



T.C.  
İSTANBUL ÜNİVERSİTESİ-CERRAHPAŞA  
LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ



YÜKSEK LİSANS TEZİ

DEMİR OKSİT NANOPARTİKÜL SENTEZİ, KARAKTERİZASYONU ve  
ORGANİK ASİT GİDERİMİNDE KULLANILABİLİRLİĞİNİN İNCELENMESİ

AHSEN ÖZFİDAN

DANIŞMAN  
Doç. Dr. Nilay BAYLAN GÜLSOY

Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı

Temel İşlemler ve Termodinamik, Tezli Yüksek Lisans Programı

Ağustos, 2023

## TEZ KABUL VE ONAYI

Ahsen ÖZFİDAN tarafından, Doç. Dr. Nilay BAYLAN GÜLSOY danışmanlığında hazırlanan "Demir Oksit Nanopartikül Sentezi, Karakterizasyonu ve Organik Asit Gideriminde Kullanılabilirliğinin İncelenmesi" başlıklı bu çalışma, jürimiz tarafından 28/08/2023 tarihinde yapılan sınav sonucunda oy birliği ile başarılı bulunarak Yüksek Lisans Tezi olarak kabul edilmiştir.

### Tez Jürisi

	İmza	Sonuç
DANIŞMAN	Doç. Dr. Nilay BAYLAN GÜLSOY İstanbul Üniversitesi-Cerrahpaşa Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı	<input checked="" type="checkbox"/> Kabul <input type="checkbox"/> Ret
ÜYE	Prof. Dr. Süheyla ÇEHRELİ İstanbul Üniversitesi-Cerrahpaşa Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı	<input checked="" type="checkbox"/> Kabul <input type="checkbox"/> Ret
ÜYE	Prof. Dr. Fatma Jale GÜLEN Yıldız Teknik Üniversitesi Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı	<input checked="" type="checkbox"/> Kabul <input type="checkbox"/> Ret

## BEYAN

Bu tez çalışmasının kendi çalışmam olduğunu, tezin planlanmasından yazımına kadar bütün aşamalarda etik dışı davranışımın olmadığını, bu tezdeki bütün bilgileri akademik ve bilimsel etik kuralları içinde elde ettiğimi, bu tez çalışmasıyla elde edilmeyen bütün bilgi ve yorumlara kaynak gösterdiğimi ve bu kaynakları da kaynaklar listesine aldığımı, yine bu tezin çalışılması ve yazımı sırasında patent ve telif haklarını ihlal edici bir davranışımın olmadığını ve her türlü hukuki sorumluluğu aldığımı kabul ederim.

Ahsen ÖZFİDAN

(İmza)



Dedem Fahrettin ÖZLÜ'ye ithaf ediyorum...

## **BÜTÇE DESTEKLERİ**

### **DEMİR OKSİT NANOPARTİKÜL SENTEZİ, KARAKTERİZASYONU ve ORGANİK ASİT GİDERİMİNDE KULLANILABİLİRLİĞİNİN İNCELENMESİ**

Bu tez çalışması için herhangi bir kurumdan bütçe desteği alınmamıştır.

## TEŐEKKÜR

Yüksek lisans eğitimime başlamam konusunda beni heveslendiren, başarabileceğime olan inancını her zaman hissettiren, bilgi birikimini ve desteğini hiçbir zaman esirgemeyen, kıymetli zamanını bana ayırıp bu yolda rol model olan değerli hocam Doç. Dr. Nilay BAYLAN GÜLSOY'a sonsuz teşekkürlerimi ve saygılarımı sunarım.

Çalışmalarımın tüm aşamalarında yanımda olan canım arkadaşım Melike OCAK ÖZKAN'A ve tez çalışmalarına destek olan Yüksek Kimya Mühendisi Tuba DEDECAN'a teşekkür ederim.

Hep daha iyisini yapacağıma olan inancıyla beni cesaretlendiren, hayatım boyunca bana rol model olan canım annem FATMA ÖZLÜ'ye ve bu yolda bana olan desteği ve inancını her zaman hissettiren sevgili eşim Ogün ÖZFİDAN'a çok teşekkür ederim.

Ağustos 2023

Ahsen ÖZFİDAN

# İÇİNDEKİLER

Sayfa No

<b>1. GİRİŞ</b> .....	<b>1</b>
<b>2. KAVRAMSAL ÇERÇEVE</b> .....	<b>2</b>
2.1. NANOPARTİKÜL .....	2
2.1.1. Nanopartikül Türleri.....	2
2.1.1.1. Karbon Bazlı Nanopartiküller .....	2
2.1.1.2. Metal Bazlı Nanopartiküller .....	3
2.1.1.3. Polimer Bazlı Nanopartiküller .....	3
2.1.1.4. Yarı İletken Bazlı Nanopartiküller .....	3
2.1.1.5. Seramik Bazlı Nanopartiküller .....	3
2.1.2. Nanopartikül Üretim Yöntemleri .....	4
2.1.2.1. Mekanik Aşındırma Yöntemi.....	4
2.1.2.2. Kimyasal Buhar Yoğunlaştırma Yöntemi .....	5
2.1.2.3. Hidrojen Redüksiyon Yöntemi .....	6
2.1.2.4. Alev Sentezi Yöntemi.....	6
2.1.2.5. Ultrasonik Sprey Piroлиз Yöntemi .....	6
2.1.2.6. Sol-jel Yöntemi.....	7
2.1.2.7. Lazer Ablasyon Yöntemi .....	7
2.1.2.8. Kimyasal Çöktürme Yöntemi .....	8
2.2. ADSORPSİYON .....	8
2.2.1. Adsorpsiyon Türleri .....	9
2.2.1.1. Kimyasal Adsorpsiyon .....	9
2.2.1.2. Fiziksel Adsorpsiyon.....	9
2.2.1.3. İyonik Adsorpsiyon .....	9
2.2.2. Adsorpsiyon İzotermi.....	9
2.2.2.1. Langmuir İzotermi .....	9
2.2.2.2. Freundlich İzotermi .....	10
2.2.2.3. Temkin İzotermi .....	10
2.2.3. Adsorpsiyon Kinetiği .....	11
2.2.3.1. Pseudo-Birinci Mertebe Kinetik Model.....	11

2.2.3.2. Pseudo-İkinci Mertebe Kinetik Modeli.....	12
2.2.3.3. Elovich Kinetik Modeli .....	12
2.2.3.4. Partikül İçi Difüzyon Kinetik Modeli.....	13
2.2.4. Adsorpsiyon Termodinamiği .....	13
<b>3. YÖNTEM .....</b>	<b>15</b>
3.1. DEMİR OKSİT .....	15
3.2. KARBOKSİLİK ASİTLER .....	16
3.2.1. Formik Asit .....	16
3.2.2. Asetik Asit.....	16
3.2.3. Propiyonik Asit .....	17
3.3. DENEYSEL YÖNTEM.....	17
3.3.1. Demir Oksit Nanopartikül Sentezi .....	17
3.3.2. Adsorpsiyon Yöntemi .....	19
<b>4. BULGULAR .....</b>	<b>20</b>
4.1. DEMİR OKSİT NANOPARTİKÜL KARAKTERİZASYONU .....	20
4.2. ORGANİK ASİT ADSORPSİYONU .....	22
4.2.1. Formik Asit Adsorpsiyonu .....	23
4.2.1.1. Optimum Sürenin Belirlenmesi.....	23
4.2.1.2. Formik Asit Konsantrasyonu Değişiminin Adsorpsiyona Etkisi .....	24
4.2.1.3. Nanopartikül Miktarının Adsorpsiyona Etkisi.....	24
4.2.1.4. Sıcaklık Değişiminin Adsorpsiyona Etkisi.....	25
4.2.2. Asetik Asit Adsorpsiyonu .....	26
4.2.2.1. Optimum Sürenin Belirlenmesi.....	26
4.2.2.2. Asetik Asit Konsantrasyonu Değişiminin Adsorpsiyona Etkisi .....	27
4.2.2.3. Nanopartikül Miktarının Adsorpsiyona Etkisi.....	28
4.2.2.4. Sıcaklık Değişiminin Adsorpsiyona Etkisi.....	29
4.2.3. Propiyonik Asit Adsorpsiyonu .....	30
4.2.3.1. Optimum Sürenin Belirlenmesi.....	30
4.2.3.2. Başlangıç Asit Konsantrasyonu Değişiminin Adsorpsiyona Etkisi .....	31
4.2.3.3. Nanopartikül Miktarının Adsorpsiyona Etkisi.....	32
4.2.3.4. Sıcaklık Değişiminin Adsorpsiyona Etkisi.....	33
4.3. ADSORPSİYON İZOTERMLERİ.....	34
4.3.1. Formik Asite ait Adsorpsiyon İzotermi .....	34
4.3.2. Asetik Asite ait Adsorpsiyon İzotermi.....	36

4.3.3. Propiyonik Asite ait Adsorpsiyon İzotermi	39
4.4. ADSORPSİYON KİNETİĞİ	41
4.4.1. Formik Asite ait Adsorpsiyon Kinetiği	42
4.4.2. Asetik Asite ait Adsorpsiyon Kinetiği	44
4.4.3. Propiyonik Asite ait Adsorpsiyon Kinetiği	47
4.5. ADSORPSİYON TERMODİNAMİĞİ	50
4.5.1. Formik Asite ait Adsorpsiyon Termodinamiği	50
4.5.2. Asetik Asite ait Adsorpsiyon Termodinamiği	51
4.5.3. Propiyonik Asite ait Adsorpsiyon Termodinamiği	52
<b>5. TARTIŞMA</b>	<b>54</b>
<b>6. SONUÇ VE ÖNERİLER</b>	<b>56</b>
<b>KAYNAKLAR</b>	<b>58</b>
<b>İNTİHAL RAPORU İLK SAYFASI</b>	<b>62</b>
<b>ETİK KURUL İZİN YAZISI</b>	<b>63</b>
<b>KURUM İZİN YAZILARI</b>	<b>64</b>
<b>ÖZGEÇMİŞ</b>	<b>65</b>

## ŞEKİL LİSTESİ

Şekil 2.1: Nanopartiküllerin boyutlandırılması [6].	2
Şekil 2.2: Mekanik aşındırma işlemleri [11].	5
Şekil 2.3: Kimyasal buhar yoğunlaştırma mekanizması [10].	5
Şekil 2.4: Hidrojen redükleme mekanizması [10].	6
Şekil 3.1: Formik asit.	16
Şekil 3.2: Asetik asit.	16
Şekil 3.3: Propiyonik asit.	17
Şekil 3.4: Kimyasal çöktürme yöntemi ile demir oksit nanopartikül sentezi.	18
Şekil 4.1: Demir oksit nanopartiküllerinin FTIR sonuçları.	20
Şekil 4.2: Demir oksit partiküllerinin XRD sonuçları.	21
Şekil 4.3: Demir oksit nanopartiküllerin farklı mag değerlerinde (a) 100 X (b) 1,00 KX (c) 5,00 KX (d) 20,00 KX SEM görüntüleri.	22
Şekil 4.4: Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda temas süresinin etkisi. Deneysel koşullar: Başlangıç formik asit konsantrasyonu: %9,95 (w/w); Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> nanopartikül miktarı: 0,05 g; Sıcaklık: 25°C.	23
Şekil 4.5: Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda asit konsantrasyonunun adsorpsiyon üzerindeki etkisi. Deneysel koşullar: Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> nanopartikül miktarı: 0,05 g; Temas süresi: 180 dakika; Sıcaklık: 25 °C.	24
Şekil 4.6: Demir oksit nanopartikül miktarının formik asit adsorpsiyonuna etkisi. Deneysel koşullar: Başlangıç formik asit konsantrasyonu: %9,95 (w/w); Adsorpsiyon süresi: 180 dakika; Sıcaklık: 25°C.	25
Şekil 4.7: Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisi.	26
Şekil 4.8: Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda temas süresinin adsorpsiyon üzerindeki etkisi. Deneysel koşullar: Başlangıç asetik asit konsantrasyonu %10,28 (w/w); Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> nanopartikül miktarı 0,05 g; Sıcaklık: 25 °C.	27
Şekil 4.9: Asetik asitin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda asit konsantrasyonunun adsorpsiyon üzerindeki etkisi. Deneysel koşullar: Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> nanopartikül miktarı: 0,05 g; Adsorpsiyon süresi: 180 dakika; Sıcaklık: 25 °C.	28
Şekil 4.10: Demir oksit nanopartikül miktarının asetik asit adsorpsiyonuna etkisi. Deneysel koşullar: Başlangıç asetik asit konsantrasyonu: %10,03 (w/w); Adsorpsiyon süresi: 180 dakika; Sıcaklık: 25 °C.	29
Şekil 4.11: Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisi.	30

<b>Şekil 4.12:</b> Propiyonik asidin demir oksit partikülleri ile adsorpsiyonunda temas süresinin adsorpsiyon üzerindeki etkisi. Deneysel koşullar: Başlangıç propiyonik asit konsantrasyonu: %9,97 (w/w); demir oksit nanopartikül miktarı: 0,05 g; Sıcaklık: 25 °C.....	31
<b>Şekil 4.13:</b> Propiyonik asitin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda asit konsantrasyonunun adsorpsiyon üzerindeki etkisi. Deneysel koşullar: Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> nanopartikül miktarı: 0,05 g; Adsorpsiyon süresi: 180 dakika; Sıcaklık: 25 °C.....	32
<b>Şekil 4.14:</b> Demir oksit nanopartikül miktarının propiyonik asit adsorpsiyonuna etkisi. Deneysel koşullar: Başlangıç propiyonik asit konsantrasyonu: %9,97 (w/w); Adsorpsiyon süresi: 180 dakika; Sıcaklık: 25 °C.....	33
<b>Şekil 4.15:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisi.....	34
<b>Şekil 4.16:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Langmuir izotermi.....	35
<b>Şekil 4.17:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikül ile adsorpsiyonunda Freundlich izotermi.....	36
<b>Şekil 4.18:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikül ile adsorpsiyonunda Temkin izotermi....	36
<b>Şekil 4.19:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Langmuir izotermi.....	38
<b>Şekil 4.20:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Freundlich izotermi.....	38
<b>Şekil 4.21:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Temkin izotermi.....	38
<b>Şekil 4.22:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Langmuir izotermi.....	40
<b>Şekil 4.23:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikül ile adsorpsiyonunda Freundlich izotermi.....	41
<b>Şekil 4.24:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Temkin izotermi.....	41
<b>Şekil 4.25:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-birinci mertebe kinetik modeli.....	43
<b>Şekil 4.26:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-ikinci mertebe kinetik modeli.....	43
<b>Şekil 4.27:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Elovich kinetik modeli.....	44

<b>Şekil 4.28:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda partikül içi difüzyon modeli.....	44
<b>Şekil 4.29:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-birinci merteye kinetik modeli.....	46
<b>Şekil 4.30:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-ikinci merteye kinetik modeli.....	46
<b>Şekil 4.31:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Elovich kinetik modeli.....	46
<b>Şekil 4.32:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda partikül içi difüzyon modeli.....	47
<b>Şekil 4.33:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikül ile adsorpsiyonunda pseudo-birinci merteye kinetik modeli.....	48
<b>Şekil 4.34:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-ikinci merteye kinetik modeli.....	49
<b>Şekil 4.35:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Elovich kinetik modeli.....	49
<b>Şekil 4.36:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda partikül içi difüzyon modeli. ....	49
<b>Şekil 4.37:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonu termodinamiği için doğrusal grafik. ....	51
<b>Şekil 4.38:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonu termodinamiği için doğrusal grafik. ....	55
<b>Şekil 4.39:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonu termodinamiği için doğrusal grafik. ....	56
<b>Şekil 5.1:</b> Çeşitli adsorpsiyon şartlarında gerçekleştirilen demir oksit nanopartikül adsorpsiyonunda farklı asit etkisi.....	57

## TABLO LİSTESİ

### Sayfa No

<b>Tablo 3.1:</b> Demir oksitin özellikleri.....	15
<b>Tablo 4.1:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda temas süresinin etkisine ait deneysel veriler.....	23
<b>Tablo 4.2:</b> Formik asidin başlangıç asit konsantrasyon değişiminin demir oksit adsorpsiyonu üzerindeki etkisine ait deneysel veriler.....	24
<b>Tablo 4.3:</b> Demir oksit nanopartikül miktarının formik asit adsorpsiyonu üzerindeki etkisine ait veriler.....	25
<b>Tablo 4.4:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisine ait veriler.....	26
<b>Tablo 4.5:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda temas süresinin adsorpsiyon üzerindeki etkisine ait deneysel veriler.....	27
<b>Tablo 4.6:</b> Asetik asidin başlangıç asit konsantrasyon değişiminin demir oksit adsorpsiyonu üzerinde etkisine ait deneysel veriler.....	28
<b>Tablo 4.7:</b> Demir oksit nanopartikül miktarının asetik asit adsorpsiyonu üzerindeki etkisine ait veriler.....	29
<b>Tablo 4.8:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisine ait veriler.....	30
<b>Tablo 4.9:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikül ile adsorpsiyonunda temas süresinin adsorpsiyon üzerindeki etkisine ait deneysel veriler.....	31
<b>Tablo 4.10:</b> Propiyonik asidin başlangıç asit konsantrasyon değişiminin demir oksit adsorpsiyonu üzerinde etkisine ait deneysel veriler.....	32
<b>Tablo 4.11:</b> Demir oksit nanopartikül miktarının propiyonik asit adsorpsiyonu üzerindeki etkisine ait veriler.....	33
<b>Tablo 4.12:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisine ait veriler.....	34
<b>Tablo 4.13:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Langmuir izoterm modeline ait sonuçlar.....	35
<b>Tablo 4.14:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Freundlich izoterm modeline ait sonuçlar.....	35
<b>Tablo 4.15:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Temkin izoterm modeline ait sonuçlar.....	35

<b>Tablo 4.16:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikül ile adsorpsiyonunda Langmuir, Freundlich ve Temkin izoterm sabitleri ve R <sup>2</sup> değerleri.....	36
<b>Tablo 4.17:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Langmuir izoterm modeline ait sonuçlar. ....	37
<b>Tablo 4.18:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Freundlich izoterm modeline ait sonuçlar. ....	37
<b>Tablo 4.19:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Temkin izoterm modeline ait sonuçlar. ....	37
<b>Tablo 4.20:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Langmuir, Freundlich ve Temkin izoterm sabitleri ve R <sup>2</sup> değerleri. ....	39
<b>Tablo 4.21:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Langmuir izoterm modeline ait sonuçlar. ....	39
<b>Tablo 4.22:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Freundlich izoterm modeline ait sonuçlar. ....	40
<b>Tablo 4.23:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Temkin izoterm modeline ait sonuçlar. ....	40
<b>Tablo 4.24:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Langmuir, Freundlich ve Temkin izoterm sabitleri ve R <sup>2</sup> değerleri. ....	41
<b>Tablo 4.25:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-birinci mertebe kinetik modeline ait sonuçlar. ....	42
<b>Tablo 4.26:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-ikinci mertebe kinetik modeline ait sonuçlar. ....	42
<b>Tablo 4.27:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Elovich kinetik modeline ait sonuçlar. ....	42
<b>Tablo 4.28:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda partikül içi difüzyon modeline ait sonuçlar. ....	43
<b>Tablo 4.29:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda hesaplanan kinetik model katsayıları ve R <sup>2</sup> değerleri. ....	44
<b>Tablo 4.30:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-birinci mertebe kinetik modeline ait sonuçlar. ....	45
<b>Tablo 4.31:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-ikinci mertebe kinetik modeline ait sonuçlar. ....	45
<b>Tablo 4.32:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Elovich kinetik modeline ait sonuçlar. ....	45

<b>Tablo 4.33:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda partikül içi difüzyon modeline ait sonuçlar. ....	45
<b>Tablo 4.34:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikül ile adsorpsiyonunda hesaplanan kinetik model katsayıları ve $R^2$ değerleri. ....	47
<b>Tablo 4.35:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-birinci mertebe kinetik modeline ait sonuçlar. ....	47
<b>Tablo 4.36:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-ikinci mertebe kinetik modeline ait sonuçlar. ....	48
<b>Tablo 4.37:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Elovich kinetik modeline ait sonuçlar. ....	48
<b>Tablo 4.38:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda partikül içi difüzyon modeline ait sonuçlar. ....	48
<b>Tablo 4.39:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda hesaplanan kinetik model katsayıları ve $R^2$ değerleri. ....	50
<b>Tablo 4.40:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda termodinamik veriler. ....	51
<b>Tablo 4.41:</b> Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda hesaplanan termodinamik parametreler ve $R^2$ değeri. ....	51
<b>Tablo 4.42:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda termodinamik veriler. ....	52
<b>Tablo 4.43:</b> Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda hesaplanan termodinamik parametreler ve $R^2$ değeri. ....	52
<b>Tablo 4.44:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda termodinamik veriler. ....	53
<b>Tablo 4.45:</b> Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda hesaplanan termodinamik parametreler ve $R^2$ değeri. ....	53

## SİMGE VE KISALTMA LİSTESİ

<b>Simgeler</b>	<b>Açıklama</b>
<b>Fe</b>	: Demir
<b>C<sub>0</sub></b>	: Başlangıç konsantrasyonu (mg L <sup>-1</sup> )
<b>C<sub>e</sub></b>	: Denge konsantrasyonu (mg L <sup>-1</sup> )
<b>q<sub>e</sub></b>	: Adsorpsiyon kapasitesi (mg g <sup>-1</sup> )
<b>t</b>	: Zaman (dak)
<b>K<sub>f</sub></b>	: Freundlich adsorpsiyon kapasitesi (L g <sup>-1</sup> )
<b>n</b>	: Freundlich izoterm sabiti
<b>Q<sub>0</sub></b>	: Langmuir adsorpsiyon kapasitesi (mg g <sup>-1</sup> )
<b>b</b>	: Langmuir izoterm sabiti
<b>K<sub>t</sub></b>	: Temkin adsorpsiyon kapasitesi (L g <sup>-1</sup> )
<b>b<sub>t</sub></b>	: Temkin izoterm sabiti
<b>°C</b>	: Celcius

<b>Kısaltmalar</b>	<b>Açıklama</b>
<b>BET</b>	: Brunauer, Emmett ve Teller
<b>FTIR</b>	: Fourier dönüşümlü kızılötesi spektroskopisi
<b>XRD</b>	: X ışını kırınımı
<b>SEM</b>	: Taramalı elektron misroskobu
<b>nm</b>	: Nanometre

## ÖZET

### YÜKSEK LİSANS TEZİ

#### DEMİR OKSİT NANOPARTİKÜL SENTEZİ, KARAKTERİZASYONU ve ORGANİK ASİT GİDERİMİNDE KULLANILABİLİRLİĞİNİN İNCELENMESİ

AHSEN ÖZFİDAN

İstanbul Üniversitesi-Cerrahpaşa

Lisansüstü Eğitim Enstitüsü

Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı

Temel İşlemler ve Termodinamik, Tezli Yüksek Lisans Programı

Danışman : Doç. Dr. Nilay BAYLAN GÜLSOY

Son yıllarda, metal oksit nanopartiküllerin dikkat çekici özelliklere sahip olmasından dolayı, metal oksit nanopartiküllerin adsorpsiyon proseslerinde adsorban olarak kullanımları büyük bir ilgi ile karşılanmaktadır. Bu kapsamda, bu tez çalışmasında demir oksit nanopartikül ( $Fe_2O_3$ ) kullanılarak çeşitli organik asitlerin sulu ortamlardan adsorpsiyon yöntemiyle ayrılması incelenmiştir. Çalışmanın başlangıcında; ekonomik ve basit bir çöktürme yöntemiyle demir oksit nanopartikül sentezlenmiş olup, sentezlenen demir nanopartiküllerin taramalı elektron mikroskobu (SEM), Fourier transform kızılötesi spektroskopisi (FTIR) ve X-Işını Difraktometre (XRD) analizleri ile karakterizasyonu yapılmıştır. Çalışmanın devamında sentezlenen demir oksit nanopartiküllerin adsorban olarak kullanılabilirliği değerlendirilmiştir. Bu bağlamda, demir oksit nanopartiküller adsorban olarak çeşitli organik asitlerin (formik asit, asetik asit ve propiyonik asit) sulu çözeltilerden ayrılmasında araştırılmıştır. Organik asit konsantrasyonu (%2–10 w/w), temas süresi (30-240 dakika), demir oksit nanopartikül miktarı (0,05–0,25 g) ve sıcaklık (25–55 °C) etkileri deneysel olarak incelenmiş olup optimum adsorpsiyon koşulları tespit edilmiştir. Organik asitlerin demir oksit nanopartikül ile olan adsorpsiyon sürecini aydınlatmak amacıyla izoterm, kinetik ve termodinamik çalışmalar gerçekleştirilmiştir. Sonuç olarak, sentezlenen demir oksit nanopartiküllerin organik asitlerin sulu çözeltilerinden ayrılmasında etkili bir adsorban olarak kullanılabileceğini göstermiştir.

Ağustos 2023 , 83 sayfa.

**Anahtar kelimeler:** Demir oksit nanopartikül, adsorpsiyon, karakterizasyon, formik asit, propiyonik asit, asetik asit

**ABSTRACT****[M.Sc. THESIS]****[IRON OXIDE NANOPARTICLE SYNTHESIS, CHARACTERIZATION AND  
INVESTIGATION OF ITS USABILITY IN ORGANIC ACID REMOVAL ]****[Ahsen ÖZFİDAN]****İstanbul University-Cerrahpaşa****Institute of Graduate Studies****Department of Chemical Engineering****Unit Operations and Thermodynamics Thesis Master's Programme****[Supervisor : Assoc. Prof. Dr. Nilay BAYLAN GÜLSOY ]**

[In recent years, due to the remarkable properties of metal oxide nanoparticles, the use of metal oxide nanoparticles as adsorbent in adsorption processes has been attracted with great interest. In this context, in this thesis, the separation of various organic acids from aqueous media by adsorption method using iron oxide nanoparticle ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) was investigated. At the beginning of the study, iron oxide nanoparticles were synthesized by an economical and simple precipitation method, and the synthesized iron nanoparticles were characterized by scanning electron microscopy (SEM), Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR) and X-Ray Diffractometry (XRD) analyzes. In the continuation of the study, the usability of synthesized iron oxide nanoparticles as adsorbent was evaluated. In this context, iron oxide nanoparticles were investigated as adsorbent in the separation of various organic acids (formic acid, acetic acid and propionic acid) from aqueous solutions. The effects of organic acid concentration (2–10% w/w), contact time (30-240 minutes), iron oxide nanoparticle amount (0.05–0,25 g) and temperature (25–55 °C) were investigated experimentally. The optimum adsorption conditions were determined. Isotherm, kinetic and thermodynamic studies were carried out to elucidate the adsorption process of organic acids with iron oxide nanoparticles. As a result, it has been shown that the synthesized iron oxide nanoparticles can be used as an effective adsorbent in the separation of organic acids from aqueous solutions. ]

August 2023 [83] pages.

**Keywords:** [Iron oxide nanoparticle, adsorption, characterization, formic acid, propionic acid, acetic acid]

## 1. GİRİŞ

Nanoteknoloji, boyutu 1 ile 100 nanometre arasında deęişen ölçülerde yapılan mühendislik ve teknoloji çalışmalarına verilen isimdir. Nanometre ölçeğinde maddeler beklenmedik özellikler sergilemektedirler. Parçacığın boyutuna baęlı olarak, malzemenin özellikleri deęişiklik göstermektedir. Nanoteknoloji bir maddenin yüzey alanını arttırarak, daha fazla atom veya molekül ile etkileşime girmesine imkan sağlanmaktadır [1]. Nanoteknoloji; tarım, kozmetik, elektronik, yenilenebilir enerji, optik, otomotiv, inşaat, gıda, tekstil, güvenlik ve medikal gibi birçok alanda uygulanmaktadır [2].

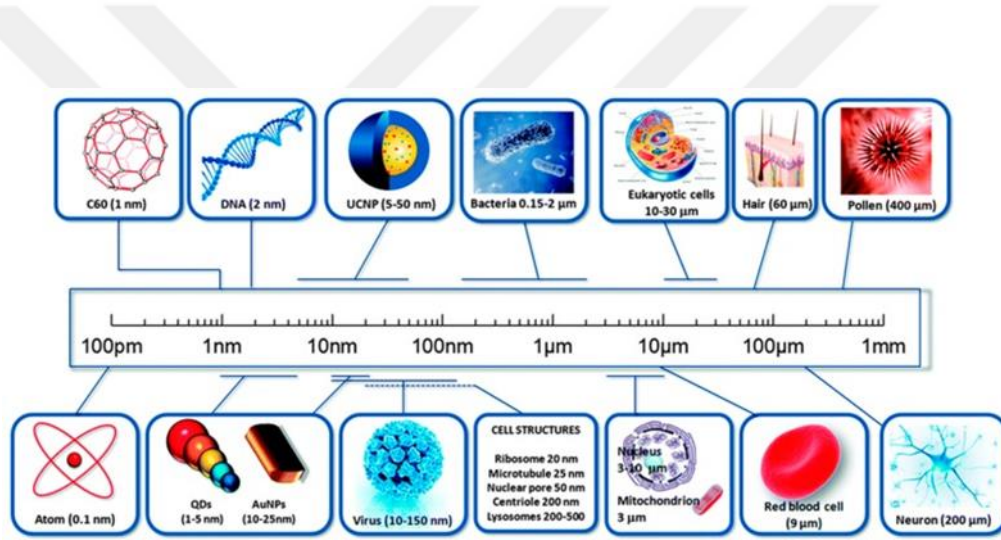
Nanopartiküllerin kullanım alanları oldukça geniş olup malzeme gelişiminde büyük rol oynamaktadırlar. Nanopartikül içeren malzemelerin ilgi görme sebepleri iletkenlik, aęırlık, ısı direnci ve esneklik gibi parametrelerdir. Nanopartiküllerin kullanımına birçok endüstride rastlanmakta olup gaz sensörleri, bataryalar, süper kapasitörler, otomotiv sektöründe çizilmeye dayanıklı boyalar, lastik dolgu maddesi ve yansımayı azalan katman gibi ürünler örnek verilebilmektedir. Kozmetik sanayide ise, örneklerine güneş kremlerinde rastlanmaktadır. En çok kullanıldığı dięer bir alan tıp olup, MR görüntüleme cihazlarında, kanser tedavisinde kullanılan ilaç üretimlerinde ve doku kültürlerinin rejeneratif tıp alanında kullanımı da umut vaat etmektedir. Bununla birlikte, nano-metal oksitlerin daha geniş bir yüzey alanı ve daha yüksek gözeneklilięi gibi istenilen adsorpsiyon özelliklerine sahip olmasından dolayı, nano-metal oksitler çeşitli bileşiklerin ayrılması için yeni bir adsorban grubu olarak karşımıza çıkmaktadırlar [3-4].

Bu çalışmada, nano boyutta demir oksit nanopartikülleri ekonomik yöntemle elde edilerek çeşitli analizlerle (SEM, FTIR ve XRD) karakterizasyonu gerçekleştirilmiştir. Sentezi gerçekleştirilen demir oksit nanopartikülleri adsorban olarak kullanılmıştır ve formik, asetik ve propiyonik asitlerinin sulu çözeltilerinden adsorpsiyon yöntemi ile ayrılmasında incelenmiştir. Böylece, sentezlenen demir oksit nanopartiküllerinin özellikleri ve ayırma etkinlikleri belirlenmiş olup, adsorpsiyon mekanizmasının anlaşılabilmesi için de termodinamik, denge ve kinetik çalışmaları gerçekleştirilmiştir. |

## 2. KAVRAMSAL ÇERÇEVE

### 2.1. NANOPARTİKÜL

Nanopartikül, boyutları 1-100 nm arasında değişen malzemelerdir. Çeşitli nanopartikül boyutları Şekil 2.1’de gösterilmiştir. Nanopartiküller, fonksiyonelleştirilebilmeleri, kimyasal ve fiziksel kararlılıklarının yüksek olması ve yüksek yüzey alanına sahip olmaları sebebiyle bilimsel çalışmalarda oldukça yoğun ilgi görmektedirler. Nanopartikülleri diğer malzemelerden ayıran en büyük özellikleri, onlara yüksek reaktivite ve fizikokimyasal dinamiklik sağlayan yüzey alanı-hacim oranı olarak kabul edilmektedir. Nanopartiküller, şekillerine, fiziksel ve kimyasal özelliklerine ve boyutlarına göre sınıflandırılabilir [5].



Şekil 2.1: Nanopartiküllerin boyutlandırılması [6].

#### 2.1.1. Nanopartikül Türleri

Nanopartiküller; boyutlarına, kimyasal özelliklerine ve morfolojilerine göre sınıflandırılmaktadır. Kimyasal ve fiziksel özelliklerine göre, karbon, metal, polimer, yarı iletken, lipid ve seramik bazlı olmak üzere 6 gruba ayrılmaktadırlar.

##### 2.1.1.1. Karbon Bazlı Nanopartiküller

Karbon nanotüpleri ve fullerenler, karbon bazlı nanopartiküllerin iki ana sınıfı oluşturmaktadır. Elektriksel iletkenlik, elektron eğilimleri, yüksek dayanıklılıkları ve yapıları itibariyle ticari değer taşımaktadırlar. Bu nanopartiküller, karbon atomlarının hibritleşmesi ile oluşmaktadırlar. Karbon bazlı nanomalzemeler, son zamanlarda CVD (kimyasal buhar biriktirme) yöntemi ile sentezlenmekte olup, her zaman saf haliyle teknolojik uygulamalarda kullanılmasının yanı sıra

dolgu malzemesi olarak da kullanılmaktadır [7]. Karbon nanopartiküllerinin kullanım alanına en çok çevresel iyileştirme için oldukça etkili olan gaz adsorbanları ve farklı organik ve inorganik katalizörler için destek madde olarak rastlanmaktadır [8].

#### ***2.1.1.2. Metal Bazlı Nanopartiküller***

Metal nanopartiküller, gelişmiş optik özellikleri nedeniyle günümüzde oldukça yaygın olarak kullanılmaktadır. Cu, Au, Fe ve Ag gibi alkali ve soy metallerin nanopartikülleri elektromanyetik güneş spektrumunun görünür olan bölgesinde oldukça geniş bir emilim bandına sahiptir [7]. Bu nanopartiküller yüksek yüzey alanları ve küçük boyutları ile karakterize edilmektedirler. Yüzeylerinde bulunan işlevsellikler, etkileşimlerini arttırmaktadır [9].

#### ***2.1.1.3. Polimer Bazlı Nanopartiküller***

Polimer nanopartiküller özellikle tıp alanında kullanılmaktadır. Antikanser ilaç, antiinflamatuvar ilaç, peptit ve proteinler için taşıyıcı sistem olarak aşı ve tanı maddesi olarak kullanılabilenler olup veteriner hekimlikte de yaygın kullanıma sahiptirler. Antijenik olanlar ise hayvanları parazite karşı korumak için kullanılmaktadır. İlaç uygulamalarında, etkin maddenin hedef bölgedeki salınımına destek olurlar. Polimer nanopartiküller, genelde nanokapsül veya nanoküre şeklindedirler [7].

#### ***2.1.1.4. Yarı İletken Bazlı Nanopartiküller***

Yarıiletken nanopartiküller; metal ve ametal özelliklere sahip olup literatürde uygulama alanlarına oldukça sık rastlanmaktadır. Geniş enerji aralıklarına sahip olup, fotooptik, elektronik cihazlar ve fotokataliz gibi alanlarda kullanımlarına sahiptir [7].

#### ***2.1.1.5. Lipid Bazlı Nanopartiküller***

Lipid bileşenleri içeren nanopartiküller birçok biyomedikal uygulamada kullanılan nanopartikül çapı 10 ile 100 nm arasında değişen küresel yapıli partiküllerdir. Yüzey aktif maddeler ve emülsiyonlaştırıcılar, lipid bazlı nanopartikülün dış çekirdeğini stabilize etmektedir. Kullanımına en sık kanser tedavisinde RNA salınımında rastlanmaktadır [7].

#### ***2.1.1.5. Seramik Bazlı Nanopartiküller***

İnorganik ametallerden oluşan seramik nanopartiküller, ısıtma ve art arda soğutma yoluyla sentezlenebilmektedirler. Gözenekli, yoğun veya içi boş şekilde bulunabilirler. Kullanım alanları; boya fotodegradasyonu, görüntüleme, kataliz ve fotokatalizdir [7].

### **2.1.2. Nanopartikül Üretim Yöntemleri**

Nanopartiküller, çeşitli yöntemler ile sentezlenebilmektedir. İncelenen birçok kaynakta ‘Top down (aşağıdan yukarıya)’, ‘Top bottom (yukarıdan aşağıya)’ ve ‘hibrit yaklaşımı (hybrid approach)’ üretim metodları ile açıklanmaktadır. ‘Top Down’ yaklaşımı; kimyasal ve mekaniksel teknikleri içermektedir. Bu yöntemde; nanomalzemeler, aşındırma, öğütme ve asit oyma işlemleri ile nanopartiküllere dönüşür. Bu yaklaşım, daha çok ince film tabakalarının ve 100 nm’den büyük olan nanomalzemelerin üretimi için uygundur. İyi derecede entegrasyon ve bağlantıya sahip elektrik devrelerinin üretimi için kullanılmaktadır. Entegre devre üretimi, yukarıdan aşağı nanoteknolojinin güzel bir örneği olup küçük mekanik bileşenler bir çipin içine gömülmektedir. Bu yöntemin en büyük dezavantajı ise çözünürlük sınırlamasıdır. Top bottom yönteminde; atomlar, nanopartiküller, moleküller karmaşık nanomalzemeleri üretmek için kullanılır. Fiziksel ve kimyasal yöntemlerin hidrojen ve iyonik bağlar, Van der Waals kuvvetleri ve su aracılığıyla hidrojen bağları gibi kovalent olmayan bağlar aracılığıyla bireysel molekülleri daha büyük yapılar halinde birleştirmek için kullanılan bir aşağıdan yukarıya yaklaşımıdır. Hibrit yöntemde ise aşağıdan yukarıya ve yukarıdan aşağıya üretim yönteminin sentezini bir arada içeren yöntem olarak tanımlanmaktadır. Fotolitografi, hibrit yaklaşıma en iyi örneklerden biridir [7].

#### **2.1.2.1. Mekanik Aşındırma Yöntemi**

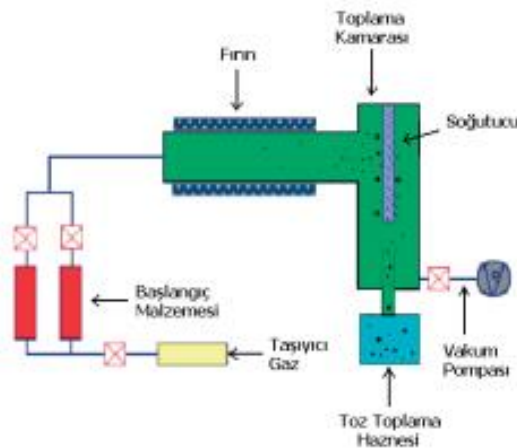
Bir top down sentezleme yöntemi olup, bu yöntemle ilk üretim 1970’li yıllara dayanmaktadır. Faz karışımları ve yeni alaşımların üretimi bu yöntem ile gerçekleştirilmektedir. Bu üretim metodunda aşındırıcı, titreşimli, gezegen ve yüksek enerjili bilyalı değirmenler kullanılmaktadır. Yüksek frekans ve düşük genlikli titreşim ile çalışılmaktadır. Bu üretim yönteminin en büyük dezavantajı üretim esnasında öğütücüden malzemeye safsızlıkların karışıyor olmasıdır. Bir başka dezavantajı ise açık alanlarda gerçekleştirilen üretimlerde oksitlenme ve azotla temas etme problemleridir [10].



Şekil 2.2: Mekanik aşındırma işlemleri [11].

### 2.1.2.2. Kimyasal Buhar Yoğunlaştırma Yöntemi

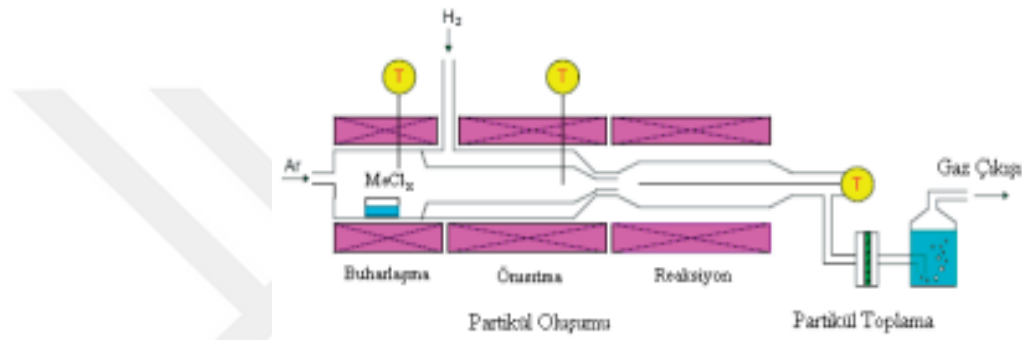
Yüksek miktarda nanopartikül üretimi için ideal bir yöntem olup malzeme olarak buhar fazına kolay geçiş sağlayabilen hidrüller, karboniller, metal organikler ve klorürler kullanılmaktadır. En büyük avantajı her çeşit malzemenin geniş bir kimyasal bileşimde üretiminin mümkün olmasıdır. Bir başka avantaj olarak içi boş ve çekirdek-kabuk partiküllerin üretilebiliyor olması sayılmaktadır [10]. Yöntemin temeli gaz fazında olan malzemenin ısıl parçalanmaya uğrayıp partiküle dönüşmesine dayanmaktadır [8]. Taşıyıcı gaz olarak, inert gazlar olan He, N<sub>2</sub> ve Ar kullanılmaktadır.



Şekil 2.3: Kimyasal buhar yoğunlaştırma mekanizması [10].

### 2.1.2.3. Hidrojen Redüksiyon Yöntemi

Hidrojen redüksiyon yöntemi; demir grubu (Ni, Co ve Fe) metal nanopartiküllerinin laboratuvar ölçekli sentezlenmesinde sıkça kullanılmaktadır. Bu yöntem; gaz fazında redüksiyon ile metalik nanopartiküllerin üretimini gerçekleştirmektedir. Hidrojen gazı, taşıyıcı gaz ve redükleyici olarak kullanılabilen gibi azot ve argon gibi inert gazlar da taşıyıcı olarak kullanılabilir. Bu yöntemde üretim için en önemli parametreler reaktanların konsantrasyonu, boyut dağılımı, buhar ve partiküllerin sıcak ortam içerisinde kalma süresidir [10].



Şekil 2.4: Hidrojen redükleme mekanizması [10].

### 2.1.2.4. Alev Sentezi Yöntemi

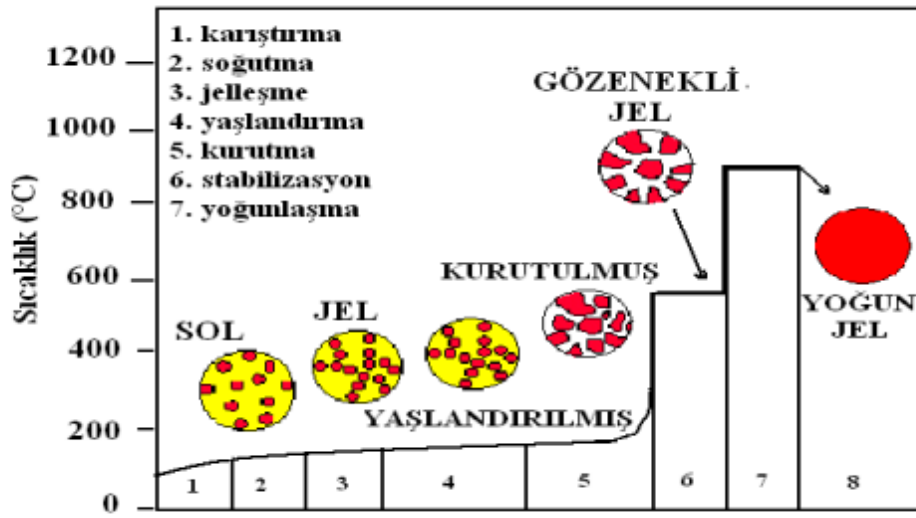
Ticari miktarlarda üretim için oldukça sık kullanılan düşük maliyetli bir yöntemdir. Oksit nanopartiküllerin üretimi için uygun olup başlangıç malzemesi olarak uçucu halojenler tercih edilmektedir. Oluşan buhar fazının, hidrojen, oksijen veya hava ile alev ortamına taşınmasıyla gaz fazındaki reaksiyonların sonucu olarak atom kümeleri oluşmakta ve bunların birleşmesiyle de nanopartiküller meydana gelmektedir. Kabuk/çekirdek nanopartiküllerin üretiminde alev sentezi yöntemi tercih edilmektedir [10].

### 2.1.2.5. Ultrasonik Sprey Piroliz Yöntemi

Medikal alanda kullanılan nanopartiküllerin sentezinde tercih edilen bir üretim yöntemidir. Ultrasonik atomizasyon tekniği üstün kaliteli yarı iletken oksit ince filmlerin üretiminde ortaya çıkmaktadır. Bu yöntem, küresel olmamış, çok geniş bir aralıkta değişen kimyasal bileşim ve morfolojiye sahip nanopartiküllerin üretimini desteklemektedir. Bu üretim prosesi, birbirinden ayrı olan damlacıkların aerosol formunda başlangıç çözeltisinden oluşumunu, faz değişiminin kontrolünü ve ısıl parçalanmayı içermektedir [10].

### 2.1.2.6. Sol-jel Yöntemi

Sol jel işlemi hidroliz ve kondenzasyon (sol-jel) reaksiyonlarından oluşmaktadır. Bu reaksiyonları etkileyen birkaç parametre bulunmaktadır. Metal alkoksidin aktivitesi, su/alkoksit oranı, çözeltinin pH değeri ve sıcaklık başlıca parametrelerdir. Parametreler değiştirilerek, farklı nanomalzemeler üretilmektedir. Sol jel işlemi genellikle düşük sıcaklıklarda ve sıvı halde gerçekleştirilmektedir. Son ürün katı formda olup, kullanılan hammaddeler arasında M-OH-M veya M-O-M kurulumu içeren polimerizasyon sürecinin sonunda oluşmaktadır [11].



Şekil 2.5: Sol-jel Yöntemi [12].

### 2.1.2.7. Lazer Ablasyon Yöntemi

Belirli dalga boyu aralığında bulunan bir lazer ışın kaynağından çıkan ışın kullanılarak bazı metallerin uygun çözücüler içerisinde kolloidal yapıdaki çözeltilerinin hazırlanması esasına dayanmaktadır. Bu vakum altında gerçekleşen işlem, son yıllarda yaygın bir şekilde araştırılmaktadır. Oldukça pahalı bir yöntem olmasına rağmen, kimyasal yöntemlere göre çöktürme hızı düşüktür. Bu yöntem ile çözücü içerisine daldırılan metal parçanın, lazer ablasyonu ile o metalin nanopartikülleri üretilmektedir [12].

### **2.1.2.8. Kimyasal Çöktürme Yöntemi**

Kimyasal çöktürme için en önemli unsur nanomalzemeler ve çalışılacak sıvının aynı ortamda olmasıdır. Bu durum fiziksel değişimlerin önüne geçerek kristal yapıların oluşmasını engellemektedir. Bu sentez yöntemi, kullanılan çözücü ve çözünmüş olan bileşen arasındaki reaksiyonu tanımlamaktadır. Katkı maddesi, çöktürme işleminden önce çözeltiye katılır ve yüzey aktif madde oluşan parçacıklar arasındaki ayrımı korumak göreviyle kullanılmaktadır. Oluşan nanomalzeme santrifüjleme ile ayrılıp, yıkanır ve kurutulur. Oldukça düşük maliyetli ve büyük ölçekli uygulamalar için de avantajlı bir yöntemdir. Bu yöntemde sıkça kullanılan çözücüler; metanol, etanol, deiyonize sudur [13].

## **2.2. ADSORPSİYON**

Bir maddenin diğer bir madde yüzeyinde veya iki faz arasında ara yüzeyde konsantrasyonunun değişmesi ya da moleküllerin temas ettikleri yüzeyde çekme kuvvetine bağlı olarak, o yüzeye tutunması şeklinde açıklanmaktadır. Adsorplanan maddenin adsorpsiyonu dört adımda gerçekleşmektedir.

Adsorpsiyon 4 ana basamaktan oluşmaktadır.

1. Sıvı veya gaz fazda bulunan adsorplanacak madde, adsorbanı kapsayan bir film tabakası sınırına doğru difüze olur.
2. Film tabakasına gelen adsorplanacak madde buradaki durgun kısımdan geçerek adsorbanın gözeneklerine doğru ilerler.
3. Adsorplanacak madde adsorbanın gözenek boşluklarına doğru ilerler.
4. En son olarak da adsorbatın adsorbanın gözenek yüzeyine tutunması gerçekleşir.

Adsorpsiyon, kullanılan adsorbanın fiziksel ve kimyasal özelliklerine, adsorpsiyon süresine, sıcaklığa bağlı olarak değişebilir [14].

## **2.2.1. Adsorpsiyon Türleri**

### **2.2.1.1. Kimyasal Adsorpsiyon**

Kimyasal adsorpsiyon, adsorplanan madde ile katı yüzey arasındaki fonksiyonel grupların kimyasal etkileşimine verilen addır. Bu adsorpsiyon türü tek tabakalı olup, geniş sıcaklık aralığında gerçekleşebilmektedir. Yüksek derece seçici olması ve bağ kuvvetlerinin moleküller içerisinde olması ile de fiziksel adsorpsiyondan ayrılmaktadır [12]. Adsorpsiyon için aktivasyon enerjisi gerekir ve adsorpsiyon işlemi sıcaklık ile doğru orantılı olarak artış göstermektedir [15].

### **2.2.1.2. Fiziksel Adsorpsiyon**

Fiziksel adsorpsiyonda, adsorbat adsorban üzerine moleküller arası düşük çekim kuvvetleri ile (Van der Waals kuvvetleri) yüzeye tutunmayı sağlamaktadır. Kimyasal adsorpsiyondan farklı olarak fiziksel adsorpsiyonun avantajları düşük sıcaklıklarda gerçekleşmesi, bağ kuvvetlerinin moleküller arasında olması ve reaksiyonun hızlı, aktif ve tersinir olmasıdır [12]. Adsorplanan molekül, yüzey üzerinde hareket halindedir. Adsorpsiyon sonucunda yoğunlaşma enerjisinden biraz fazla ısı açığa çıkar. Bu adsorpsiyon türünde aktivasyon enerjisi gerekmez ve adsorpsiyon sıcaklık ile ters orantılı olup azalma yönündedir [15].

### **2.2.1.3. İyonik Adsorpsiyon**

Elektrostatik çekim kuvvetlerinin etkisi ile iyonlar yüzeydeki yüklü olan alanlara tutunmaktadır. Burada adsorplayan ile adsorplananın iyonik güçleri önemlidir. İyonlar eş yüklü ise tercihli olarak daha küçük olan tarafa geçme eğilimi göstermektedirler [15].

## **2.2.2. Adsorpsiyon İzotermi**

Adsorpsiyon mekanizması, bir denge durumu olup denge zamanında adsorplanan gazın miktarı, denge sıcaklığının ve basıncının göstergesidir. Adsorplanan maddenin basınçla ya da derişimle değişimini veren eğriler adsorpsiyon izotermi olarak adlandırılmaktadır [13].

### **2.2.2.1. Langmuir İzotermi**

Langmuir adsorpsiyon yöntemi, ilk başta katı-gaz adsorpsiyonu hakkında bilgi vermek için tasarlanmış olup, adsorpsiyon işleminde kullanılan çeşitli adsorbanların adsorpsiyon kapasitesini incelemek için de kullanılmaya başlanmıştır. Bu izoterm, desorpsiyon ve adsorpsiyonun hızlarını dengeleyerek yüzey kaplamasını açıklamaktadır. Adsorpsiyon,

adsorban yüzeyinin kaplanmamış olan kısmının oranı ile orantılı olup, desorpsiyon ise kaplanmış olan adsorban yüzeyinin oranı ile orantılıdır.

$$q_e = \frac{Q_0 b C_e}{1 + b C_e} \quad (2.1)$$

Burada;  $q_e$  (mg/g) dengedeki adsorpsiyon kapasitesini,  $Q_0$  (mg/g) adsorbanın maksimum adsorpsiyon kapasitesini,  $C_e$  (mg/L) denge konsantrasyonunu,  $b$  ise Langmuir sabitini ifade etmektedir[13,16].

Eşitlik (2.1) lineerleştirildiğinde (2.2) ve (2.3) numaralı denklem elde edilmektedir.

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{b Q_0} + \frac{C_e}{Q_0} \quad (2.2)$$

$$\frac{1}{q_e} = \frac{1}{Q_0} + \left( \frac{1}{b Q_0} \right) \left( \frac{1}{C_e} \right) \quad (2.3)$$

#### 2.2.2.2. Freundlich İzotermi

Freundlich izoterm modeli, adsorban yüzeyinin heterojenliğinin derecesini göstermektedir. Adsorpsiyon yüzeyleri her biri homojen olan heterojen yüzeylerden oluşmaktadır. Bu modelle beraber adsorban yüzeylerinin enerji dağılımı ve heterojenlik seviyesi göreceli olarak belirlenebilmektedir. Adsorpsiyon kapasitesi olan  $K_f$  değeri ne kadar büyükse adsorpsiyon kapasitesi o kadar yüksek olur.  $1/K_f$  değerinin büyüklüğü 0 ve 1 arasında değişmekte olup değer sıfıra yaklaştıkça adsorpsiyonun heterojenlik seviyesinin arttığı kabul edilir [16,17].

$$q_e = K_f C_e^{\frac{1}{n}} \quad (2.4)$$

(2.4) numaralı eşitliğin lineerleştirilmesi durumunda (2.5) numaralı denklem elde edilir.

$$\log q_e = \log K_f + \frac{1}{n} \log C_e \quad (2.5)$$

#### 2.2.2.3. Temkin İzotermi

Temkin izoterm yöntemi, gaz fazı adsorpsiyon dengelemesini tahmin etmek için kullanılmaktadır. Sıvı adsorpsiyon yöntemlerini tahmin etmek için pek uygun değildir. Bu izoterm yöntemi orta düzeyde iyon konsantrasyonları için geçerlidir [14-16].

Bu izoterm, dolaylı adsorbat/adsorbat etkileşimlerinin adsorpsiyon sürecine etkilerini dikkate alır. Ayrıca tüm moleküllerin adsorban tabakasındaki adsorpsiyon ısısı ( $\Delta H_{ads}$ ) yüzey kaplamasının artmasıyla doğrusal olarak azaldığı varsayılmaktadır [16].

Temkin izoterm eşitliği aşağıdaki şekilde ifade edilmektedir.

$$q_e = B \ln(K_t C_e); B = \frac{RT}{b_t} \quad (2.6)$$

$$q_e = B \ln K_t + B \ln C_e \quad (2.7)$$

### 2.2.3. Adsorpsiyon Kinetiği

Adsorpsiyon işleminin gerçekleşebileceği sistemlerin tasarlanabilmesi için adsorpsiyon kinetiği ve mekanizmasının bilinmesi gerekmektedir. Kinetik modeller, adsorpsiyon süresinin ve mekanizmasının belirlenmesinde kullanılan eşitliklerdir [12].

#### 2.2.3.1. Pseudo-Birinci Mertebe Kinetik Model

Pseudo-birinci mertebe kinetik model, hız sabitini bulmak için Langergren tarafından geliştirilmiştir. Genellikle adsorpsiyon çalışmalarının ilk zamanları için uygunluk göstermektedir.[15,17,18]

Pseudo-birinci mertebe kinetik modeli aşağıdaki denklem ile ifade edilmektedir:

$$\frac{dq_e}{dt} = k_1(q_e - q_t) \quad (2.8)$$

Eşitlik lineerleştirildikten sonra aşağıdaki eşitlikle ifade edilmektedir.

$$\ln(q_e - q_t) = \ln q_e - k_1.t \quad (2.9)$$

Bu denklemde;  $k_1$  birinci dereceden adsorpsiyon hız sabitini,  $t$  (dak) adsorpsiyon süresini,  $q_e$  ve  $q_t$  (mg/g) denge durumundaki ve  $t$  anındaki birim miktarda adsorplanan madde miktarını ifade etmektedir.

DeneySEL verilerle çizilecek olan  $t$  ile  $\ln(q_e - q_t)$  grafiğinden,  $k_1$  ve  $q_e$  değerleri hesaplanarak adsorpsiyon sürecinin pseudo-birinci mertebe kinetik modeline olan uygunluğu incelenmektedir [15,17,18].

### 2.2.3.2. Pseudo-İkinci Mertebe Kinetik Modeli

Pseudo-ikinci dereceden kinetik modelin, pseudo-birinci dereceden modelden farkı model oranıdır. Katı fazın adsorpsiyon kapasitesi temeline dayanmaktadır. Pseudo-birinci kinetik modelin aksine tüm adsorpsiyon sürecine olan davranışı tahmin eder. Ho ve McKay tarafından geliştirilen bu model aşağıdaki denklem ile ifade edilmektedir [15,17,18].

$$\frac{dq_t}{dt} = k_2(q_e - q_t)^2 \quad (2.10)$$

Eşitlik lineerleştirildikten sonra aşağıdaki eşitlikle ifade edilmektedir.

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{1}{q_e} t \quad (2.11)$$

Bu denklemde,  $q_e$  ve  $q_t$  (mg/g) sırasıyla denge durumundaki ve herhangi bir  $t$  anındaki birim miktarda adsorplanan madde miktarını,  $k_2$  ise pseudo-ikinci mertebe adsorpsiyon hız sabitini ifade etmektedir.

Deneysel verilerle çizecek olan,  $t/q_t$  ile  $t$  grafiği aracılığıyla  $q_e$  ve  $k_2$  değerleri hesaplanarak adsorpsiyon sürecinin pseudo-ikinci mertebe kinetik modeline olan uygunluğu belirlenmektedir[15,17,18].

### 2.2.3.3. Elovich Kinetik Modeli

Elovich kinetik modeli katı yüzeyler üzerine çeşitli inorganik adsorbatların adsorpsiyon ve desorpsiyon kinetiklerini belirlemek için geliştirilmiştir. Elovich eşitliği, katı yüzeyin enerjik olarak heterojen yapıya sahip olduğunu ve düşük yüzey kapsamında ne adsorbatlar arasındaki etkileşimin ne de desorpsiyonun adsorpsiyon kinetiğini etkileyeceğini kabul eder. Bu eşitlikte;  $\alpha$  adsorpsiyon hızını,  $\beta$  kimyasal adsorpsiyon için aktivasyon enerjisini ifade etmektedir [17,18].

$$\frac{dq}{dt} = \alpha \exp(-\beta q_t) \quad (2.12)$$

Eşitlik lineerleştirildikten sonra aşağıdaki eşitlikle ifade edilmektedir.

$$q_t = \frac{1}{\beta} \ln(\alpha\beta) + \frac{1}{\beta} \ln t \quad (2.13)$$

Deneysel verilerle çizilen  $t$  ile  $q_t$  grafiği ile  $\alpha$  ve  $\beta$  değerleri hesaplanarak adsorpsiyon sürecinin Elovich kinetik modeline olan uygunluğu incelenmektedir [17,19,20].

#### 2.2.3.4. Partikül İçi Difüzyon Kinetik Modeli

Partikül içi difüzyon kinetik modeli, Weber ve Morris tarafından geliştirilmiş olup aşağıdaki denklem ile gösterilmektedir [18]:

$$q_t = k_{id}t^{\frac{1}{2}} + C \quad (2.14)$$

Bu denklemde,  $q_t$  adsorpsiyonun  $t$  anındaki adsorpsiyon kapasitesini (mg/g),  $C$  kesme noktasını,  $k_{id}$  partikül içi difüzyon hız sabitini (mg/g sa) ifade etmektedir. Buna ek olarak,  $C$  sınır tabaka kalınlığını temsil etmekte olup,  $C$  değeri ile sınır tabakasının etkisi doğru orantılı olarak değişmektedir. Deneysel verilerle çizilen  $q_t$  ile  $t^{1/2}$  grafiği yardımıyla  $k_{id}$  değeri hesaplanarak adsorpsiyon sürecinin partikül içi difüzyon kinetik modeline olan uygunluğu incelenmektedir [18,19,20,21].

#### 2.2.4. Adsorpsiyon Termodinamiği

Dağılım katsayısı ( $K_d$ ) sıcaklıkla değişmektedir. Bu katsayıyı kullanarak adsorpsiyon süreci hakkında bilgi veren termodinamik değişkenlerin hesaplanması mümkündür. Adsorpsiyonun termodinamik açıdan incelenmesi kapsamında adsorpsiyon sırasındaki Gibbs serbest enerji değişimi ( $\Delta G^\circ$ ), entropi değişimi ( $\Delta S^\circ$ ) ve serbest entalpi değişimi ( $\Delta H^\circ$ ) gibi termodinamik parametreler hesaplanıp denge sabiti belirlenmektedir [22]. Termodinamik yaklaşımda tek genel varsayım, adsorbe edilen katmanın yığın fazdan ayırt edilebilir bir faz olarak değerlendirilebilecek olmasıdır [23]. Buna ilave olarak, adsorbanlar termodinamik açıdan inert olarak kabul edilmektedir.

İlgili termodinamik eşitlikler aşağıda gösterilmektedir [22, 24-25]:

$$\Delta G^\circ = \Delta H^\circ - T\Delta S^\circ \quad (2.15)$$

$$\Delta G^\circ = -RT\ln K \quad (2.16)$$

bağıntısı yazılarak her iki bağlantı eşitlenirse,

$$-RT\ln K = \Delta H^\circ - T\Delta S^\circ \quad (2.17)$$

$$\ln K = \frac{-\Delta H^\circ}{RT} + \Delta S^\circ/R \text{ (Van't Hoff eşitliđi)} \quad (2.18)$$

elde edilir.

Bu denklemlerde,  $\Delta H^\circ$  entalpi deđiřimi (kJ/mol), R gaz sabiti,  $\Delta G^\circ$  Gibbs serbest enerji deđiřimi (kJ/mol),  $K_D$  denge sabitini,  $\Delta S^\circ$  entropi deđiřimini (kJ/mol.K), T ise mutlak sıcaklıđı ifade etmektedir.

Van't Hoff eşitliđine göre,  $\ln K$  ile  $1/T$  arasında çizilen grafiđin eđiminden,  $\Delta H^\circ/RT$  ve kesiminden  $\Delta S^\circ/R$  bulunmaktadır.



### 3. YÖNTEM

#### 3.1. DEMİR OKSİT

Demir oksit çok yaygın olarak bilinen metal oksit, demir ve oksijen atomlarından oluşmakta olup, kimyasal formülü  $Fe_2O_3$  şeklindedir. Demir oksitin önemli fiziksel ve kimyasal özellikleri aşağıdaki tabloda gösterilmiştir.

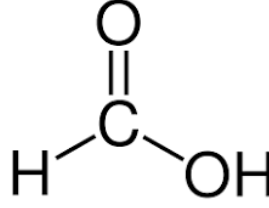
**Tablo 3.1:** Demir oksitin özellikleri.

Partikül Adı	Alümina
Moleküler Formülü	$Fe_2O_3$
Molekül Ağırlığı	159,68 g/mol
Yoğunluk	5,24 g/cm <sup>3</sup>
Erime Noktası	1565 °C
Kaynama Noktası	2623 °C

Doğada paramanyetik olan inorganik bir bileşik olup, diğer ikisi  $Fe_3O_4$  ve  $FeO$ 'dur. Yüksek yüzey alanı ve hacme sahip olması,  $Fe_2O_3$  nanopartiküllerinin özellikle nem sensörlerinde kullanılmasını avantajlı hale getirmektedir. Bunun yanı sıra; gaz sensörleri, piller, fotokatalitik su bölünmesi ve süper kapasitörler olarak birçok uygulamada da kullanılmaktadır [3]. İnorganik bazlı demir (III) oksit ( $Fe_2O_3$ ) nanopartikülleri yaygın olarak biyomühendislik ve biyomedikal alanlarda kullanılmaktadır [26]. Tıp alanında ise; görüntüleme ve teşhis için yararlı olan 'nano-transporter' olarak da kullanılmaktadır [3]. Kanser, diyabet, inflamatuvar hastalıkların erken teşhisi için manyetik rezonans görüntüleme (MRI) uygulamaları ve manyetik ilaç rezonans görüntüleme (MRG), hedeflendirilmiş ilaç taşıma, görüntüleme, kök hücre izleme, hücresel/moleküler izleme, gen tedavisi teknolojileri gibi çeşitli uygulamalarda kullanımlarına rastlanmaktadır [10]. Kanser hastalıklarında, hipertermi tedavisinde, yüksek manyetik ve radyofrekans özellikleri sebebiyle demir oksit nanopartikülleri tercih edilmektedir. Ayrıca farklı polimerler ile kaplama ve yüzey fonksiyonelleştirme yolu ile daha uzun yarılanma ömrü ve stabilite sağlamaktadır [4].

## 3.2. KARBOKSİLİK ASİTLER

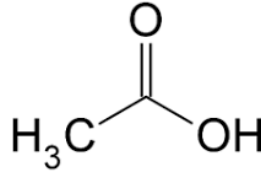
### 3.2.1. Formik Asit



Şekil 3.1: Formik asit.

Formik asit (  $\text{HCO}_2\text{H}$  ), diğer bir ismiyle metanoik asit çoğunlukla deri ve tekstil endüstrisinde kullanılmaktadır. Formik asit ilk olarak karıncadan izole edilmiş ve latince ismi karıncadan gelmektedir. Sülfürik asidin katalizör görevi yardımıyla karbon monoksit ve sodyum hidroksitin reaksiyonu sonucu elde edilmektedir. Formik asit, bir anhidrit oluşturamaması, indirgeyici bir madde olarak reaktivitesi ve asit kuvveti ile diğer karboksilik asitlerden ayrılmaktadır. Formik asitin, etil ve metil esterleri piyasada ticari olarak üretilmektedir [27]. Formik asit, biyolojik olarak fermentasyon prosesiyle üretilebileceği gibi, süksinik asit ve levulinik asit gibi organik asitlerin üretim proseslerinde yan ürün olarak da elde edilmektedir [28]. Formik asidin kullanım alanları, gres yağlar için katkı maddesi, romatizma ve vazokonstriktör ilaçlar için bileşen, vücut bakımı için kozmetik bileşen, temizlik tabakalama ve asitlendirme için ara bileşen olarak kullanılmaktadır. Gıda endüstrisinde ise, E236 isimlendirme ile kullanılıp, gıdalarda tazeliğin korunması destek olup mantar, küf ve bakteri saldırılarına karşı koruma görevi göstermektedir [29].

### 3.2.2. Asetik Asit



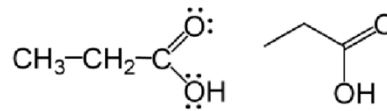
Şekil 3.2: Asetik asit.

Asetik asit (  $\text{CH}_3\text{COOH}$  ), diğer bir ismiyle etanoik asit olarak bilinen önemli bir karboksilik asittir. Endüstriyel olarak bazı baskı işlemlerinde kullanılan metal asetatların hazırlanmasında asetik asit kullanılmaktadır. Örnek olarak; plastik üretiminde kullanılan vinil asetat, fotoğraf filmi yapımında kullanılan selüloz asetat, boyalar, reçineler ve cilalar için çözücü olarak

kullanılan uçucu organik esterler (etil ve bütül asetatlar vb.) verilebilir. Ayrıca, biyolojik olarak önemli bir yere sahip olan asetik asit, bitki suları ve vücut sıvılarında bulunmaktadır [27]. Asetik asitin kullanım alanlarına örnek olarak; sirke üretimi, sanayide kullanılan kimyasalların üretimi, çözücü olarak PET plastiklerin üretiminde ve gıda sektöründe koruyucu, lezzet verici ve asitlik sağlayıcı olarak kullanılmaktadır [30].

### 3.2.3. Propiyonik Asit

Propiyonik asit, birçok işlenmiş gıda ve hayvan yemlerinde bulunan bir karboksilik asit türüdür. Birçok biyolojik proste doğal bir ara ürün olmakla birlikte polimerleştirmede kullanılan ara ürün olma özelliğini de taşımaktadır [31]. Propiyonik asit, kimyasal yöntemlerle (esterlerin hidrolizi ve propanol veya propanalin oksidasyonu) ve mikrobiyal/biyoteknolojik yöntemlerle üretilmektedir. Propiyonik asit büyük çoğunlukla petrokimyasal süreçlerle, propan veya propionaldehidin oksidasyonu ile ham madde olarak üretilmektedir [31]. Propiyonik asit, kimyasal yöntemlerin yanısıra fermentasyon işlemi ile de üretilir. Artan propiyonik asit kullanımı nedeniyle, propiyonik asidin fermentasyon işlemi ile üretilmesi yaygın olarak tercih edilmektedir [32]. Propiyonik asit, çoğunlukla gıda koruyucu olarak görev yapmaktadır. Peynir, unlu mamuller gibi çeşitli gıdalarda, koruyucu ve yapay meyve aromaları için katkı maddesi olarak görev görmektedir. Bununla beraber, tarımda hayvan yemi ve insan tüketimi için tahıllara eklenmekte olup, küf ve bazı bakterilerin oluşumunu engellemektedir. Kullanımına, farmasötikler, manar öldürücüler, aroma ve kokularda da rastlanmaktadır [33].



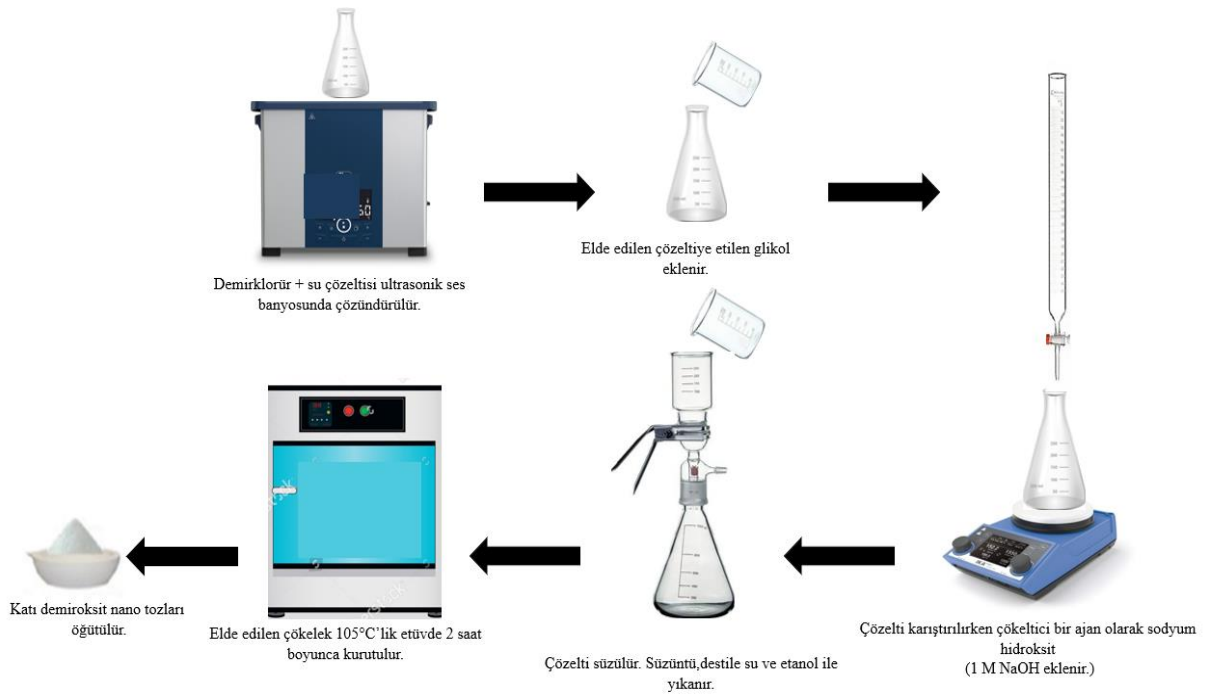
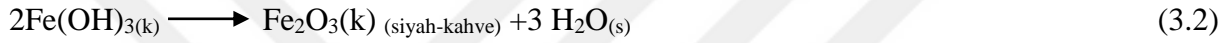
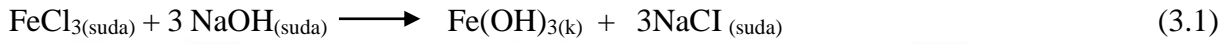
Şekil 3.3: Propiyonik asit.

## 3.3. DENEYSEL YÖNTEM

### 3.3.1. Demir Oksit Nanopartikül Sentezi

Demir oksit nanopartikülleri, daha önce İlan İ. [34] tarafından kullanılan bir çöktürme yöntemiyle sentezlenmiştir. Demir oksit nanopartikülleri elde etmek için öncelikle 0,15 mol (24,33 gram) demir (III) klorüre 150 mL destile su eklenmiştir. Çözelti 15 dakika ultrasonik bir ses banyosunda tutularak tamamen çözünmesi sağlanmıştır. Daha sonra, stabilizör olarak çözeltiliye 150 mL etilen glikol eklenmiştir. Elde edilen çözeltiliye, çökeltici bir ajan olarak 1 M NaOH karışımının pH'ı 10-11 civarına gelene kadar damla damla eklenmiştir. NaOH eklenirken

karışım bir manyetik karıştırıcıda 350 rpm hızla devamlı olarak karıştırılmış ve renk değişim takip edilmiştir. Zaman ilerledikçe demir oksitin nanopartiküllerinin oluştuğunu gösteren kahve-siyah parçacıkların çöktüğü gözlemlenmiştir. Manyetik karıştırıcıda karıştırma işlemi 24 saat boyunca devam etmiş olup, 24 saatin sonunda karışım süzölmüştür. Elde edilen süzöntü, reaksiyona girmemiş bileşenleri uzaklaştırmak amacıyla etanol ve destile su ile yıkanmıştır. Daha sonra yıkanan süzöntü 105°C'lik bir etüvde 2 saat kurutulmuştur. Kurutma işlemi sonunda elde edilen katı nanotozlar havan ve tokmak yardımıyla iyice öğütölmüştür. Demir oksit sentezi sırasında gerçekleşen adımlar Şekil 3.4'de şematik olarak gösterilmiş olup, sentez sırasında gerçekleşen reaksiyonlar aşağıda sırasıyla gösterilmiştir:



**Şekil 3.4:** Kimyasal çöktürme yöntemi ile demir oksit nanopartiköl sentezi.

Demir oksit nanopartikölle, çeşitli analiz yöntemlele (SEM, XRD ve FTIR) kullanılarak karakterize edilmiştir. Kimyasal bağ analizi ve fonksiyonel grupların belirlenmesi için Fourier transform kızılötesi (FTIR) spektroskopisi (PerkinElmer Spectrum 100), metal oksitlerin morfolojisini görüntölemek için SEM (Zeiss EVO LS10), yapısal özelliklerini ve partiköl boyutunu belirlemek için X-ışını kırınımı (XRD, Rigaku D/Max-2200/PC analizlele yapılmıştır.

### 3.3.2. Adsorpsiyon Yöntemi

Sentezlenen demir oksit nanopartiküller kullanılarak organik asitlerin (formik asit, asetik asit ve propiyonik asit) adsorpsiyon deneyleri bir çalkalamalı su banyosunda (Nüve ST 30) gerçekleştirilmiştir. Çalkalama hızı 150 rpm'dir. Adsorpsiyon işlemi tamamlandıktan sonra demir oksit nanopartikülleri filtrasyon yöntemi ile çözülden uzaklaştırılmıştır. Adsorpsiyon öncesi ve sonrasında çözeltilerdeki asit konsantrasyonları, Schott Titroline Easy Modül 2 otomatik titratör kullanarak NaOH titrasyon metodu ile hesaplanmıştır. Adsorpsiyon kapasitesi ( $q_e$ ,  $\text{mg.g}^{-1}$ ) adsorban tarafından adsorbe edilen madde miktarı olarak tanımlanır ve adsorpsiyon sonrasında adsorpsiyon kapasitesi aşağıdaki denklem kullanılarak hesaplanmıştır:

$$q_e = \left[ \frac{(C_0 - C_e)}{M} \right] * V \quad (3.3)$$

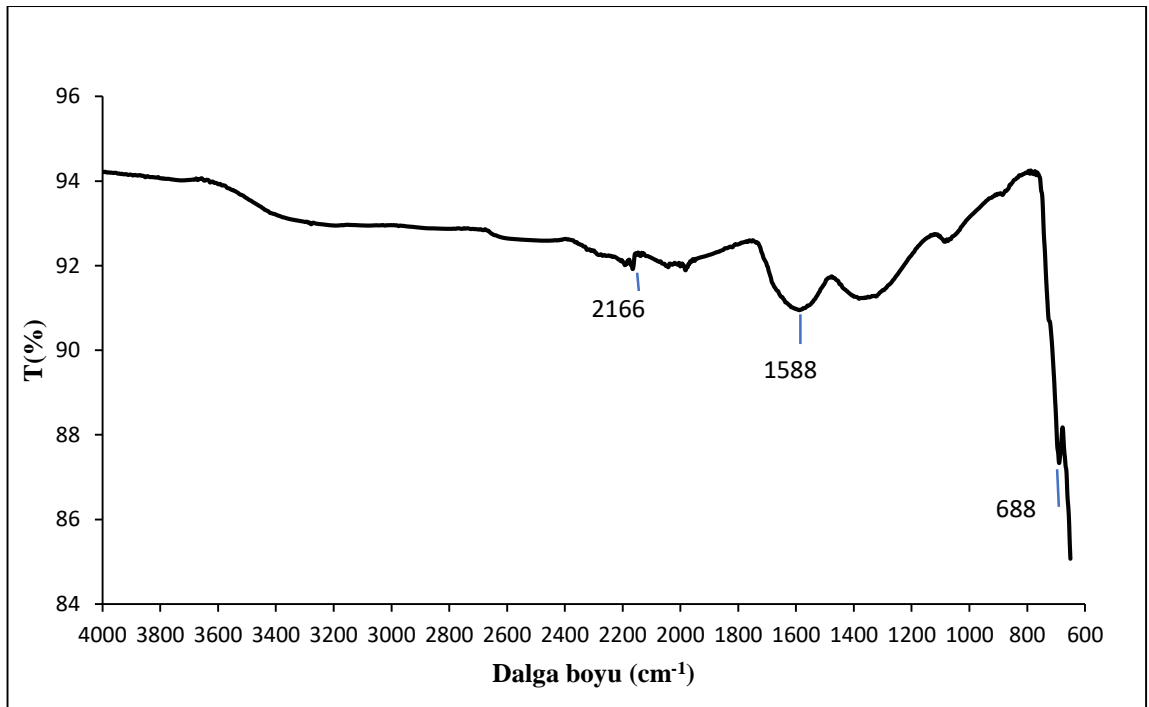
Adsorpsiyon kapasitesini ifade eden denklem (3.3)'de  $C_0$  ( $\text{mg.L}^{-1}$ ) kullanılan organik asitlerin başlangıç konsantrasyonunu,  $M$  (g) demir oksit nanopartikül miktarını,  $C_e$  ( $\text{mg.L}^{-1}$ ) organik asit çözeltisinin denge konsantrasyonunu ve  $V$  (L) kullanılan organik asit çözeltisinin hacmini ifade etmektedir.

## 4. BULGULAR

Sentezlenen demir oksit nanopartiküllerinin karakterizasyonu çeşitli görüntüleme yöntemleri kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Bu karakterizasyon, FTIR, XRD ve SEM yöntemleri ile gerçekleştirilmiş ve analiz sonuçları bu bölümde sunulmuştur. Daha sonra demir oksit nanopartikülleri kullanılarak formik asit, asetik asit ve propiyonik asit sulu çözeltilerinden adsorpsiyon yöntemiyle ayrılması incelenmiştir. Adsorpsiyon izoterm, kinetik ve termodinamik çalışmalarından elde edilen sonuçlar bu bölümde sunulmuştur.

### 4.1. DEMİR OKSİT NANOPARTİKÜL KARAKTERİZASYONU

Demir oksit nanopartiküllerin karakterizasyonu FTIR, XRD ve SEM analizleri ile gerçekleştirilmiştir. Demir oksit nanopartiküllere ait FTIR sonuçları Şekil 4.1'de gösterilmektedir. Şekil 4.1'de elde edilen pikler incelendiğinde, yaklaşık  $2166\text{ cm}^{-1}$  ve  $1588\text{ cm}^{-1}$  deki pikler  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ' in yüzeyindeki su moleküllerindeki hidroksil grubunu,  $688\text{ cm}^{-1}$ 'deki bant Fe-O bağı temsil etmektedir [21,34].

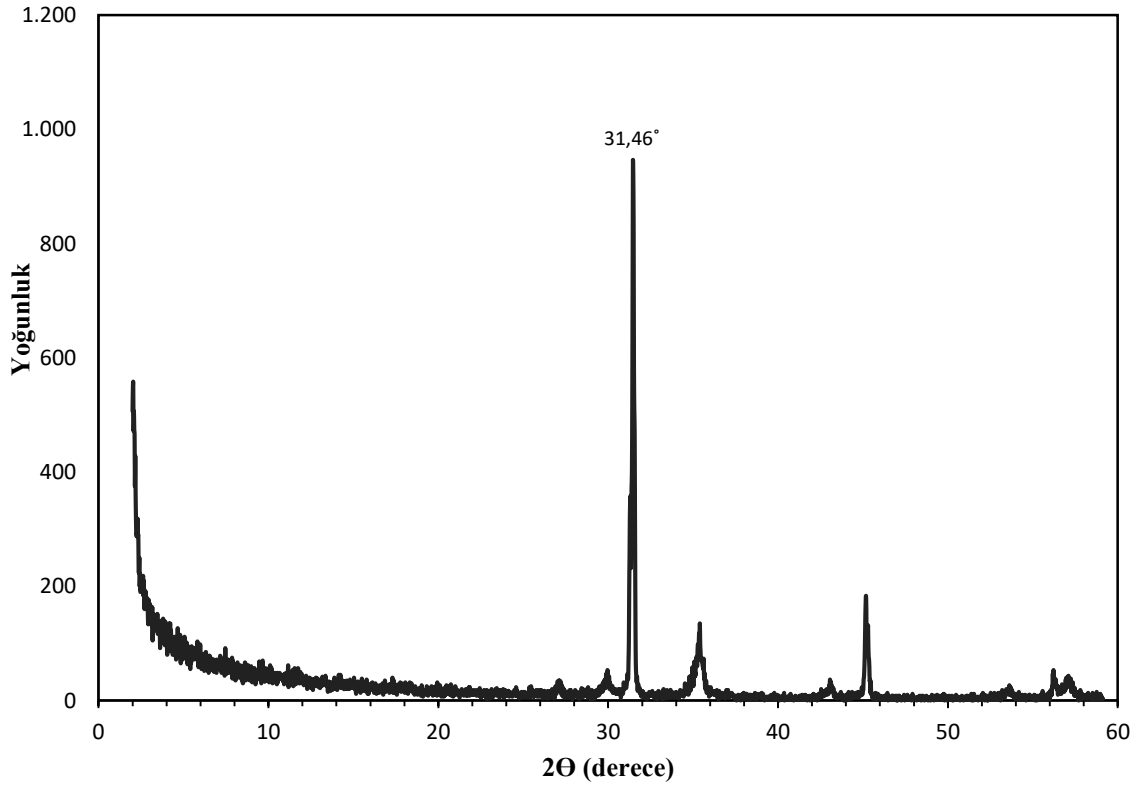


Şekil 4.1: Demir oksit nanopartiküllerinin FTIR sonuçları.

Şekil 4.2’de demir oksit partiküllerinin XRD sonuçları görülmektedir. Analiz  $2\theta$ ’da  $20-60^\circ$  aralığında  $2^\circ$  dakika<sup>-1</sup> tarama hızında Cu X-ışını radyasyonu ( $\lambda = 0,15406$  nm) kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Uygulanan akım gerilimi 30 mA ve hızlandırma gerilimi 40 kV’dır. Demir oksit partiküllerin ortalama partikül boyutu Debye-Scherrer denklemi kullanarak hesaplanmıştır [22, 34].

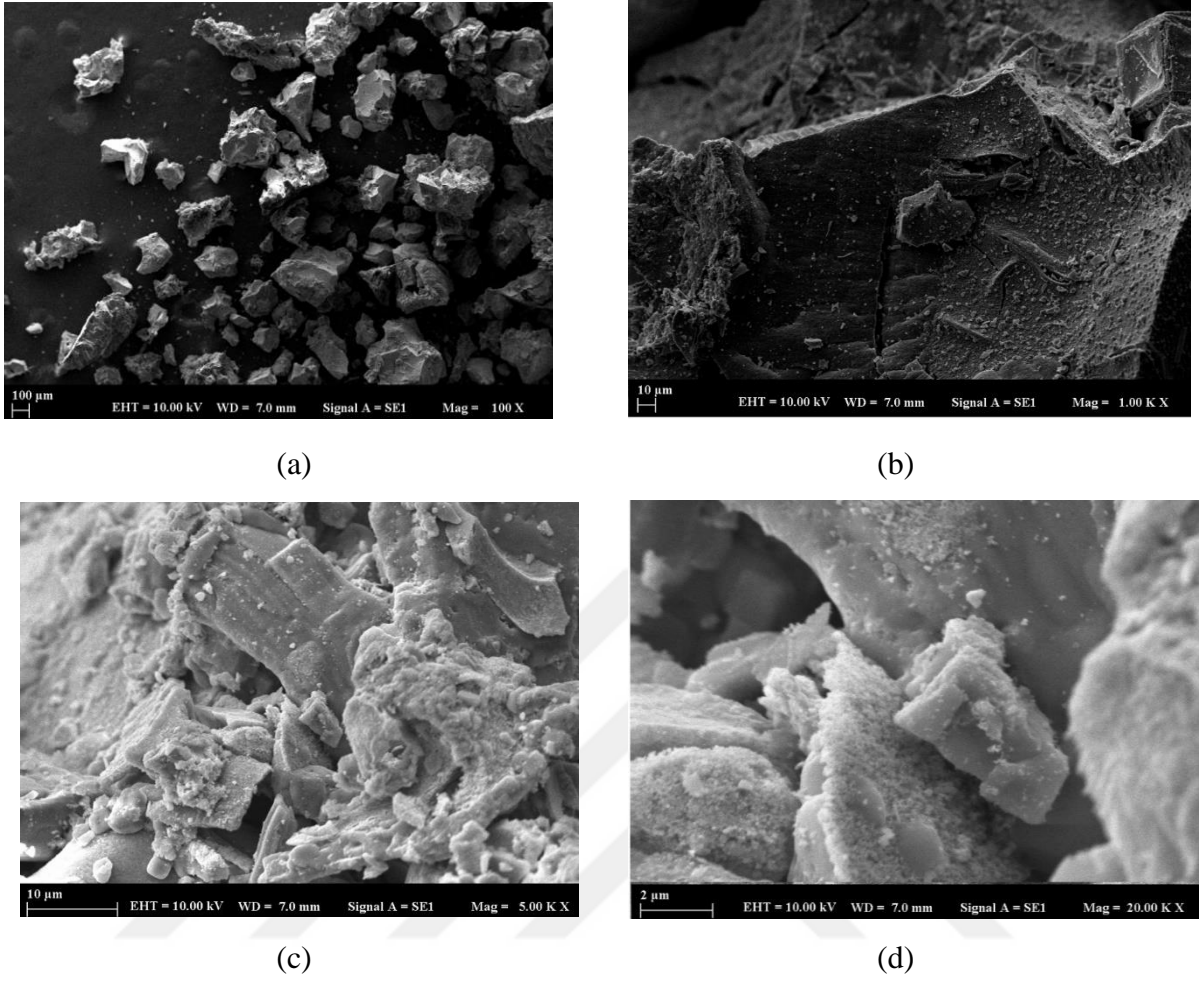
$$D = \frac{k\lambda}{\beta \cos\theta} \quad (4.1)$$

Bu denklemde,  $\lambda$ , X-ışını radyasyon dalga boyunu ( $\lambda = 0,15406$  nm); k, Debye-Scherrer sabitini ( $k=0,9$ );  $\theta$  radyan cinsinden Bragg açısını;  $\beta$ , en yoğun pikin yarı maksimumundaki tam genişliği (FWHM, full width at half maximum) göstermektedir. Debye-Scherrer denklemi yardımıyla en yoğun elde edilen pik değerinden ( $31,46^\circ$ ) demir oksit partikül boyutu 56,5 nm olarak hesaplanmıştır. Böylece sentezlenen demir oksitin nano yapıları olduğu doğrulanmıştır.



Şekil 4.2: Demir oksit partiküllerinin XRD sonuçları.

Demir oksitin yüzey morfoloji görüntüleri SEM analizi ile farklı mag değerlerinde (100 X, 1,00 KX, 5,00 KX, ve 20,00 KX) görüntülenmiş olup, Şekil 4.3’te gösterilmiştir.



**Şekil 4.3:** Demir oksit nanopartiküllerin farklı mag değerlerinde (a) 100 X (b) 1,00 KX (c) 5,00 KX (d) 20,00 KX SEM görüntüleri.

#### 4.2. ORGANİK ASİT ADSORPSİYONU

Adsorpsiyon denemelerinde ilk olarak, her bir organik asit için adsorpsiyon denge süreleri belirlenmiştir. Daha sonra adsorpsiyon denge süreleri kullanılarak farklı başlangıç asit konsantrasyonları için denemeler yapıp, asit konsantrasyonunun adsorpsiyon kapasitesine olan etkisi incelenmiştir. Daha sonra farklı demir oksit nanopartikül miktarlarının adsorpsiyon üzerindeki etkisi gözlemlenerek optimum adsorban miktarı belirlenmiştir. Son olarak, tüm bu optimum koşullarda farklı sıcaklıklarda denemeler yapılarak sıcaklığın adsorpsiyon üzerindeki etkisi incelenmiştir.

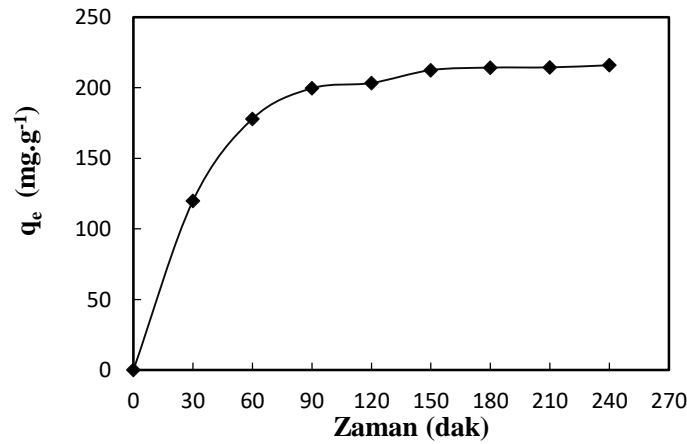
#### 4.2.1. Formik Asit Adsorpsiyonu

##### 4.2.1.1. Optimum Sürenin Belirlenmesi

Formik asitin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunun dengeye gelme süresini tespit etmek amacıyla, 0,05 g demir oksit nanopartikül ile %9,95'lik formik asit çözeltisinden 5 mL alınarak 25 °C'de adsorpsiyon işlemi gerçekleştirilmiştir. Denemeler sırasıyla 30, 60, 90, 120, 150, 180, 210 ve 240 dakika süreyle yapılmıştır. Denemelere ait alınan numuneler volumetrik NaOH titrasyon metodu ile analiz edilerek formik asit konsantrasyonu tespit edilmiştir. Denemelere ait sonuçlara Tablo 4.1'de ve Şekil 4.4'te yer verilmiştir. Tablo 4.1 ve Şekil 4.4 incelendiğinde, formik asit adsorpsiyonu ilk 90 dakikaya kadar hızla arttığı ve 180 dakika sonunda denge değerine ulaştığı görülmektedir. Bu sebeple, optimum süre 180 dakika olarak belirlenmiştir.

**Tablo 4.1:** Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda temas süresinin etkisine ait deneysel veriler.

Zaman (dk)	Başlangıç Asit Kons. (mol/L)	Başlangıç Asit Kons. (%w/w)	Başlangıç Asit Kons. (g/L)	Denge Asit Kons. (mol/L)	Denge Asit Kons. (g/L)	Adsorbe Olan Asit Miktarı (mg/g)	Uzaklaştırılan Asit Yüzdesi (%)
30	2,16	9,95	99,51	2,1373	98,36	119,75	1,16
60	2,16	9,95	99,51	2,1249	97,79	177,85	1,73
90	2,16	9,95	99,51	2,1202	97,57	199,53	1,95
120	2,16	9,95	99,51	2,1236	97,73	203,26	1,79
150	2,16	9,95	99,51	2,1210	97,61	212,41	1,91
180	2,16	9,95	99,51	2,1180	97,47	214,18	2,05
210	2,16	9,95	99,51	2,1145	97,31	214,34	2,21
240	2,16	9,95	99,51	2,1154	97,35	215,86	2,17



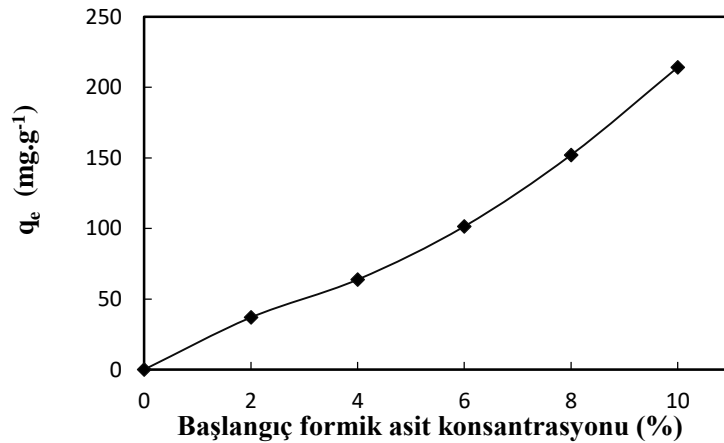
**Şekil 4.4:** Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda temas süresinin etkisi. Deneysel koşullar: Başlangıç formik asit konsantrasyonu: %9,95 (w/w); Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanopartikül miktarı: 0,05 g; Sıcaklık: 25°C.

#### 4.2.1.2. Formik Asit Konsantrasyonu Değişiminin Adsorpsiyona Etkisi

Formik asitin başlangıç konsantrasyonunun değişiminin adsorpsiyona olan etkisini gözlemlemek için yaklaşık %2, %4, %6, %8 ve %10'luk olarak hazırlanan formik asit çözeltilerinden 5 mL alınarak 0,05 g demir oksit nanopartikülleri ile optimum sürede (180 dakika) ve 25 °C'de adsorpsiyon işlemi gerçekleştirilmiştir. Bu denemelere ait sonuçlara Tablo 4.2'de ve Şekil 4.5'te yer verilmiştir. Sonuçlar incelendiğinde, formik asit başlangıç konsantrasyonu arttıkça Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanopartiküllerinin adsorbe ettiği formik asit miktarının arttığı gözlemlenmiştir.

**Tablo 4.2:** Formik asidin başlangıç asit konsantrasyon değişiminin demir oksit adsorpsiyonu üzerindeki etkisine ait deneysel veriler.

Başlangıç Asit Kons. (mol/L)	Başlangıç Asit Kons. (%w/w)	Başlangıç Asit Kons. (g/L)	Denge Asit Kons. (mol/L)	Denge Asit Kons. (g/L)	Adsorbe Olan Asit Miktarı (mg/g)	Uzaklaştırılan Asit Yüzdesi (%)
0,44	2,06	20,60	0,4396	20,23	36,90	1,78
0,88	4,05	40,50	0,8663	39,87	63,75	1,57
1,30	6,00	60,00	1,2818	58,99	101,42	1,69
1,77	8,15	81,50	1,7380	79,98	152,06	1,86
2,16	9,95	99,51	2,1180	97,47	214,18	2,05



**Şekil 4.5:** Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda asit konsantrasyonunun adsorpsiyon üzerindeki etkisi. Deneysel koşullar: Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanopartikül miktarı: 0,05 g; Temas süresi: 180 dakika; Sıcaklık: 25 °C.

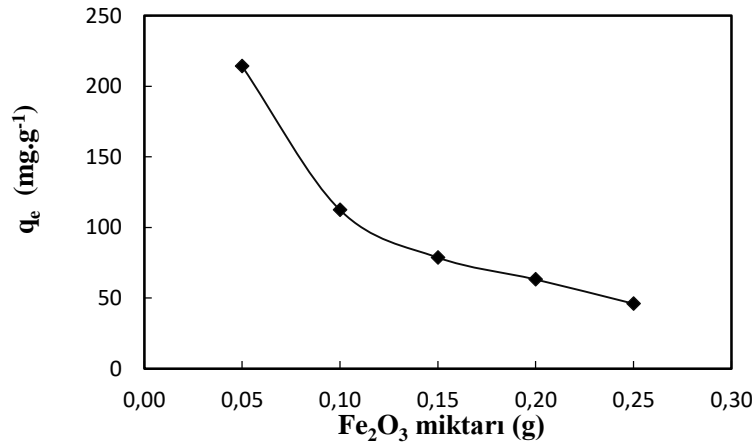
#### 4.2.1.3. Nanopartikül Miktarının Adsorpsiyona Etkisi

Farklı miktarlarda demir oksit nanopartikülleri kullanılarak, nanopartikül miktarının formik asit adsorpsiyona etkisi incelenmiştir. Bu amaçla, sırasıyla 0,05; 0,10; 0,15; 0,20 ve 0,25 g demir oksit nanopartikül ile %9,95'lik olarak hazırlanan formik asit çözeltilerinden 5 mL alınarak 180 dakikada ve 25 °C'de adsorpsiyon prosesi yürütülmüştür. Denemelere ait sonuçlara Tablo

4.3'te ve Şekil 4.6'da yer verilmiştir. Sonuçlar incelendiğinde, demir oksit nanopartikül miktarı ile adsorbe olan formik asit miktarının ters orantılı olduğu görülmektedir. Nanopartikül miktarı arttıkça adsorbe olan formik asit miktarı azalmaktadır. Bu sebeple optimum nanopartikül miktarı 0,05 g olarak bulunmuştur.

**Tablo 4.3:** Demir oksit nanopartikül miktarının formik asit adsorpsiyonu üzerindeki etkisine ait veriler.

Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Miktarı (g)	Başlangıç Asit Kons. (mol/L)	Başlangıç Asit Kons. (%w/w)	Başlangıç Asit Kons. (g/L)	Denge Asit Kons. (mol/L)	Denge Asit Kons. (g/L)	Adsorbe Olan Asit Miktarı (mg/g)	Uzaklaştırılan Asit Yüzdesi (%)
0,05	2,16	9,95	99,51	9,74	97,47	214,18	2,05
0,10	2,16	9,95	99,51	9,72	97,23	112,41	2,30
0,15	2,16	9,95	99,51	9,71	97,14	78,68	2,38
0,20	2,16	9,95	99,51	9,69	96,95	63,14	2,57
0,25	2,16	9,95	99,51	9,72	97,20	45,99	2,32



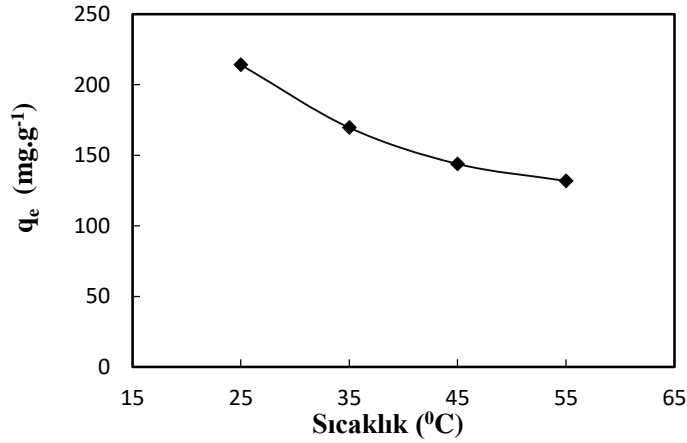
**Şekil 4.6:** Demir oksit nanopartikül miktarının formik asit adsorpsiyonuna etkisi. Deneysel koşullar: Başlangıç formik asit konsantrasyonu: %9,95 (w/w); Adsorpsiyon süresi: 180 dakika; Sıcaklık: 25°C.

#### 4.2.1.4. Sıcaklık Değişiminin Adsorpsiyona Etkisi

Sıcaklık değişiminin adsorpsiyona etkisini incelemek amacıyla 0,05 g demir oksit nanopartikülleri ile %9,95'lik hazırlanan formik asit çözeltisinden 5 mL alınarak sırasıyla 25 °C, 35 °C, 45 °C ve 55 °C sıcaklıklarda optimum sürede denemeler gerçekleştirilmiştir. Bu denemelere ait sonuçlara Tablo 4.4'te ve Şekil 4.7'de yer verilmiştir. Sonuçlar incelendiğinde, adsorpsiyon kapasitesinin sıcaklık ile ters orantılı olduğu ve 25 °C'de maksimum adsorpsiyon kapasitesi değerinin elde edildiği ve sonrasında sıcaklık arttıkça adsorpsiyon kapasitesi değerlerinin azaldığı görülmüştür.

**Tablo 4.4:** Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisine ait veriler.

Sıcaklık (°C)	Başlangıç Asit Kons. (mol/L)	Başlangıç Asit Kons. (%w/w)	Başlangıç Asit Kons. (g/L)	Denge Asit Kons. (mol/L)	Denge Asit Kons. (g/L)	Adsorbe Olan Asit Miktarı (mg/g)	Uzaklaştırılan Asit Yüzdesi (%)
25	2,16	9,95	99,51	2,118	97,47	214,18	2,05
35	2,16	9,95	99,51	2,125	97,80	169,63	1,72
45	2,16	9,95	99,51	2,130	98,00	143,88	1,51
55	2,16	9,95	99,51	2,133	98,16	131,81	1,36

**Şekil 4.7:** Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisi.

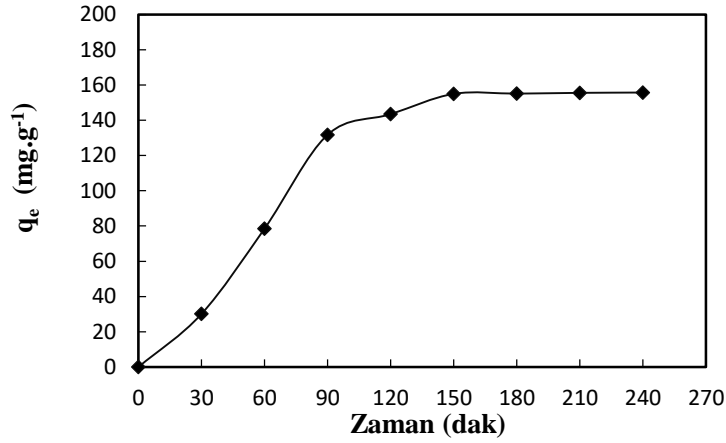
## 4.2.2. Asetik Asit Adsorpsiyonu

### 4.2.2.1. Optimum Sürenin Belirlenmesi

Asetik asidin, demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunun dengeye gelme süresini tespit etmek amacıyla, 0,05 g demir oksit nanopartikülleri ile %10,03'lik asetik asit çözeltisinden 5 mL alınarak 25 °C'de adsorpsiyon işlemi gerçekleştirilmiştir. Denemeler sırasıyla 30, 60, 90, 120, 150, 180, 210 ve 240 dakika süreyle yapılmıştır. Denemelere ait alınan numuneler volumetrik NaOH titrasyon metodu ile analiz edilerek asetik asit konsantrasyonu tespit edilmiştir. Denemelere ait sonuçlara Tablo 4.5'te ve Şekil 4.8'de yer verilmiştir. Tablo 4.5 ve Şekil 4.8 incelendiğinde, asetik asit adsorpsiyonu ilk 150 dakikaya kadar hızla arttığı ve 180 dakika sonunda denge değerine ulaştığı görülmektedir. Bu sebeple, optimum süre 180 dakika olarak belirlenmiştir.

**Tablo 4.5:** Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda temas süresinin adsorpsiyon üzerindeki etkisine ait deneysel veriler.

Zaman (dk)	Başlangıç Asit Kons. (mol/L)	Başlangıç Asit Kons. (%w/w)	Başlangıç Asit Kons. (g/L)	Denge Asit Kons. (mol/L)	Denge Asit Kons. (g/L)	Adsorbe Olan Asit Miktarı (mg/g)	Uzaklaştırılan Asit Yüzdesi (%)
30	1,67	10,03	100,28	1,712	99,97	30,11	0,31
60	1,67	10,03	100,28	1,665	99,50	78,49	0,78
90	1,67	10,03	100,28	1,657	98,91	131,71	1,37
120	1,67	10,03	100,28	1,647	98,80	143,41	1,47
150	1,67	10,03	100,28	1,645	98,75	154,93	1,52
180	1,67	10,03	100,28	1,644	98,72	155,08	1,55
210	1,67	10,03	100,28	1,644	98,72	155,51	1,56
240	1,67	10,03	100,28	1,644	98,71	155,69	1,57



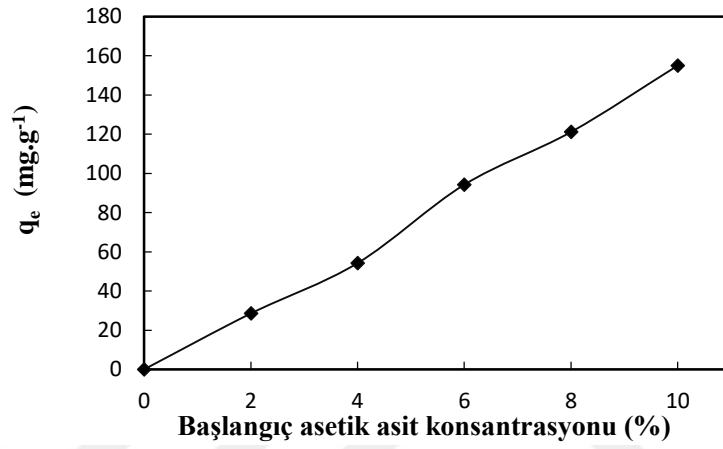
**Şekil 4.8:** Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda temas süresinin adsorpsiyon üzerindeki etkisi. Deneysel koşullar: Başlangıç asetik asit konsantrasyonu %10,28 (w/w); Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanopartikül miktarı 0,05 g; Sıcaklık: 25 °C.

#### 4.2.2.2. Asetik Asit Konsantrasyonu Değişiminin Adsorpsiyona Etkisi

Asetik asidin başlangıç konsantrasyonu değişiminin adsorpsiyona olan etkisini gözlemlemek için yaklaşık %2, %4, %6, %8 ve %10'luk olarak hazırlanan asetik asit çözeltilerinden 5 mL alınarak 0,05 g demir oksit nanopartikülleri ile optimum sürede (180 dakika) ve 25 °C'de adsorpsiyon işlemi gerçekleştirilmiştir. Bu denemelere ait sonuçlara Tablo 4.6'da ve Şekil 4.9'da yer verilmiştir. Sonuçlar incelendiğinde, asetik asit başlangıç konsantrasyonu arttıkça demir oksit nanopartiküllerinin adsorbe ettiği asetik asit miktarının arttığı gözlemlenmiştir.

**Tablo 4.6:** Asetik asidin başlangıç asit konsantrasyon değişiminin demir oksit adsorpsiyonu üzerinde etkisine ait deneysel veriler.

Başlangıç Asit Kons. (mol/L)	Başlangıç Asit Kons. (%w/w)	Başlangıç Asit Kons. (g/L)	Denge Asit Kons. (mol/L)	Denge Asit Kons. (g/L)	Adsorbe Olan Asit Miktarı (mg/g)	Uzaklaştırılan Asit Yüzdesi (%)
0,35	2,12	21,20	0,348	20,92	28,54	1,34
0,67	4,04	40,40	0,664	39,86	54,24	1,34
1,01	6,07	60,70	0,995	59,76	94,26	1,55
1,33	7,96	79,60	1,305	78,39	121,17	1,52
1,67	10,03	100,28	1,644	98,72	155,08	1,55



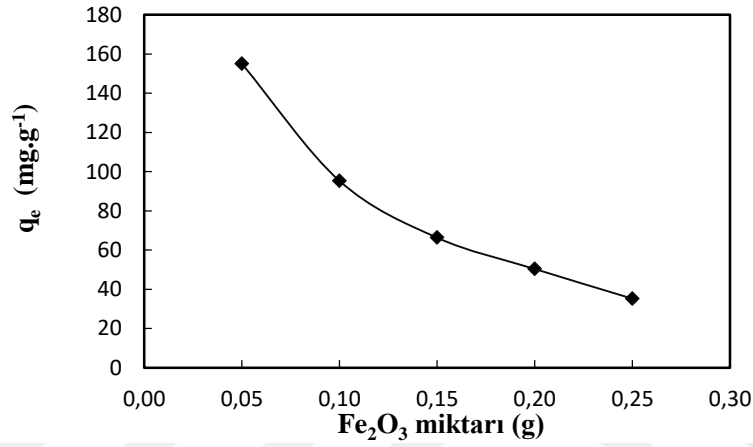
**Şekil 4.9:** Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda asit konsantrasyonunun adsorpsiyon üzerindeki etkisi. Deneysel koşullar: Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanopartikül miktarı: 0,05 g; Adsorpsiyon süresi: 180 dakika; Sıcaklık: 25 °C.

#### 4.2.2.3. Nanopartikül Miktarının Adsorpsiyona Etkisi

Farklı miktarlarda demir oksit nanopartikülleri kullanılarak, demir oksit adsorban miktarının asetik asit adsorpsiyonuna etkisi incelenmiştir. Bu amaçla, sırasıyla 0,05; 0,10; 0,15; 0,20 ve 0,25 g demir oksit nanopartikül ile %10,03'lük olarak hazırlanan asetik asit çözeltisinden 5 mL alınarak 180 dakikada ve 25 °C'de adsorpsiyon prosesi yürütülmüştür. Denemelere ait sonuçlara Tablo 4.7'de ve Şekil 4.10'da yer verilmiştir. Sonuçlar incelendiğinde, demir oksit nanopartikül miktarı ile adsorbe olan asetik asit miktarının ters orantılı olduğu görülmektedir. Nanopartikül miktarı arttıkça adsorbe olan asetik asit miktarı azalmaktadır. Bu sebeple optimum nanopartikül miktarı 0,05 g olarak bulunmuştur.

**Tablo 4.7:** Demir oksit nanopartikül miktarının asetik asit adsorpsiyonu üzerindeki etkisine ait veriler.

CaO <sub>2</sub> nanopartikül (g)	Başlangıç Asit Kons. (mol/L)	Başlangıç Asit Kons. (%w/w)	Başlangıç Asit Kons. (g/L)	Denge Asit Kons. (mol/L)	Denge Asit Kons. (g/L)	Adsorbe Olan Asit Miktarı (mg/g)	Uzaklaştırılan Asit Yüzdesi (%)
0,05	1,67	10,03	100,28	1,644	98,72	155,08	1,55
0,10	1,67	10,03	100,28	1,639	98,40	95,34	1,88
0,15	1,67	10,03	100,28	1,637	98,29	66,36	1,98
0,20	1,67	10,03	100,28	1,636	98,26	50,42	2,01
0,25	1,67	10,03	100,28	1,641	98,52	35,28	1,76

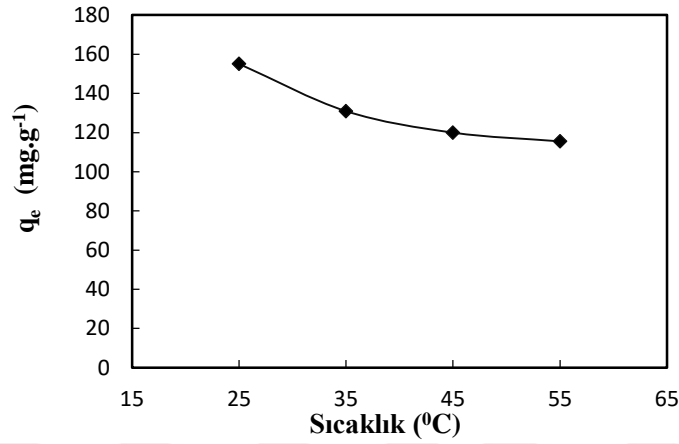
**Şekil 4.10:** Demir oksit nanopartikül miktarının asetik asit adsorpsiyonuna etkisi. Deneysel koşullar: Başlangıç asetik asit konsantrasyonu: %10,03 (w/w); Adsorpsiyon süresi: 180 dakika; Sıcaklık: 25 °C.

#### 4.2.2.4. Sıcaklık Değişiminin Adsorpsiyona Etkisi

Sıcaklık değişiminin adsorpsiyona etkisini incelemek amacıyla 0,05 g demir oksit nanopartikülleri ile %10,03'lük hazırlanan asetik asit çözeltisinden 5 mL alınarak sırasıyla 25 °C, 35 °C, 45 °C ve 55 °C sıcaklıklarda optimum sürede denemeler gerçekleştirilmiştir. Bu denemelere ait sonuçlara Tablo 4.8 ve Şekil 4.11'de yer verilmiştir. Sonuçlar incelendiğinde, adsorpsiyon kapasitesinin sıcaklık ile ters orantılı olduğu ve 25 °C'de maksimum adsorpsiyon kapasitesi değerinin elde edildiği ve sonrasında sıcaklık arttıkça adsorpsiyon kapasitesi değerlerinin azaldığı görülmüştür.

**Tablo 4.8:** Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisine ait veriler.

Sıcaklık (°C)	Başlangıç Asit Kons. (mol/L)	Başlangıç Asit Kons. (%w/w)	Başlangıç Asit Kons. (g/L)	Denge Asit Kons. (mol/L)	Denge Asit Kons. (g/L)	Adsorbe Olan Asit Miktarı (mg/g)	Uzaklaştırılan Asit Yüzdesi (%)
25	1,67	10,03	100,28	1,644	98,72	155,08	1,55
35	1,67	10,03	100,28	1,648	98,95	130,93	1,32
45	1,67	10,03	100,28	1,650	99,09	119,94	1,19
55	1,67	10,03	100,28	1,651	99,12	115,48	1,15

**Şekil 4.11:** Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisi.

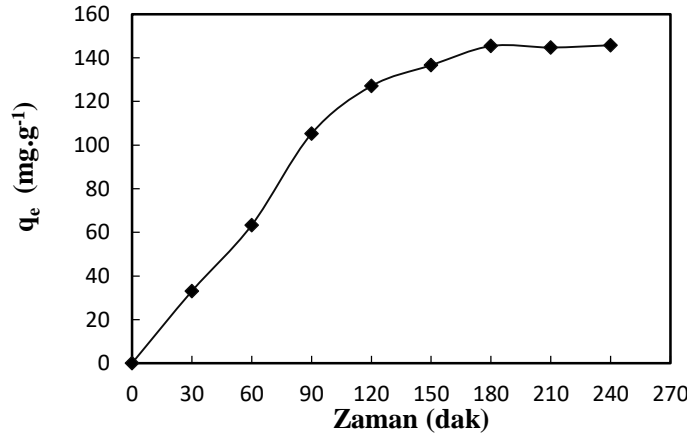
### 4.2.3. Propiyonik Asit Adsorpsiyonu

#### 4.2.3.1. Optimum Sürenin Belirlenmesi

Propiyonik asitin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunun dengeye gelme süresini tespit etmek amacıyla, 0,05 g demir oksit nanopartikülleri ile %9,97'lik propiyonik asit çözeltisinden 5 mL alınarak 25 °C'de adsorpsiyon işlemi gerçekleştirilmiştir. Denemeler sırasıyla 30, 60, 90, 120, 150, 180, 210 ve 240 dakika süreyle yapılmıştır. Denemelere ait alınan numuneler volumetrik NaOH titrasyon metodu ile analiz edilerek propiyonik asit konsantrasyonu tespit edilmiştir. Denemelere ait sonuçlara Tablo 4.9'da ve Şekil 4.12'de yer verilmiştir. Tablo 4.9 ve Şekil 4.12 incelendiğinde, propiyonik asit adsorpsiyonu ilk 150 dakikaya kadar arttığı ve 180 dakika sonunda denge değerine ulaştığı görülmektedir. Bu sebeple, optimum süre 180 dakika olarak belirlenmiştir.

**Tablo 4.9:** Propiyonik asitin demir oksit nanopartikül ile adsorpsiyonunda temas süresinin adsorpsiyon üzerindeki etkisine ait deneysel veriler.

Zaman (dk)	Başlangıç Asit Kons. (mol/L)	Başlangıç Asit Kons. (%w/w)	Başlangıç Asit Kons. (g/L)	Denge Asit Kons. (mol/L)	Denge Asit Kons. (g/L)	Adsorbe Olan Asit Miktarı (mg/g)	Uzaklaştırılan Asit Yüzdesi (%)
30	1,35	9,97	99,70	1,341	99,36	33,03	0,34
60	1,35	9,97	99,70	1,337	99,04	63,28	0,66
90	1,35	9,97	99,70	1,331	98,60	105,22	1,11
120	1,35	9,97	99,70	1,328	98,39	127,06	1,31
150	1,35	9,97	99,70	1,327	98,31	136,62	1,39
180	1,35	9,97	99,70	1,325	98,18	145,42	1,53
210	1,35	9,97	99,70	1,326	98,26	144,73	1,44
240	1,35	9,97	99,70	1,326	98,20	145,76	1,51



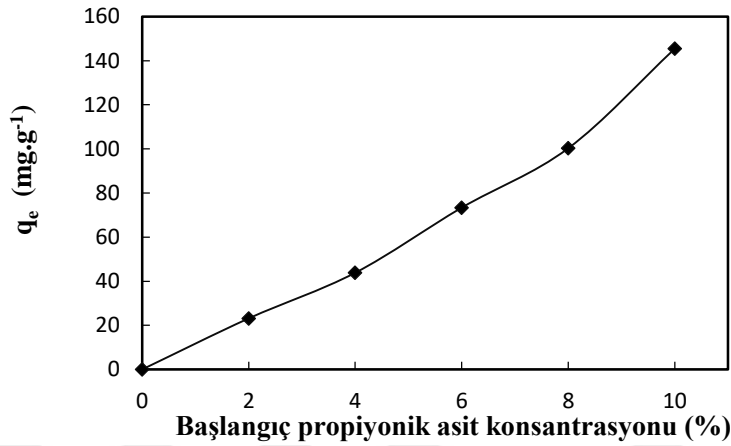
**Şekil 4.12:** Propiyonik asidin demir oksit partikülleri ile adsorpsiyonunda temas süresinin adsorpsiyon üzerindeki etkisi. Deneysel koşullar: Başlangıç propiyonik asit konsantrasyonu: %9,97 (w/w); demir oksit nanopartikül miktarı: 0,05 g; Sıcaklık: 25 °C.

#### 4.2.3.2. Başlangıç Asit Konsantrasyonu Değişiminin Adsorpsiyona Etkisi

Propiyonik asitin başlangıç konsantrasyonunun değişiminin adsorpsiyona olan etkisini gözlemlemek için yaklaşık %2, %4, %6, %8 ve %10'luk olarak hazırlanan asit çözeltilerinden 5 mL alınarak 0,05 g demir oksit nanopartikülleri ile optimum sürede (180 dakika) ve 25 °C'de adsorpsiyon işlemi gerçekleştirilmiştir. Bu denemelere ait sonuçlara Tablo 4.10'da ve Şekil 4.13'de yer verilmiştir. Sonuçlar incelendiğinde, propiyonik asit başlangıç konsantrasyonu arttıkça demir oksit nanopartiküllerinin adsorbe ettiği propiyonik asit miktarının arttığı dolayısıyla adsorpsiyon kapasitesinin arttığı gözlemlenmiştir. Asetik asidin başlangıç asit konsantrasyon değişiminin demir oksit adsorpsiyonu üzerinde etkisine ait deneysel veriler.

**Tablo 4.10:** Propiyonik asidin başlangıç asit konsantrasyon değişiminin demir oksit adsorpsiyonu üzerinde etkisine ait deneysel veriler.

Başlangıç Asit Kons. (mol/L)	Başlangıç Asit Kons. (%w/w)	Başlangıç Asit Kons. (g/L)	Denge Asit Kons. (mol/L)	Denge Asit Kons. (g/L)	Adsorbe Olan Asit Miktarı (mg/g)	Uzaklaştırılan Asit Yüzdesi (%)
0,28	2,09	20,90	0,28	20,67	23,13	1,10
0,57	4,21	42,10	0,56	41,66	43,82	1,04
0,82	6,04	60,40	0,81	59,68	73,34	1,20
1,07	7,96	79,60	1,06	78,63	100,27	1,22
1,35	9,97	99,70	1,33	98,18	145,42	1,53



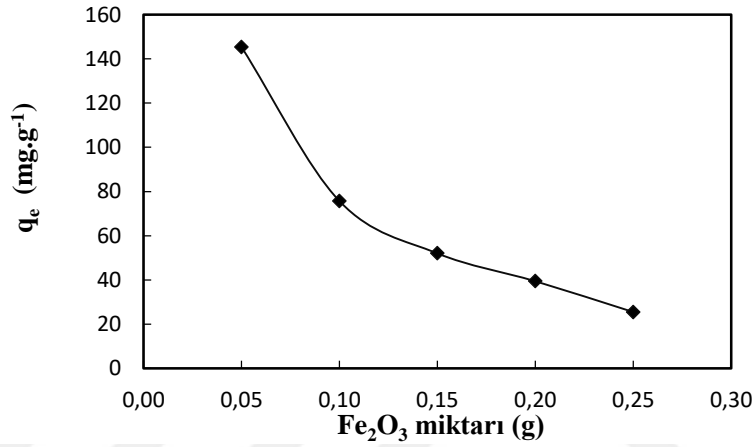
**Şekil 4.13 :** Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda asit konsantrasyonunun adsorpsiyon üzerindeki etkisi. Deneysel koşullar: Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanopartikül miktarı: 0,05 g; Adsorpsiyon süresi: 180 dakika; Sıcaklık: 25 °C.

#### 4.2.3.3. Nanopartikül Miktarının Adsorpsiyona Etkisi

Farklı miktarlarda demir oksit nanopartikülleri kullanılarak demir oksit adsorban miktarının propiyonik asit adsorpsiyonuna etkisi incelenmiştir. Bu amaçla, sırasıyla 0,05; 0,10; 0,15; 0,20 ve 0,25; demir oksit nanopartikül ile %9,97'lik olarak hazırlanan propiyonik asit çözeltisinden 5 mL alınarak 180 dakikada ve 25 °C'de adsorpsiyon prosesi yürütülmüştür. Denemelere ait sonuçlara Tablo 4.11'de ve Şekil 4.14'te yer verilmiştir. Sonuçlar incelendiğinde, demir oksit nanopartikül miktarı ile adsorbe olan propiyonik asit miktarının ters orantılı olduğu görülmektedir. Nanopartikül miktarı arttıkça adsorbe olan asetik asit miktarı azalmaktadır. Bu sebeple optimum nanopartikül miktarı 0,05 g olarak bulunmuştur.

**Tablo 4.11:** Demir oksit nanopartikül miktarının propiyonik asit adsorpsiyonu üzerindeki etkisine ait veriler.

Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> nanopartikül (g)	Başlangıç Asit Kons. (mol/L)	Başlangıç Asit Kons. (%w/w)	Başlangıç Asit Kons. (g/L)	Denge Asit Kons. (mol/L)	Denge Asit Kons. (g/L)	Adsorbe Olan Asit Miktarı (mg/g)	Uzaklaştırı lan Asit Yüzdesi (%)
0,05	1,35	9,97	99,70	1,325	98,18	145,42	1,53
0,10	1,35	9,97	99,70	1,325	98,13	75,74	1,58
0,15	1,35	9,97	99,70	1,325	98,13	52,09	1,58
0,20	1,35	9,97	99,70	1,324	98,12	39,48	1,59
0,25	1,35	9,97	99,70	1,329	98,42	25,56	1,28



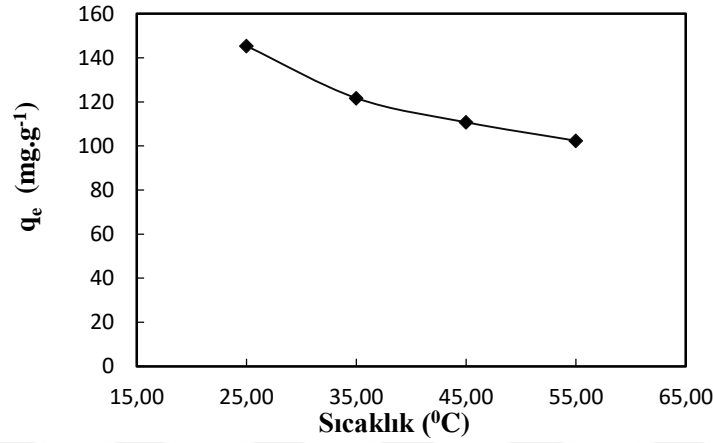
**Şekil 4.14:** Demir oksit nanopartikül miktarının propiyonik asit adsorpsiyonuna etkisi. Deneysel koşullar: Başlangıç propiyonik asit konsantrasyonu: %9,97 (w/w); Adsorpsiyon süresi: 180 dakika; Sıcaklık: 25 °C.

#### 4.2.3.4. Sıcaklık Değişiminin Adsorpsiyona Etkisi

Sıcaklık değişiminin adsorpsiyona etkisini incelemek amacıyla 0,05 g demir oksit nanopartikül ile %9,97'lik hazırlanan propiyonik asit çözeltisinden 5 mL alınarak sırasıyla 25 °C, 35 °C, 45 °C ve 55 °C optimum sürede denemeler gerçekleştirilmiştir. Bu denemelere ait sonuçlara Tablo 4.12'de ve Şekil 4.14'te yer verilmiştir. Sonuçlar incelendiğinde, adsorpsiyon kapasitesinin sıcaklık ile ters orantılı olduğu 25 °C'de maksimum adsorpsiyon kapasitesi değerinin elde edildiği ve sonrasında sıcaklık arttıkça adsorpsiyon kapasitesi değerlerinin azaldığı görülmüştür.

**Tablo 4.12:** Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisine ait veriler.

Sıcaklık (°C)	Başlangıç Asit Kons. (mol/L)	Başlangıç Asit Kons. (%w/w)	Başlangıç Asit Kons. (g/L)	Denge Asit Kons. (mol/L)	Denge Asit Kons. (g/L)	Adsorbe Olan Asit Miktarı (mg/g)	Uzaklaştırılan Asit Yüzdesi (%)
25	1,35	9,97	99,70	1,325	98,18	145,42	1,53
35	1,35	9,97	99,70	1,330	98,50	121,73	1,20
45	1,35	9,97	99,70	1,331	98,59	110,73	1,12
55	1,35	9,97	99,70	1,333	98,72	102,33	0,99



**Şekil 4.15:** Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisi.

### 4.3. ADSORPSİYON İZOTERMLERİ

#### 4.3.1. Formik Asite ait Adsorpsiyon İzotermi

Formik asidin demir oksit nanopartikül ile adsorpsiyonunun Langmuir, Freundlich ve Temkin izoterm modellerine ait sonuçları Tablo 4.13-4.15'te listelenmiş olup, bu sonuçlar kullanılarak çizilen lineer grafikler Şekil 4.16-4.18'de gösterilmiştir. Bu lineer grafiklerden  $R^2$  (regresyon katsayısı) değerleri ve izoterm model katsayıları hesaplanarak sonuçlar Tablo 4.16'da listelenmiştir. Tablo 4.16'da görüldüğü gibi, Langmuir ve Freundlich izoterm modelleri 0,9'un üzerinde  $R^2$  değerlerine sahiptir. Fakat, adsorpsiyon kapasitesini temsil eden Langmuir izoterm sabitinin ( $Q_0$ ) negatif elde edilmesi, yüksek bir  $R^2$  değerine sahip olmasına rağmen bu izoterm modelinin adsorpsiyon süresini tamamen temsil etmede yetersiz kaldığını anlamına gelir. Böylece, yüksek  $R^2$  değerine sahip Freundlich izoterm modelinin formik asidin demir oksit nanopartikülleri üzerindeki adsorpsiyon mekanizmasını açıklayan en uygun izoterm modeli olduğu söylenebilir. Freundlich izoterm modeli genellikle adsorban yüzeyindeki çok katmanlı adsorpsiyonu tanımlamak için kullanılır ve aktif adsorpsiyon bölgelerinin heterojen yüzey olduğunu varsayar [35].

**Tablo 4.13:** Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Langmuir izoterm modeline ait sonuçlar.

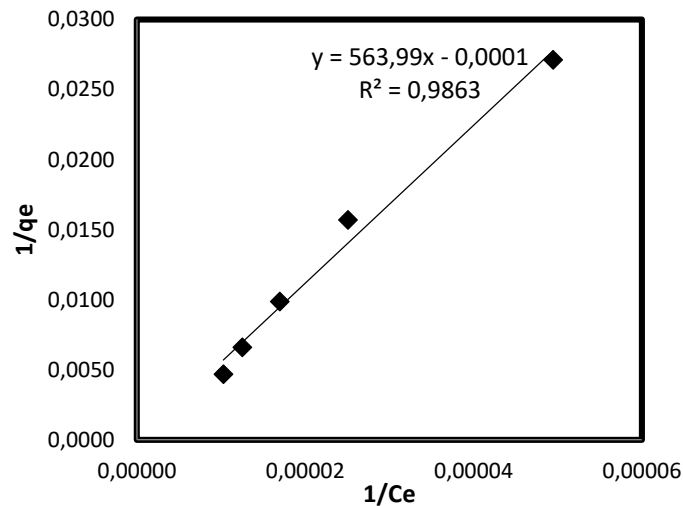
Başlangıç Asit Konsantrasyonu (mg/L)	C <sub>e</sub> (mg/L)	q <sub>e</sub> (mg/g)	1/ C <sub>e</sub> (L/mg)	1/q <sub>e</sub> (g/mg)
20600	20230	36,90	0,0000494	0,0271
40500	39870	63,75	0,0000251	0,0157
60000	58990	101,42	0,0000170	0,0099
81500	79980	152,06	0,0000125	0,0066
99510	97470	214,18	0,0000103	0,0047

**Tablo 4.14:** Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Freundlich izoterm modeline ait sonuçlar.

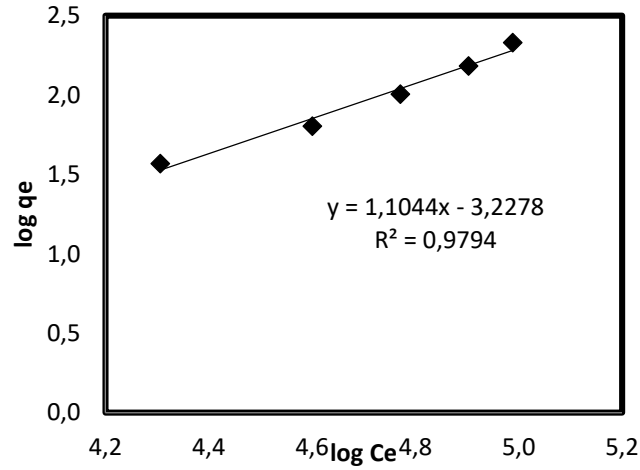
Başlangıç Asit Konsantrasyonu (mg/L)	C <sub>e</sub> (mg/L)	q <sub>e</sub> (mg/g)	log C <sub>e</sub>	log q <sub>e</sub>
20600	20230	36,90	4,3060	1,5670
40500	39870	63,75	4,6006	1,8045
60000	58990	101,42	4,7708	2,0061
81500	79980	152,06	4,9030	2,1820
99510	97470	214,18	4,9889	2,3308

**Tablo 4.15:** Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Temkin izoterm modeline ait sonuçlar.

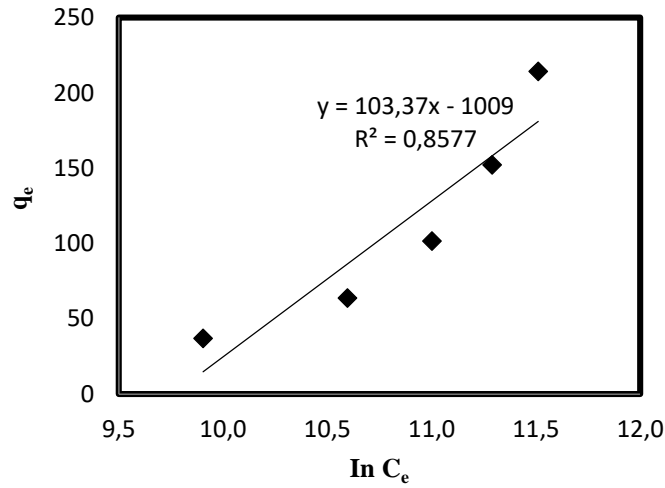
Başlangıç Asit Konsantrasyonu (mg/L)	C <sub>e</sub> (mg/L)	q <sub>e</sub> (mg/g)	ln C <sub>e</sub>
20600	20230	36,90	9,9035
40500	39870	63,75	10,5966
60000	58990	101,42	11,0021
81500	79980	152,06	11,2898
99510	97470	214,18	11,5120



**Şekil 4.16:** Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Langmuir izotermi.



Şekil 4.17: Formik asidin demir oksit nanopartikül ile adsorpsiyonunda Freundlich izotermi.



Şekil 4.18: Formik asidin demir oksit nanopartikül ile adsorpsiyonunda Temkin izotermi.

Tablo 4.16: Formik asidin demir oksit nanopartikül ile adsorpsiyonunda Langmuir, Freundlich ve Temkin izoterm sabitleri ve R<sup>2</sup> değerleri.

Langmuir sabitleri ve R <sup>2</sup> değerleri			Freundlich sabitleri ve R <sup>2</sup> değerleri			Temkin sabitleri ve R <sup>2</sup> değerleri			
Q <sub>0</sub>	K <sub>L</sub>	R <sup>2</sup>	K <sub>f</sub>	n	R <sup>2</sup>	B	K <sub>t</sub>	b <sub>t</sub>	R <sup>2</sup>
-10000	-1,77x10 <sup>-7</sup>	0,9863	5,91x10 <sup>-4</sup>	0,905	0,9794	103,37	5,77x10 <sup>-5</sup>	23,97	0,8577

#### 4.3.2. Asetik Asite ait Adsorpsiyon İzotermi

Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunun Langmuir, Freundlich ve Temkin izoterm modellerine ait sonuçları Tablo 4.17-4.19'da listelenmiş olup, bu sonuçlar kullanılarak çizilen lineer grafikler Şekil 4.19-4.21'de gösterilmiştir. Bu lineer grafiklerden

izoterm model katsayıları ve  $R^2$  (regresyon katsayısı) değerleri hesaplanarak sonuçlar Tablo 4.20'de listelenmiştir. Tablo 4.20'den görüldüğü Langmuir izoterm modeli en yüksek  $R^2$  değerine sahiptir. Fakat, adsorpsiyon kapasitesini temsil eden Langmuir izoterm sabitinin ( $Q_0$ ) negatif elde edilmesi, yüksek bir  $R^2$  değerine sahip olmasına rağmen bu izoterm modelinin adsorpsiyon süresini tamamen temsil etmede yetersiz kaldığını anlamına gelir. Böylece, yüksek  $R^2$  değerine sahip Freundlich izoterm modelinin formik asidin demir oksit nanopartikülleri üzerindeki adsorpsiyon mekanizmasını açıklayan en uygun izoterm modeli olduğu söylenebilir. Freundlich izoterm modeli genellikle adsorban yüzeyindeki çok katmanlı adsorpsiyonu tanımlamak için kullanılır ve aktif adsorpsiyon bölgelerinin heterojen yüzey olduğunu varsaymaktadır [35].

**Tablo 4.17:** Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Langmuir izoterm modeline ait sonuçlar.

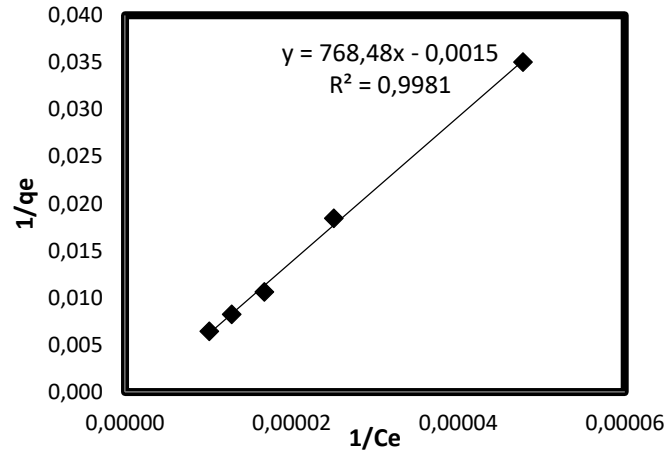
Başlangıç Asit Konsantrasyonu (mg/L)	$C_e$ (mg/L)	$q_e$ (mg/g)	$1/C_e$ (L/mg)	$1/q_e$ (g/mg)
21200	20920	28,54	0,0000478	0,0350
40400	39860	54,24	0,0000251	0,0184
60700	59760	94,26	0,0000167	0,0106
79600	78390	121,17	0,0000128	0,0083
100280	98720	155,08	0,0000101	0,0064

**Tablo 4.18:** Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Freundlich izoterm modeline ait sonuçlar.

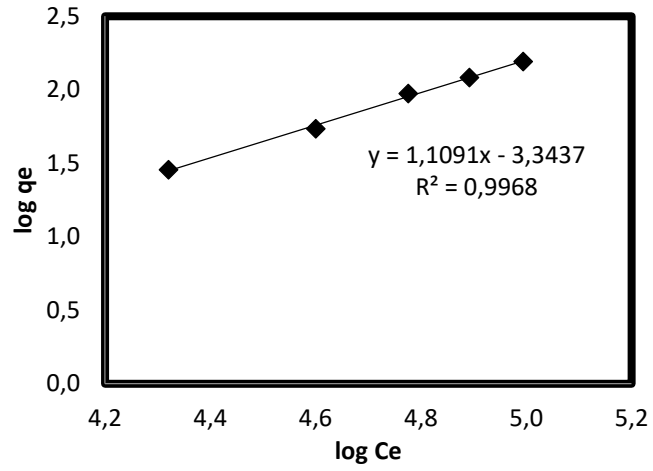
Başlangıç Asit Konsantrasyonu (mg/L)	$C_e$ (mg/L)	$q_e$ (mg/g)	$\log C_e$	$\log q_e$
21200	20920	28,54	4,3206	1,4554
40400	39860	54,24	4,6005	1,7343
60700	59760	94,26	4,7764	1,9743
79600	78390	121,17	4,8923	2,0834
100280	98720	155,08	4,9944	2,1905

**Tablo 4.19:** Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Temkin izoterm modeline ait sonuçlar.

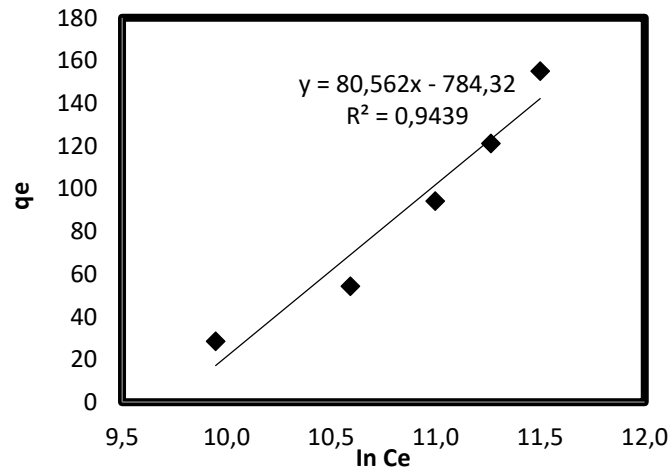
Başlangıç Asit Konsantrasyonu (mg/L)	$C_e$ (mg/L)	$q_e$ (mg/g)	$\ln C_e$
21200	20920	28,54	9,9485
40400	39860	54,24	10,5931
60700	59760	94,26	10,9981
79600	78390	121,17	11,2650
100280	98720	155,08	11,5000



Şekil 4.19: Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Langmuir izotermi.



Şekil 4.20: Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Freundlich izotermi.



Şekil 4.21: Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Temkin izotermi.

**Tablo 4.20:** Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Langmuir, Freundlich ve Temkin izoterm sabitleri ve  $R^2$  değerleri.

Langmuir sabitleri ve $R^2$ değerleri			Freundlich sabitleri ve $R^2$ değerleri			Temkin sabitleri ve $R^2$ değerleri			
$Q_0$	$K_L$	$R^2$	$K_f$	$n$	$R^2$	$B$	$K_t$	$b_t$	$R^2$
-667	$-1,95 \times 10^{-6}$	0,9981	$4,53 \times 10^{-4}$	0,902	0,9968	80,56	$5,92 \times 10^{-5}$	30,75	0,9439

#### 4.3.3. Propiyonik Asite ait Adsorpsiyon İzotermi

Propiyonik asidin, demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunun Langmuir, Freundlich ve Temkin izoterm modellerine ait sonuçları Tablo 4.21-4.23'te listelenmiş olup, bu sonuçlar kullanılarak çizilen lineer grafikler Şekil 4.22-4.24'te gösterilmiştir. Bu lineer grafiklerden izoterm model katsayıları ve  $R^2$  (regresyon katsayısı) değerleri hesaplanarak sonuçlar Tablo 4.24'te listelenmiştir. Tablo 4.24'den görüldüğü Langmuir izoterm modeli en yüksek  $R^2$  değerine sahiptir. Fakat, adsorpsiyon kapasitesini ifade eden Langmuir izoterm sabitinin ( $Q_0$ ) negatif elde edilmesi, yüksek bir  $R^2$  değerine sahip olmasına rağmen bu izoterm modelinin adsorpsiyon süresini tamamen temsil etmede yetersiz kaldığını göstermektedir. Böylece, yüksek  $R^2$  değerine sahip Freundlich izoterm modelinin formik asidin demir oksit nanopartikülleri üzerindeki adsorpsiyon mekanizmasını açıklayan en uygun izoterm modeli olduğu ifade edilebilir. Freundlich izoterm modeli genellikle adsorban yüzeyindeki çok katmanlı adsorpsiyonu tanımlamak için kullanılır ve aktif adsorpsiyon bölgelerinin heterojen yüzey olduğunu varsayar [35].

**Tablo 4.21:** Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Langmuir izoterm modeline ait sonuçlar.

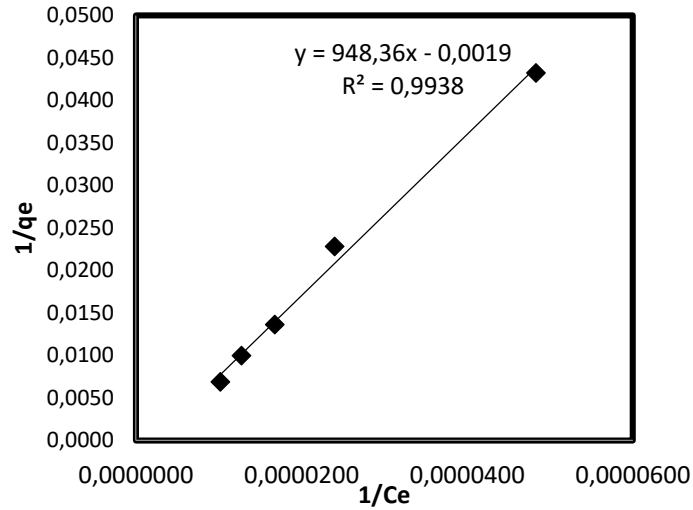
Başlangıç Asit Konsantrasyonu (mg/L)	$C_e$ (mg/L)	$q_e$ (mg/g)	$1/C_e$ (L/mg)	$1/q_e$ (g/mg)
20900	20700	23,13	0,0000483	0,0432
42100	41700	43,82	0,0000240	0,0228
60400	59700	73,34	0,0000168	0,0136
79600	78600	100,27	0,0000127	0,0100
99700	98200	145,42	0,0000102	0,0069

**Tablo 4.22:** Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Freundlich izoterm modeline ait sonuçlar.

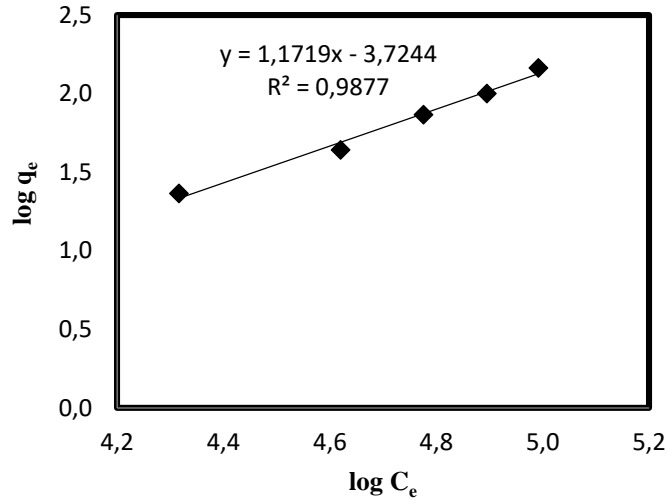
Başlangıç Asit Konsantrasyonu (mg/L)	C <sub>e</sub> (mg/L)	q <sub>e</sub> (mg/g)	log C <sub>e</sub>	log q <sub>e</sub>
20900	20700	23,13	4,3160	1,3642
42100	41700	43,82	4,6201	1,6417
60400	59700	73,34	4,7760	1,8654
79600	78600	100,27	4,8954	2,0012
99700	98200	145,42	4,9921	2,1626

**Tablo 4.23:** Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Temkin izoterm modeline ait sonuçlar.

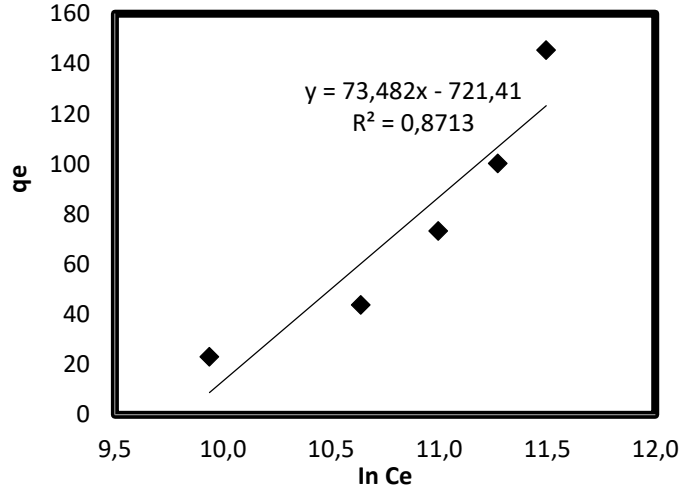
Başlangıç Asit Konsantrasyonu (mg/L)	C <sub>e</sub> (mg/L)	q <sub>e</sub> (mg/g)	ln C <sub>e</sub>
20900	20700	23,13	9,9379
42100	41700	43,82	10,6383
60400	59700	73,34	10,9971
79600	78600	100,27	11,2721
99700	98200	145,42	11,4948



**Şekil 4.22:** Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Langmuir izotermi.



Şekil 4.23: Propiyonik asidin demir oksit nanopartikül ile adsorpsiyonunda Freundlich izotermi.



Şekil 4.24: Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Temkin izotermi.

Tablo 4.24: Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Langmuir, Freundlich ve Temkin izoterm sabitleri ve R<sup>2</sup> değerleri.

Langmuir sabitleri ve R <sup>2</sup> değerleri			Freundlich sabitleri ve R <sup>2</sup> değerleri			Temkin sabitleri ve R <sup>2</sup> değerleri			
Q <sub>0</sub>	K <sub>L</sub>	R <sup>2</sup>	K <sub>f</sub>	n	R <sup>2</sup>	B	K <sub>t</sub>	b <sub>t</sub>	R <sup>2</sup>
-526	2,00x10 <sup>-6</sup>	0,9938	1,88x10 <sup>-4</sup>	0,853	0,9877	73,48	5,45x10 <sup>-5</sup>	33,718	0,8713

#### 4.4. ADSORPSİYON KİNETİĞİ

Adsorpsiyon kinetiğini incelemek için pseudo-birinci mertebe, pseudo-ikinci mertebe ve Elovich ve partikül içi difüzyon kinetik modelleri uygulanmış olup, bu kinetik modellere ait denklemler Bölüm 2.2.3'te özetlenmiştir. Formik, asetik ve propiyonik asit için adsorpsiyon

denge süresinin belirlenmesinde yapılan deneylerin sonuçları kullanılarak önce adsorpsiyon kinetik modeller için lineer grafikler çizilmiş olup, daha sonra bu lineer grafiklerden  $R^2$  (regresyon katsayısı) ve kinetik model parametreleri değerleri hesaplanmıştır.

#### 4.4.1. Formik Asite ait Adsorpsiyon Kinetiği

Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunun kinetik model sonuçları Tablo 4.25-4.28'de listelenmiş olup, bu sonuçlar kullanılarak çizilen lineer grafikler Şekil 4.25-4.28'de gösterilmiş olup, bu lineer grafiklerden hesaplanan kinetik parametreler ve  $R^2$  değerleri Tablo 4.29'da listelenmiştir. Tablo 4.29'da görüldüğü gibi pseudo-ikinci mertebe izoterm modeli en yüksek  $R^2$  değerine sahiptir. Böylece formik asidin demir oksit nanopartikülleri üzerindeki adsorpsiyon mekanizmasını açıklayan en uygun kinetik model olduğu söylenebilir [36]. Pseudo-ikinci mertebe kinetik modeli ise adsorpsiyon mekanizmasının adsorban ve adsorbata bağlı olduğunu varsayar. [37].

**Tablo 4.25:** Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-birinci mertebe kinetik modeline ait sonuçlar.

t (dk)	q <sub>t</sub> (mg/g)	ln(q <sub>e</sub> -q <sub>t</sub> )
30	119,75	4,548
60	177,85	3,593
90	199,53	2,684
120	203,26	2,390
150	212,41	0,571

**Tablo 4.26:** Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-ikinci mertebe kinetik modeline ait sonuçlar.

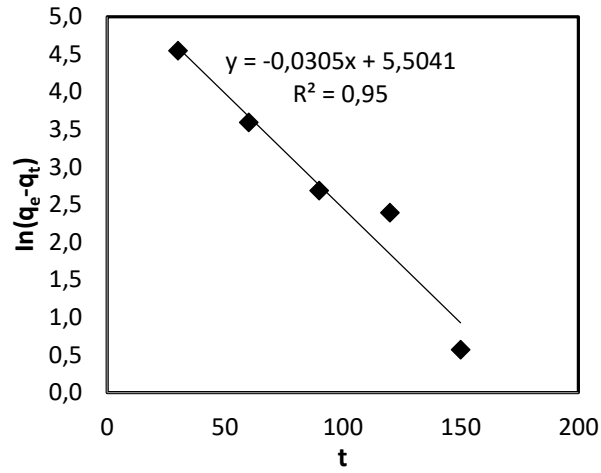
t (dk)	q <sub>t</sub> (mg/g)	t/q <sub>t</sub>
30	119,75	0,2505
60	177,85	0,3374
90	199,53	0,4511
120	203,26	0,5904
150	212,41	0,7062
180	214,18	0,8404

**Tablo 4.27:** Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Elovich kinetik modeline ait sonuçlar.

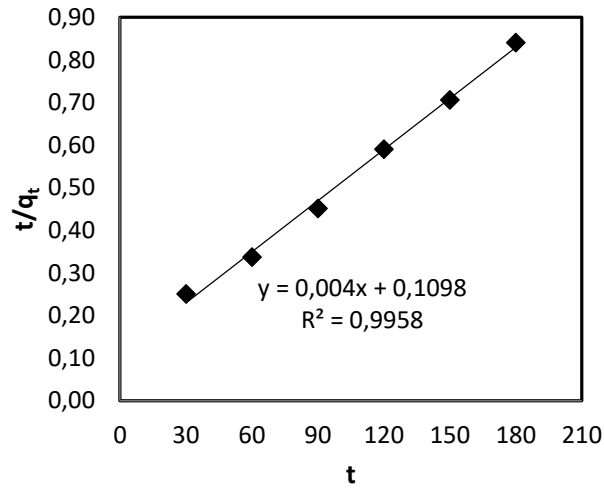
t (dk)	q <sub>t</sub> (mg/g)	ln t
30	119,75	3,401
60	177,85	4,094
90	199,53	4,500
120	203,26	4,787
150	212,41	5,011
180	214,18	5,193

**Tablo 4.28:** Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda partikül içi difüzyon modeline ait sonuçlar.

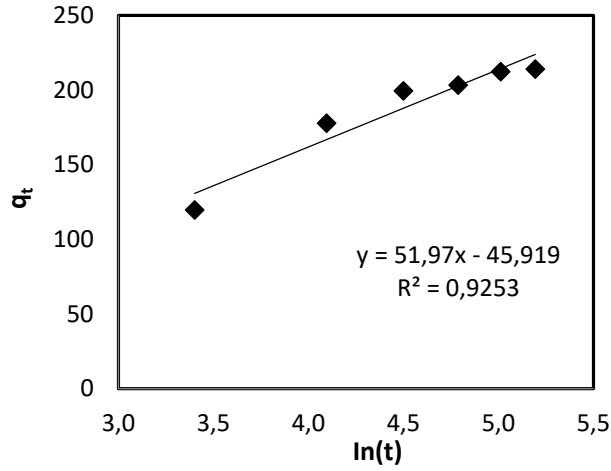
t (dk)	q <sub>t</sub> (mg/g)	t <sup>1/2</sup> (dk <sup>1/2</sup> )
30	119,75	5,48
60	177,85	7,75
90	199,53	9,49
120	203,26	10,95
150	212,41	12,25
180	214,18	13,42



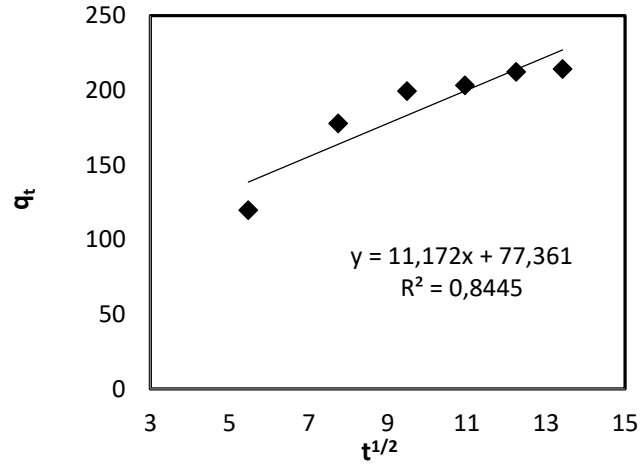
**Şekil 4.25:** Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-birinci mertebe kinetik modeli.



**Şekil 4.26:** Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-ikinci mertebe kinetik modeli.



Şekil 4.27: Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Elovich kinetik modeli.



Şekil 4.28: Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda partikül içi difüzyon modeli.

**Tablo 4.29:** Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda hesaplanan kinetik model katsayıları ve R<sup>2</sup> değerleri.

Pseudo-birinci mertebe			Pseudo ikinci mertebe			Elovich			Partikül içi difüzyon	
k <sub>1</sub> (dk <sup>-1</sup> )	q <sub>e</sub> (mg/g)	R <sup>2</sup>	k <sub>2</sub> (g/mg.dk)	q <sub>e</sub> (mg/g)	R <sup>2</sup>	α	β	R <sup>2</sup>	k <sub>i</sub> (mg/gdk <sup>2</sup> )	R <sup>2</sup>
0,0305	246	0,95	1,45x10 <sup>-4</sup>	250	0,9958	21,77	0,019	0,9253	11,172	0,8445

#### 4.4.2. Asetik Asite ait Adsorpsiyon Kinetiği

Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunun kinetik model sonuçları Tablo 4.29-4.32'de listelenmiş olup, bu sonuçlar kullanılarak çizilen lineer grafikler Şekil 4.30-4.33'te lineer grafiklerde gösterilmiş olup, bu lineer grafiklerden hesaplanan kinetik

parametreler ve  $R^2$  deęerleri Tablo 4.34'te listelenmiřtir. Tablo 4.34'ten grldę Elovich izoterm modeli en yksek  $R^2$  deęerine sahiptir. Bylece asetik asidin demir oksit nanopartiklleri zerindeki adsorpsiyon mekanizmasını aıklayan en uygun kinetik model olduęu sylenebilir [38].

**Tablo 4.30:** Asetik asidin demir oksit nanopartiklleri ile adsorpsiyonunda pseudo-birinci mertebe kinetik modeline ait sonular.

t (dk)	q <sub>t</sub> (mg/g)	ln(q <sub>e</sub> -q <sub>t</sub> )
30	30,11	4,828
60	78,49	4,338
90	131,71	3,151
120	143,41	2,456
150	154,93	-1,941

**Tablo 4.31:** Asetik asidin demir oksit nanopartiklleri ile adsorpsiyonunda pseudo-ikinci mertebe kinetik modeline ait sonular.

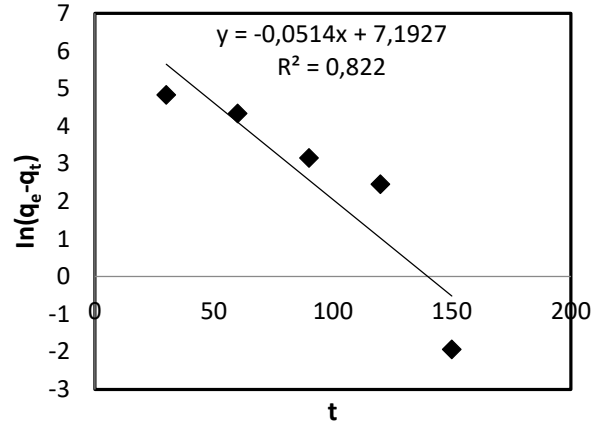
t (dk)	q <sub>t</sub> (mg/g)	t/q <sub>t</sub>
30	30,11	0,9963
60	78,49	0,7645
90	131,71	0,6833
120	143,41	0,8367
150	154,93	0,9682
180	155,08	1,1607

**Tablo 4.32:** Asetik asidin demir oksit nanopartiklleri ile adsorpsiyonunda Elovich kinetik modeline ait sonular.

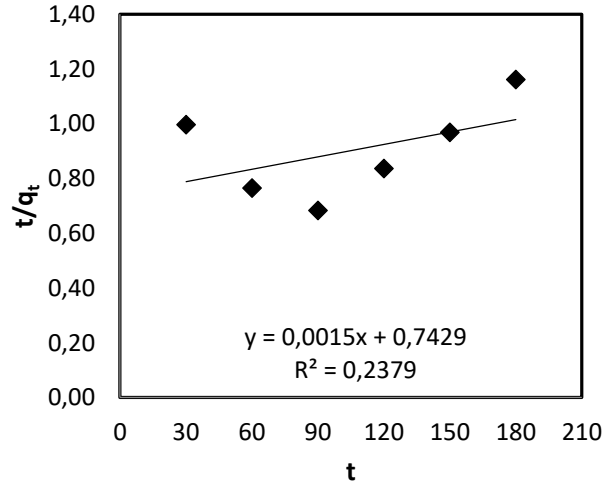
t (dk)	q <sub>t</sub> (mg/g)	ln t
30	30,11	3,401
60	78,49	4,094
90	131,71	4,500
120	143,41	4,787
150	154,93	5,011
180	155,08	5,193

**Tablo 4.33:** Asetik asidin demir oksit nanopartiklleri ile adsorpsiyonunda partikl ii difzyon modeline ait sonular.

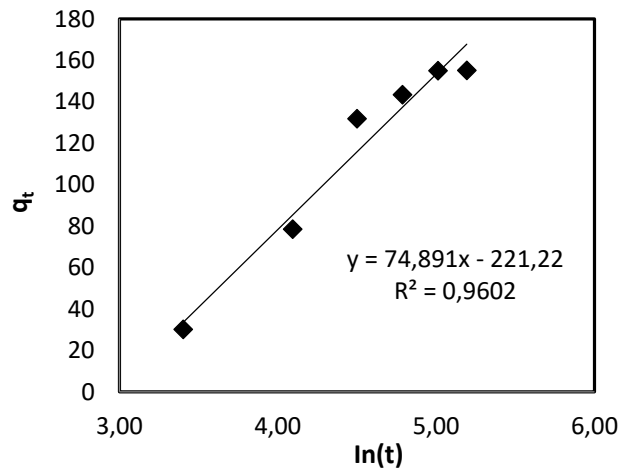
t (dk)	q <sub>t</sub> (mg/g)	t <sup>1/2</sup> (dk <sup>1/2</sup> )
30	30,11	5,48
60	78,49	7,75
90	131,71	9,49
120	143,41	10,95
150	154,93	12,25
180	155,08	13,42



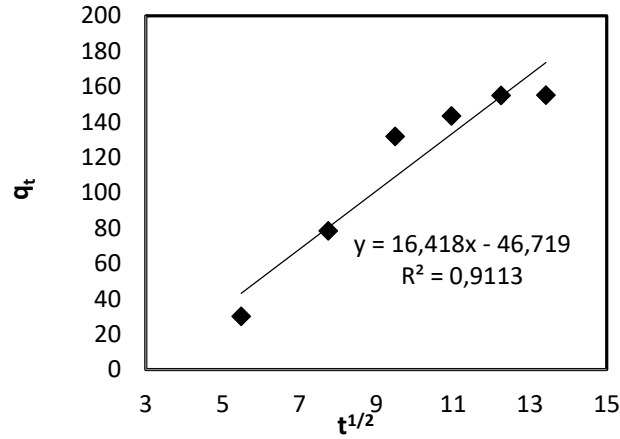
Şekil 4.29: Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-birinci mertebeye kinetik modeli.



Şekil 4.30: Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-ikinci mertebeye kinetik modeli.



Şekil 4.31: Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Elovich kinetik modeli.



Şekil 4.32: Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda partikül içi difüzyon modeli.

Tablo 4.34: Asetik asidin demir oksit nanopartikül ile adsorpsiyonunda hesaplanan kinetik model katsayıları ve  $R^2$  değerleri.

Pseudo-birinci mertebe			Pseudo ikinci mertebe			Elovich			Partikül içi difüzyon	
$k_1$ ( $dk^{-1}$ )	$q_e$ ( $mg/g$ )	$R^2$	$k_2$ ( $g/mg.dk$ )	$q_e$ ( $mg/g$ )	$R^2$	$\alpha$	$\beta$	$R^2$	$k_i$ ( $mg/gdk^2$ )	$R^2$
0,0514	1330	0,822	$3,32 \times 10^{-6}$	667	0,2379	4,01	0,013	0,9602	16,418	0,9113

#### 4.4.3. Propiyonik Asite ait Adsorpsiyon Kinetiği

Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunun kinetik model sonuçları Tablo 4.35-4.38'de listelenmiş olup, bu sonuçlar kullanılarak çizilen lineer grafikler Şekil 4.33-4.36'da lineer grafiklerde gösterilmiş olup, bu lineer grafiklerden hesaplanan kinetik parametreler ve  $R^2$  değerleri Tablo 4.39'da listelenmiştir. Tablo 4.39'den görüldüğü gibi pseudo-birinci mertebe izoterm modeli en yüksek  $R^2$  değerine sahiptir. Böylece propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri üzerindeki adsorpsiyon mekanizmasını açıklayan en uygun kinetik model olduğu söylenebilir. Pseudo-birinci mertebe kinetik modeli, sıvı-katı arasındaki adsorpsiyon mekanizması katı maddenin adsorpsiyon kapasitesine bağlı olarak değiştiğini varsayar. [38].

Tablo 4.35: Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-birinci mertebe kinetik modeline ait sonuçlar.

$t$ ( $dk$ )	$q_t$ ( $mg/g$ )	$\ln(q_e - q_t)$
30	33,03	4,7220
60	63,28	4,4083
90	105,22	3,6938
120	127,06	2,9099
150	136,62	2,1746

**Tablo 4.36:** Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-ikinci mertebe kinetik modeline ait sonuçlar.

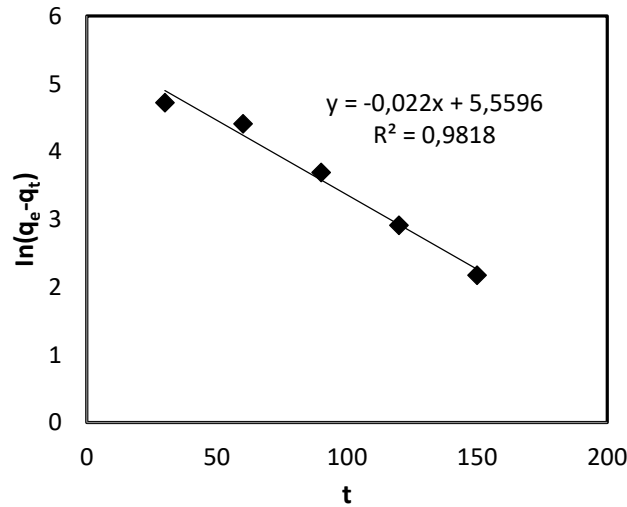
t (dk)	q <sub>t</sub> (mg/g)	t/q <sub>t</sub>
30	33,03	0,9083
60	63,28	0,9481
90	105,22	0,8554
120	127,06	0,9444
150	136,62	1,0980
180	145,42	1,2378

**Tablo 4.37:** Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Elovich kinetik modeline ait sonuçlar.

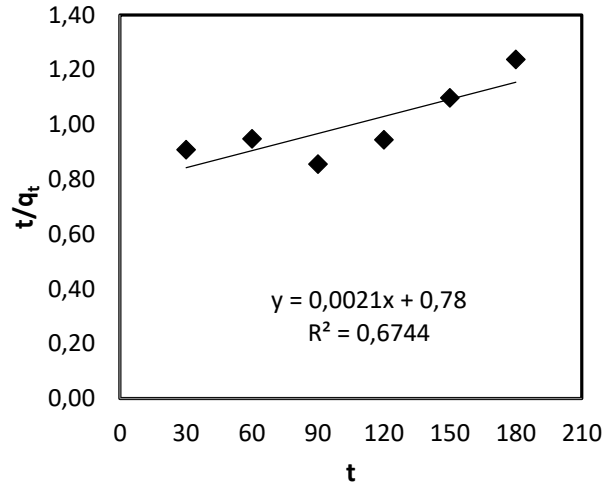
t (dk)	q <sub>t</sub> (mg/g)	ln t
30	33,03	3,401
60	63,28	4,094
90	105,22	4,500
120	127,06	4,787
150	136,62	5,011
180	145,42	5,193

**Tablo 4.38:** Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda partikül içi difüzyon modeline ait sonuçlar.

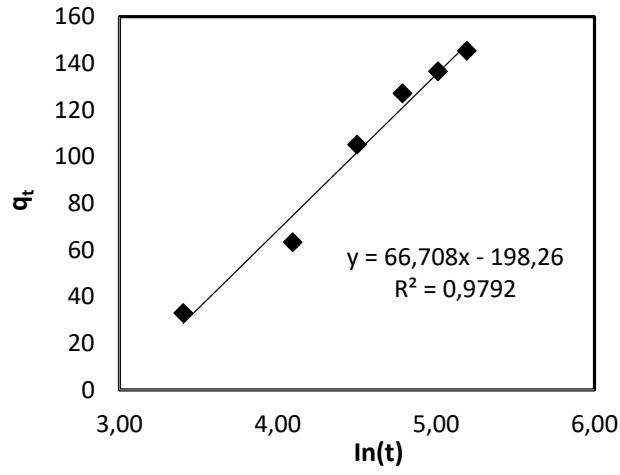
t (dk)	q <sub>t</sub> (mg/g)	t <sup>1/2</sup> (dk <sup>1/2</sup> )
30	33,03	5,48
60	63,28	7,75
90	105,22	9,49
120	127,06	10,95
150	136,62	12,25
180	145,42	13,42



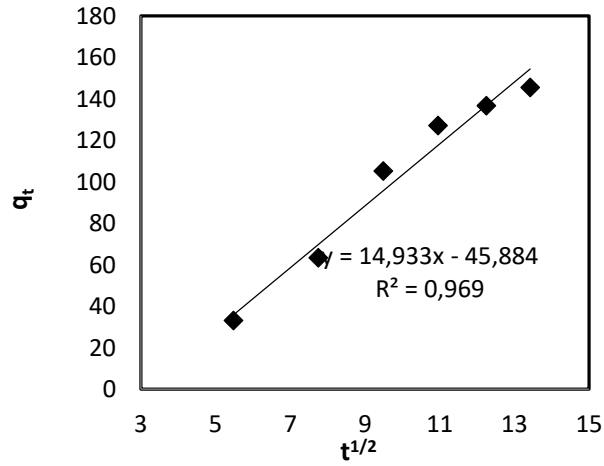
**Şekil 4.33:** Propiyonik asidin demir oksit nanopartikül ile adsorpsiyonunda pseudo-birinci mertebe kinetik modeli.



Şekil 4.34: Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda pseudo-ikinci mertebe kinetik modeli.



Şekil 4.35: Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda Elovich kinetik modeli.



Şekil 4.36: Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda partikül içi difüzyon modeli.

**Tablo 4.39:** Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda hesaplanan kinetik model katsayıları ve R<sup>2</sup> değerleri.

Pseudo-birinci mertebe			Pseudo ikinci mertebe			Elovich			Partikül içi difüzyon	
k <sub>1</sub> (dk <sup>-1</sup> )	q <sub>e</sub> (mg/g)	R <sup>2</sup>	k <sub>2</sub> (g/mg.dk)	q <sub>e</sub> (mg/g)	R <sup>2</sup>	α	β	R <sup>2</sup>	k <sub>i</sub> (mg/gdk <sup>2</sup> )	R <sup>2</sup>
0,022	260	0,9818	5,65x10 <sup>-6</sup>	476	0,6744	3,41	0,015	0,9792	14,933	0,969

#### 4.5. ADSORPSİYON TERMODİNAMİĞİ

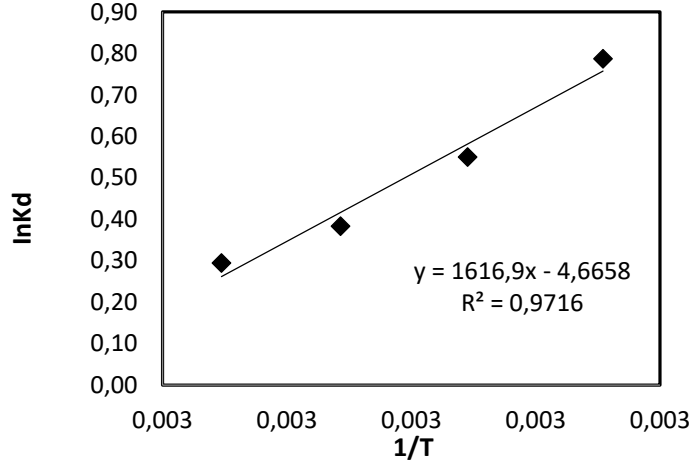
Formik, asetik ve propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunun termodinamiği, sıcaklık etkisi deneylerinden elde edilen adsorpsiyon verileri kullanılarak değerlendirilmiştir. Adsorpsiyon termodinamiğiyle ilgili parametreler ve denklemler Bölüm 2.2.4'te özetlenmiştir. Bu denklemler kullanılarak, ln(KD) - 1/T grafiği çizilmiş ve bu grafik yardımıyla entropi ( $\Delta S^0$ , J/mol.K), Gibbs serbest enerjisi ( $\Delta G^0$ , J/mol) ve entalpi ( $\Delta H^0$ , J/mol) gibi termodinamik parametreler hesaplanmıştır.

##### 4.5.1. Formik Asite ait Adsorpsiyon Termodinamiği

Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda termodinamik inceleme için gerekli olan deneysel veriler ve hesaplanan veriler (ln (KD) ve 1/T) Tablo 4.40'ta verilmiştir. Bu veriler kullanılarak çizilen ln(KD) - 1/T grafiği ise Şekil 4.37'de gösterilmiş olup, bu grafiğin eğiminden entalpi ( $\Delta H^0$ ) ve kesim noktasından entropi ( $\Delta S^0$ ) değerleri hesaplanmıştır. Hesaplanan tüm termodinamik parametreler ve R<sup>2</sup> değerleri Tablo 4.41'de listelenmiştir. Tablo 4.41'de görüleceği gibi  $\Delta H^0$  değeri negatif hesaplanmış olup ( $\Delta H^0 < 0$ ), bu değer negatif olması, adsorpsiyon sürecinin ekzotermik olduğunu gösterir. Benzer şekilde,  $\Delta G^0$  değerlerinin tüm sıcaklıklara göre negatif ( $\Delta G^0 < 0$ ) çıkması adsorpsiyonun kendiliğinden gerçekleştiğini göstermektedir [39].  $\Delta S^0$  değerinin de negatif olması ise ( $\Delta S^0 < 0$ ), adsorpsiyon işlemi sırasında adsorban ve adsorbat ara yüzündeki düzensizliğin azaldığı anlamına gelir [40,41].

**Tablo 4.40:** Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda termodinamik veriler.

T (°C)	T (K)	q <sub>e</sub> (mg/g)	C <sub>e</sub> (g/L)	lnK <sub>D</sub>	1/T
25	298,15	214,18	97,47	0,787	0,00335
35	308,15	169,63	97,80	0,551	0,00325
45	318,15	143,88	98,00	0,384	0,00314
55	328,15	131,81	98,16	0,295	0,00305

**Şekil 4.37:** Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonu termodinamiği için doğrusal grafik.**Tablo 4.41:** Formik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda hesaplanan termodinamik parametreler ve R<sup>2</sup> değeri.

T (°C)	K <sub>D</sub> (mL/g)	ΔG <sup>0</sup> (J/mol)	ΔS <sup>0</sup> (J/molK)	ΔH <sup>0</sup> (J/mol)	R <sup>2</sup>
25	2,20	-1952			
35	1,73	-1411	-38,79	-13443	0,9716
45	1,47	-1016			
55	1,34	-804			

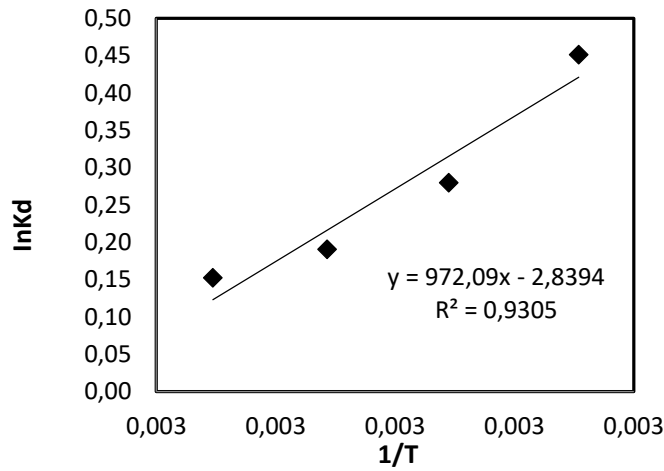
#### 4.5.2. Asetik Asite ait Adsorpsiyon Termodinamiği

Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda termodinamik inceleme için gerekli olan deneysel veriler ve hesaplanan veriler (ln (K<sub>D</sub>) ve 1/T) Tablo 4.42’de verilmiştir. Bu veriler kullanılarak çizilen ln(KD) - 1/T grafiği ise Şekil 4.38’de gösterilmiş olup, bu grafiğin eğiminden entalpi (ΔH<sup>0</sup>) ve kesim noktasından entropi (ΔS<sup>0</sup>) değerleri hesaplanmıştır. Hesaplanan tüm termodinamik parametreler ve R<sup>2</sup> değerleri Tablo 4.43’de listelenmiştir. Tablo 4.43’te görüleceği gibi ΔH<sup>0</sup> değeri negatif hesaplanmış olup (ΔH<sup>0</sup><0), bu değer negatif olması, adsorpsiyon sürecinin ekzotermik olduğunu gösterir. Benzer şekilde, ΔG<sup>0</sup> değerlerinin tüm sıcaklıklara göre negatif (ΔG<sup>0</sup><0) çıkması adsorpsiyonun kendiliğinden gerçekleştiğini

göstermektedir.  $\Delta S^0$  değerinin de negatif olması ise ( $\Delta S^0 < 0$ ), adsorpsiyon işlemi sırasında adsorban ve adsorbat arayüzündeki düzensizliğin azaldığı anlamına gelir [40].

**Tablo 4.42:** Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda termodinamik veriler.

T (°C)	T (K)	$q_e$ (mg/g)	$C_e$ (g/L)	$\ln K_D$	1/T
25	298,15	155,08	98,72	0,452	0,00335
35	308,15	130,93	98,95	0,280	0,00325
45	318,15	119,94	99,09	0,191	0,00314
55	328,15	115,48	99,12	0,153	0,00305



**Şekil 4.38:** Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonu termodinamiği için doğrusal grafik.

**Tablo 4.43:** Asetik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda hesaplanan termodinamik parametreler ve  $R^2$  değeri.

T (°C)	$K_D$ (mL/g)	$\Delta G^0$ (J/mol)	$\Delta S^0$ (J/molK)	$\Delta H^0$ (J/mol)	$R^2$
25	1,57	-1119			
35	1,32	-718	-23,61	-8082	0,9305
45	1,21	-505			
55	1,17	-417			

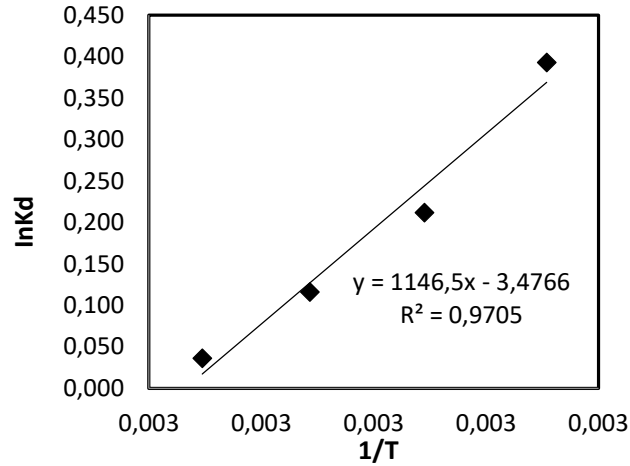
#### 4.5.3. Propiyonik Asite ait Adsorpsiyon Termodinamiği

Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda termodinamik inceleme için gerekli olan deneysel veriler ve hesaplanan veriler ( $\ln(K_D)$  ve  $1/T$ ) Tablo 4.44'te verilmiştir. Bu veriler kullanılarak çizilen  $\ln(KD) - 1/T$  grafiği ise Şekil 4.39'da gösterilmiş olup, bu grafiğin eğiminden entalpi ( $\Delta H^0$ ) ve kesim noktasından entropi ( $\Delta S^0$ ) değerleri hesaplanmıştır. Hesaplanan tüm termodinamik parametreler ve  $R^2$  değerleri Tablo 4.44'te listelenmiştir. Tablo

4.45'te görüleceği gibi  $\Delta H^0$  değeri negatif hesaplanmış olup ( $\Delta H^0 < 0$ ), bu değer negatif olması, adsorpsiyon sürecinin ekzotermik olduğunu gösterir. Benzer şekilde,  $\Delta G^0$  değerlerinin tüm sıcaklıklara göre negatif ( $\Delta G^0 < 0$ ) çıkması adsorpsiyonun kendiliğinden gerçekleştiğini göstermektedir [40].  $\Delta S^0$  değerinin de negatif olması ise ( $\Delta S^0 < 0$ ), adsorpsiyon işlemi sırasında adsorban ve adsorbat arayüzündeki düzensizliğin azaldığı anlamına gelir [40].

**Tablo 4.44:** Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda termodinamik veriler.

T (°C)	T (K)	$q_e$ (mg/g)	$C_e$ (g/L)	$\ln K_D$	$1/T$
25	298,15	145,42	98,18	0,393	0,00335
35	308,15	121,73	98,50	0,212	0,00325
45	318,15	110,73	98,59	0,116	0,00314
55	328,15	102,33	98,72	0,036	0,00305



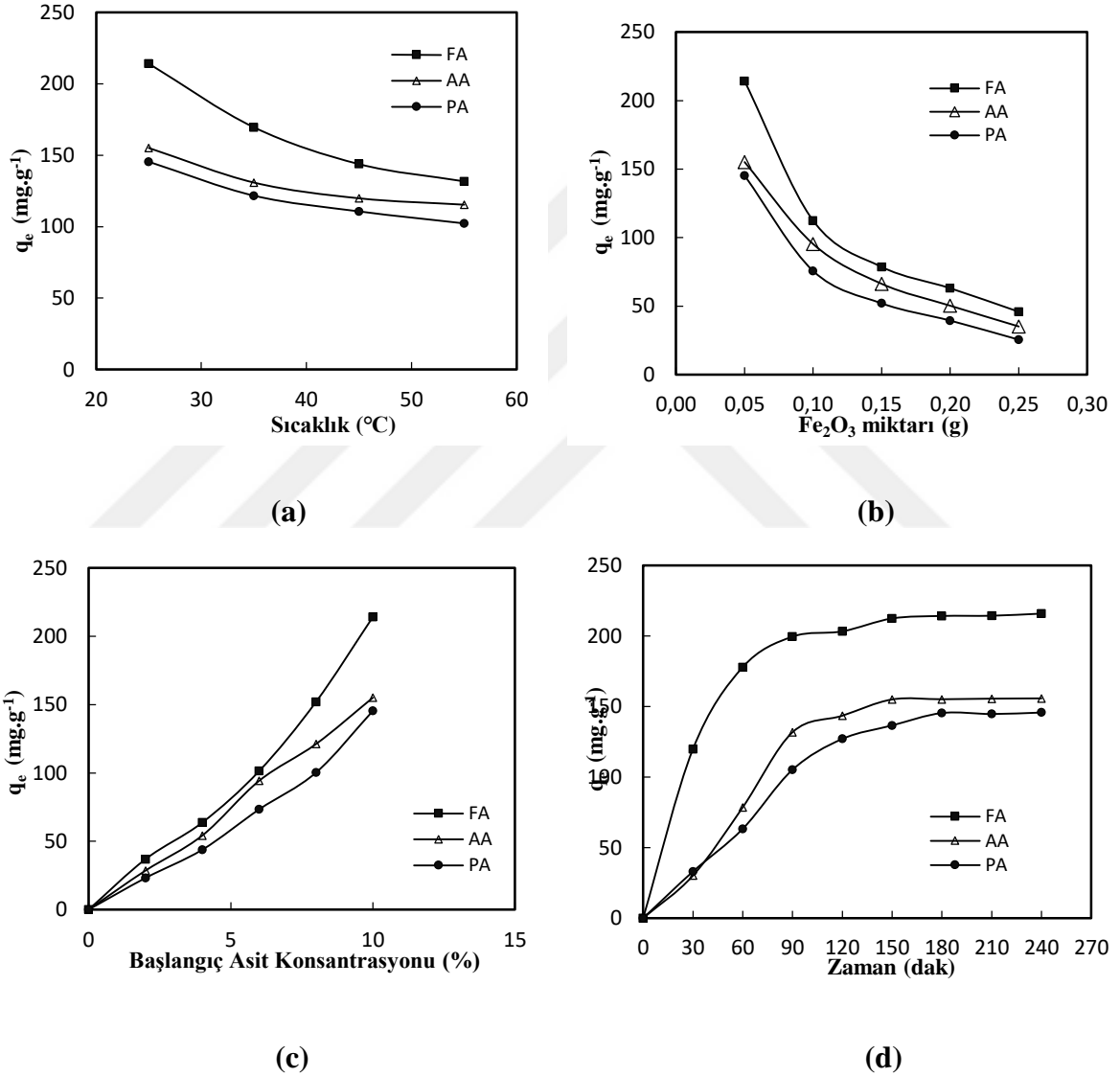
**Şekil 4.39:** Propiyonik asidin demir oksit nanopartikül ile adsorpsiyonu termodinamiği için doğrusal grafik.

**Tablo 4.45:** Propiyonik asidin demir oksit nanopartikülleri ile adsorpsiyonunda hesaplanan termodinamik parametreler ve  $R^2$  değeri.

T (°C)	$K_D$ (mL/g)	$\Delta G^0$ (J/mol)	$\Delta S^0$ (J/molK)	$\Delta H^0$ (J/mol)	$R^2$
25	1,48	-974			
35	1,24	-542	-28,90	-9532	0,9705
45	1,12	-307			
55	1,04	-98			

## 5. TARTIŞMA

Şekil 5.1, kullanılan her bir asit için farklı adsorpsiyon koşullarında gerçekleştirilen denemelerin asit türüne göre karşılaştırılmalı sonuçlarını göstermektedir.



Şekil 5.1: Çeşitli adsorpsiyon şartlarında gerçekleştirilen demir oksit nanopartikül adsorpsiyonunda farklı asit etkisi.

Şekil 5.1 incelendiğinde, düşük molekül yapıları olan formik asitin, asetik asit ve propiyonik asite göre demir oksit nanopartikülleri tarafından daha çok adsorplandığı gözlenmektedir. Asetik

asit ve propiyonik asidin adsorpsiyon kapasitelerinin birbirilerine daha yakın olduğu gözlemlenmektedir. Maksimum adsorpsiyon kapasitesi değeri ise; optimum sürede (180 dakika), minimum sıcaklık değerinde (25 °C) formik asidin adsorpsiyon kapasitesi 214,18 mg g<sup>-1</sup>, asetik asidin adsorpsiyon kapasitesi 155,08 mg g<sup>-1</sup> ve propiyonik asidin adsorpsiyon kapasitesi 145,42 mg g<sup>-1</sup> olarak hesaplanmıştır. Demir oksit nanopartikülleri tarafından çalışılan diğer asitlere kıyasla formik asidin daha çok adsorplanması, formik asitin karbon atomlarının sayısının daha az olması olabilir. Literatürde, Rizzioli ve diğ. [42], asetik, propiyonik ve bütirik asit adsorpsiyonunu toz aktif karbon kullanarak incelenmişlerdir. Toz aktif karbon tarafından en çok asetik asit, en az bütirik asit adsorplanmış olup, bu durumun nedenini asit zincirindeki karbon atomlarının sayısı ile açıklamışlardır. Literatürdeki çalışmalara bakıldığında, demir oksit nanopartiküllerinin sadece karboksilik asitler için değil, ağır metal olan Pb, Cd, Hg ve Cu gideriminde de önemli bir nanoadsorban olarak kullanıldığı gözlemlenmiştir [41]. Buna ek olarak, tekstil atık sularının arıtılması (kimyasal oksijen ihtiyacı ve renk giderimi) için de demir oksit nanopartikülleri oldukça verimli bir adsorban olarak kabul edilmektedir [42].

## 6. SONUÇ VE ÖNERİLER

Literatürde yeni bir adsorban örneği olarak kullanılan demiroksit nanopartikülleri, laboratuvar ortamında kimyasal çöktürme yöntemi ile sentezlenmiştir. XRD, FTIR ve SEM karakterizasyon analiz yöntemleri ile demir oksitin nano ölçekli olduğu doğrulanmıştır. Demir oksit nanopartiküllerinin parçacık çapının 56,5 nm olduğu hesaplanmıştır. Sentezlenen demir oksit nanopartiküllerinin adsorpsiyon kapasitesi, farklı başlangıç konsantrasyonu, temas süresi, adsorban miktarı ve sıcaklık koşullarında incelenmiştir. Bu kapsamda, yapılan deneysel çalışmaların ilk kısmında öncelikle laktik, malik ve tartarik asitlerin yaklaşık %10'luk sulu çözeltileri hazırlanmış ve her bir adsorban için dengeye gelme süreleri belirlenmiştir. Optimum sürede farklı başlangıç asit konsantrasyonlarında (%2, %4, %6, %8 ve %10'luk) denemeler gerçekleştirilmiş, adsorbat konsantrasyonunun adsorpsiyon kapasitesine olan etkisi incelenmiştir. Daha sonra farklı adsorban miktarının (0,05; 0,1; 0,15; 0,2 ve 0,25 g) adsorpsiyon üzerindeki etkisi incelenerek optimum adsorban miktarı belirlenmiştir. Denemeler sonucunda elde edilen veriler tablolar ve grafikler halinde sunulmuştur. Elde edilen deneysel sonuçların Langmuir, Freundlich ve Temkin izoterm modellerinin olan uyumu incelenmiş, Langmuir, Freundlich, Temkin izoterm modellerine ait eşitliklere göre grafikler çizilmiş ve izoterm sabitleri ve korelasyon katsayıları ( $R^2$ ) hesaplanmıştır. Elde edilen izoterm sabitleri, Langmuir, Freundlich ve Temkin izoterm eşitliklerinde tekrar yerlerine konularak her bir izoterm modeli için adsorpsiyon kapasitesi ( $q_e$ ) değerleri hesaplanmış ve deneysel olarak elde edilen adsorpsiyon kapasitesi (deneysel  $q_e$ ) değerleriyle karşılaştırılmıştır. Temas süresi ve başlangıç asit konsantrasyonu arttıkça adsorpsiyon kapasitesinde artış, nano adsorban miktarının ve sıcaklığının artmasıyla da adsorpsiyon kapasitesinde düşüş gözlemlenmiştir. Sırasıyla formik asit,asetik asit ve propiyonik asit adsorpsiyon kapasiteleri hesaplanmıştır. Formik asitin adsorpsiyon kapasitesi 214,18 mg g<sup>-1</sup>, asetik asitin adsorpsiyon kapasitesi 155,08 mg ve propiyonik asitin adsorpsiyon kapasitesi 145,42 mg g<sup>-1</sup> olarak hesaplanmıştır. Gerçekleştirilen izoterm modellerine göre, demiroksit nanopartiküllerinin adsorpsiyon mekanizmasının çok tabakalı ve heterojen olduğu gözlemlenmiştir. Son olarak termodinamik modelleme çalışmalarında, adsorpsiyon mekanizmasının ekzotermik ve kendiliğinden gerçekleşen bir proses olduğu gözlemlenmiştir. Elde edilen korelasyon sonuçlarına göre karboksilik asitlerin nano demiroksit partikülleri işe adsorpsiyonlarının genel olarak Freundlich izoterm modeli

uyduđu belirlenmiřtir. Langmuir, Freundlich ve Temkin izoterm eřitliklerinden elde edilen adsorpsiyon kapasitesi ( $q_e$ ) deđerleri karřılařtırıldıđında ise tım sistemler iin elde edilen deneysel adsorpsiyon kapasiteleri verilerinin Langmuir izoterm modelinden elde edilen  $q_e$  deđerlerine daha yakın olduđu g rlm řt ur. B ylece, karboksilik asitlerin nano demiroksit adsorbanının en iyi Freundlich ve Langmuir izoterm modelleri ile uyum sađladıđı, Temkin izoterm modeline ise uymadıđı anlařılmaktadır. Demir oksit nanopartik llerinin, eřitli karboksilik asitlerin adsorpsiyon iřlemlerinde kullanılabilircek adsorpsiyon kapasitesi y ks ek bir nanomalzeme olduđu sonucuna varılmıřtır.



## KAYNAKLAR

- [1]. Andaç, M., Dikbaş, Ç., Akyüz G., 2022, nanopartiküllerin genel özellikleri, sentez ve karakterizasyon teknikleri, *Farmakoloji ve toksikolojide nanoteknoloji Türkiye klinikleri*, (1) 1-10.
- [2]. Nanotechnology, <https://education.nationalgeographic.org/resource/>, [Ziyaret tarihi: 5 Mayıs 2023].
- [3]. Tippo, P., Singjai, P., Sroila, W., Jaisamer, T., Suttanon, N., Panthawan, A., Kantarak, E., Sroila, W., Thongsuwan, W., Kumpika, T., Wiranwetchayan, O., 2022, Improving the properties of Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> by a sparking method under a uniform magnetic field for a highperformance humidity sensor, *Royal society of chemistry*, 12, 1527-1533.
- [4]. Nanoparticles Types, Properties and Uses, <https://www.nanowerk.com/>, [Ziyaret Tarihi: 5 Nisan 2023].
- [5]. Sharma, A., Goyal, A., K., Rath, G., 2018, Recent advances in metal nanoparticles in cancer therapy, *Journal of drug targeting*, 26 (8), 617-32.
- [6]. Gnach, A., Lipinski T., Bednarkiewicz, A., Rybka, J., Capobianco, J.A., 2015, Upconverting nanoparticles: Assessing the toxicity, *Royal society of chemistry*, (44), 1561–1584.
- [7]. Khan, I., Saeed, K., Khan, I., 2019, Nanoparticles: Properties, applications and toxicities, *Arabian journal of chemistry*, 12(7), 908-931.
- [8]. Harish, V., Ansari, Md., Mustafiz, Devesh, T., Gaur, M., Yadav, B., A., Betancourt, G., L., M., Haleem, A. M. F., Bechelany, M., Barhoum, A., 2022, Nanoparticle and nanostructure synthesis and controlled growth methods, *Nanomaterials*, 12(18), 3226.
- [9]. Aderibigbe, B., 2017, Metal-based nanoparticles for the treatment of infectious diseases, *Molecules*, 22(8), 1370.
- [10]. Nanopartiküller ve Üretim Yöntemleri, <https://www.metalurji.org.tr/>, [Ziyaret Tarihi: 15 Nisan 2023].
- [11]. Ateş, H., Bahçeci, E., 2015, Nano malzemeler için üretim yöntemleri üretim yöntemleri, *Gazi üniversitesi fen bilimleri dergisi part:C, tasarım ve teknoloji*, 3(2), 483-499.
- [12]. Demirel, A., 2014, *Galyum nitrür nanoyapıların lazer ablasyonu yöntemiyle üretimi, yapısal ve optik karakterizasyonu*, Yüksek Lisans, Turgut Özal Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü.
- [13]. Rajput, N., 2015, Methods of preparation of nanoparticles, A review, *International journal of advances in engineering & technology*, 7, 1806-1811.

- [14]. Sipahi, K., 2019, *Tetraetilen penta amin(tepa) poliürepoliamin polimeri ile pd(u) iyonlarının sulu çözeltilerinden adsorpsiyonla gideriminin incelenmesi*, Yüksek Lisans, Sakarya Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü.
- [15]. Güneş, Ş., 2018, *Fonksiyonel polimerlerle selyum iyonu adsorpsiyonunun incelenmesi*, Yüksek Lisans, İstanbul Üniversitesi-Cerrahpaşa Lisansüstü Eğitim Enstitüsü.
- [16]. Okumuş, Z. Ç., Doğan, T.H., 2019, Biyodizeldeki suyun reçine ile uzaklaştırılması: adsorpsiyon izotermi, kinetiği ve termodinamik incelenmesi, *Avrupa bilim ve teknoloji dergisi*, (15), 561-570.
- [17]. Erkurt, E. F., Balcı, B., 2015, Reaktif blac 5 boyar maddesinin aktif karbon üzerine adsorpsiyonunun kinetik ve adsorpsiyon modelleri kullanılarak incelenmesi, *Çukurova üniversitesi mühendislik mimarlık fakültesi dergisi*, 30(1), 257-269.
- [18]. Temel, F., 2018, Pb(II) giderimi için geliştirilmiş perlit kullanımı: Kinetik çalışmalar, *Türk tarım-gıda bilim ve teknoloji dergisi*, 6(3), 360-364.
- [19]. Ramadoss, R., Subramaniam, D., 2018, Adsorption of chromium using blue green algae-modeling and application of various isotherms, *international journal of chemical technology*, 10(1), 1-22.
- [20]. Modelling and Interpretation of Adsorption Isotherms, <https://www.researchgate.net/publication/>, [Ziyaret Tarihi: 12 Haziran 2023].
- [21]. Mirjalili, F., Hasmaliza, M., Abdullah, L. C., 2010, Size-controlled synthesis of nano  $\alpha$ -alumina particles through the sol-gel method, *Ceramics international*, 36(4), 1253-1257.
- [22]. Hafshejani, L. D., Tangsir, S., Koponen, H., Riikonen, J., Karhunen, T., Tapper, U., Jokiniemi, J., 2016, Synthesis and characterization of  $Al_2O_3$  nanoparticles by flame spray pyrolysis (FSP)-Role of Fe ions in the precursor, *Powder technology*, 298, 42-49.
- [23]. Banerjee, S., Dubey, S., Gautam, R. K., Chattopadhyaya, M. C., Sharma, Y. C., 2019, Adsorption characteristics of alumina nanoparticles for the removal of hazardous dye, Orange G from aqueous solutions, *Arabian journal of chemistry*, 12(8), 5339-5354.
- [24]. Sharma, Y. C., Srivastava, V., Mukherjee, A. K., 2010, Synthesis and application of nano- $Al_2O_3$  powder for the reclamation of hexavalent chromium from aqueous solutions, *Journal of chemical and engineering data*, 55(7), 2390-2398.
- [25]. R. Wódzki, J. Nowaczyk, M. Kujawski, 2000, Separation of propionic and acetic acid by pertraction in a multimembrane hybrid system, *Separation and purification technology*, 21, 39-54.
- [26]. Güneş, M., Yalçın, B., Çiğerci, H.İ., Kaya, B., 2021, Demir (III) oksit ( $Fe_2O_3$ ) nanopartiküllerinin genotoksitesinin Drosophila hemositlerinde KOMET yöntemi ile araştırılması, *Gümüşhane üniversitesi fen bilimleri enstitüsü dergisi*, (3), 643-652.
- [27]. Başlıoğlu, B., 2007, *Su – Karboksilik Asit Karışımı-Çözücü Dörtlü Sistemlerinin Sıvı-Sıvı Denge Verileri*, Yüksek Lisans, İstanbul Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü.

- [28]. Baylan, N., Çehreli, S., 2020, Experimental and modeling study for the removal of formic acid through bulk ionic liquid membrane using response surface methodology, *Chemical engineering communications*, 207 (10), 1426-1439.
- [29]. Formik Asidin Özellikleri ve Uygulamalar, <https://www.products.pcc.eu/tr/blog/formik-asidin-ozellikleri-ve-uygulamaları-nelerdir/>, [Ziyaret Tarihi: 18 Nisan 2023].
- [30]. Asetik Asit, <https://www.askimya.com/urunler/asetik-asit-80.html>, [Ziyaret Tarihi: 24 Nisan 2023]
- [31]. Ranaei, V., Pilevar, Z., Khaneghah, M.A., Hosseini, H., F., 2020, Propionic Acid: Method of production, current state and perspectives, *Food technology and biotechnology*, 58(2), 115-127.
- [32]. Garcia, A. R., McCubbin, T., Navone, L., Stowers, C., Nielsen, L. K., Marcellin, E., 2017, Microbial propionic acid production, *Fermentation*, 3(2), 21.
- [33]. Propiyonik Asit, [https://www.atamanchemicals.com/propionic-acid\\_u25285/?lang=TR](https://www.atamanchemicals.com/propionic-acid_u25285/?lang=TR), [Ziyaret Tarihi: 5 Mayıs 2023].
- [34]. İlalan, İ., 2017, *Alfa hidroksi asitlerin adsorpsiyonların incelenmesi*, Yüksek Lisans, İstanbul Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü.
- [35]. Dada, A. O., 2012, Freundlich Langmuir, Temkin and Dubinin-Radushkevich isotherms studies of equilibrium sorption of  $zn^{2+}$  unto phosphoric acid modified rice husk, *IOSR journal of applied chemistry*, (3), 38–45.
- [36]. Nayak, A. K., Pal, A., 2019, Development and validation of an adsorption kinetic model at solid-liquid interface using normalized Gudermannian function, *Journal of molecular liquids*, 276, 67–77.
- [37]. Meroufel, B., Benali, O., Benyahia, M., Benmoussa, Y., Zenasni, M., 2013, Adsorptive removal of anionic dye from aqueous solutions by Algerian kaolin: characteristics, isotherm, kinetic and thermodynamic studies, *Journal of material and environmental science*, S4:482–491.
- [38]. Naushad, M., Alothman, Z. A., Khan, M. R., 2013, Removal of malathion from aqueous solution using De-Acidite FF-IP resin and determination by UPLC-MS/MS: Equilibrium, kinetics and thermodynamics studies, *Talanta*, 115, 15–23.
- [39]. Aravindhana, R., Rao, J. R., Nair, B. U., 2007, Removal of basic yellow dye from aqueous solution by sorption on green alga *Caulerpa scalpelliformis*, *Journal of hazardous materials*, 142, 68–76.
- [40]. Evliyaoğulları, E.N., 2019, *Bitki özütü kullanılarak sentezlenmiş nanoparçacıkların sulardan ağır metal gideriminde kullanımı*, Yüksek Lisans, Konya Teknik Üniversitesi Çevre Mühendisliği Ana Bilim Dalı.
- [41]. Rizzioli, F., Battista, F., Bolzonella, D., Frison, N., 2021, Volatile fatty acid recovery from anaerobic fermentate: focusing on adsorption and desorption performances. *Industrial & engineering chemistry research*, 60(37), 13701-13709.

- [42]. Ayrancınar, İ., Duyar,A., Göçer,S., Kozak, M., Körođlu, O. E, Cırık, K., 2023, Demir (II,III) oksit ( $Fe_3O_4$ ) nanopartiküller kullanılarak tekstil atıksularının arıtılması, *Kahramanmaraş sütün imam üniversitesi mühendislik bilimleri dergisi*, 26(1), 1-7.



## İNTİHAL RAPORU İLK SAYFASI

Ahsen Özfidan Yüksek Lisans Tezi			
ORJİNALLİK RAPORU			
%	<b>19</b>	%	<b>18</b>
BENZERLİK ENDEKSİ		İNTERNET KAYNAKLARI	
		%	<b>3</b>
		YAYINLAR	
		%	<b>5</b>
		ÖĞRENCİ ÖDEVLERİ	
BİRİNCİL KAYNAKLAR			
1	acikbilim.yok.gov.tr İnternet Kaynağı	%	<b>12</b>
2	Submitted to The Scientific & Technological Research Council of Turkey (TUBITAK) Öğrenci Ödevi	%	<b>2</b>
3	9lib.net İnternet Kaynağı	<%	<b>1</b>
4	Nilay Baylan, İrem İlan, İsmail İnci. "Copper Oxide Nanoparticles as a Novel Adsorbent for Separation of Acrylic Acid from Aqueous Solution: Synthesis, Characterization, and Application", Water, Air, & Soil Pollution, 2020 Yayın	<%	<b>1</b>
5	docs.di.fc.ul.pt İnternet Kaynağı	<%	<b>1</b>
6	repositorio.ufsc.br İnternet Kaynağı	<%	<b>1</b>
7	Submitted to Nevşehir Üniversitesi Öğrenci Ödevi	<%	<b>1</b>

## ETİK KURUL İZİN YAZISI

**Uyarı:** Canlı denekler üzerinde yapılan tüm arařtırmalar için Etik Kurul Belgesi alınması zorunludur.

- Etik Kurul izni gerekmektedir.
- Etik Kurul izni gerekmemektedir.

Ahsen ÖZFİDAN  
(İmza)



## KURUM İZİNİ YAZILARI

**Uyarı:** Canlı ve cansız deneklerle yapılan tüm çalışmalar için kurum izin belgelerinin eklenmesi zorunludur. Gizlilik ve mahremiyet içeren durumlarda kurum adı kapatılmalıdır.

- Kurum izni gerekmektedir.
- Kurum izni gerekmemektedir.

Ahsen ÖZFİDAN  
(İmza)



