (2019). Adsorption of Rodamin B dye from aqueous solution onto acid treated banana peel: Response surface methodology, kinetics and isotherm studies. *PLoS One*, 14(5), e0216878
- Postai, D. L., Demarchi, C. A., Zanatta, F., Melo, D. C. C., & Rodrigues, C. A. (2016). Adsorption of rodamin B and methylene blue dyes using waste of seeds of *Aleurites Moluccana*, a low cost adsorbent. *Alexandria Engineering Journal*, 55(2), 1713-1723.

- PubChem, 2021. Kaolin. Erişim tarihi: 26.08.2024, <https://pubchem.ncbi.nlm.nih.gov/compound/Kaolin>.
- saad Algarni, T., & Al-Mohaimeed, A. M. (2022). Water purification by absorption of pigments or pollutants via metaloxide. *Journal of King Saud University-Science*, 102339.
- Sahinkaya E, Sahin A, Yurtsever A, Kitis M (2018) Concentrate minimization and water recovery enhancement using pellet precipitator in a reverse osmosis process treating textile wastewater. *J Environ Manage* 222: 420–427
- Selim, M. M., EL-Mekkawi, D. M., Aboelenin, R. M., Sayed Ahmed, S. A., & Mohamed, G. M. (2017). Preparation and characterization of Na-A zeolite from aluminum scrub and commercial sodium silicate for the removal of Cd<sup>2+</sup> from water. *Journal of the Association of Arab Universities for Basic and Applied Sciences*, 24(1), 19-25.
- Shen K, Gondal MA (2017) Removal of hazardous Rodamin dye from water by adsorption onto exhausted coffee ground. *J Saudi Chem Soc* 21: S120–S127
- Silva, S. H. D., Bieseki, L., Maia, A. A. B., Treichel, H., Angelica, R. S., & Pergher, S. B. C. (2017). Study on the NaOH/metakaolin ratio and crystallization time for zeolite a synthesis from kaolin using statistical design. *Materials Research*, 20, 761-767.
- Sowunmi, A. R., Folayan, C. O., Anafi, F. O., Ajayi, O. A., Omisanya, N. O., Obada, D. O., & Doodoo-Arhin, D. (2018). Dataset on the comparison of synthesized and commercial zeolites for potential solar adsorption refrigerating system. *Data in brief*, 20, 90-95.
- Torrades F, Garcí'a-Montaño J (2014) Using central composite experimental design to optimize the degradation of real dye wastewater by Fenton and photo-Fenton reactions. *Dyes Pigm* 100: 184–189.
- Vakili M, Rafatullah M, Salamatinia B, Abdullah AZ, Ibrahim MH, Tan KB, et. al. (2014) Application of chitosan and its derivatives as adsorbents for dye removal from water and wastewater: A review. *Carbohydr Polym* 113: 115–30.
- Wang J, Rafatullah M, Norhashimah M, Kaizar H, Teng TT (2016) Extraction of Toxic Rodamin B Dye by Using Organic Solvent: A Statistical Analysis. *Res J Environ Toxicol* 10: 152–58
- Wang, F., Kovler, K., Provis, J. L., Buchwald, A., Cyr, M., Patapy, C., ... & Sideris, K. (2018). Metakaolin. Properties of Fresh and Hardened Concrete Containing Supplementary Cementitious Materials: State-of-the-Art Report of the RILEM Technical Committee 238-SCM, Working Group 4, 153-179.

- Wang, J. Q., Huang, Y. X., Pan, Y., & Mi, J. X. (2014). Hydrothermal synthesis of high purity zeolite A from natural kaolin without calcination. *Microporous and mesoporous materials*, 199, 50-56.
- Xiao, W., Garba, Z. N., Sun, S., Lawan, I., Wang, L., Lin, M., & Yuan, Z. (2020). Preparation and evaluation of an effective activated carbon from white sugar for the adsorption of rodamin B dye. *Journal of Cleaner Production*, 253, 119989.
- Yang C, Li L, Shi J, Long C, Li A (2015) Advanced treatment of textile dyeing secondary effluent using magnetic anion exchange resin and its effect on organic fouling in subsequent RO membrane. *J Hazard Mater* 284: 50–5.
- Yang G, Wu L, Xian Q, Shen F, Wu J, Zhang Y (2016) Removal of Congo Red and Methylene Blue from Aqueous Solutions by Vermicompost-Derived Biochars. *PLoS ONE* 11(5): e0154562.
- Yin, M., Pan, Y., & Pan, C. (2019). Adsorption properties of graphite oxide for Rodamin B. *Micro & Nano Letters*, 14(11), 1192-1197.