

T.C.
VAN YÜZÜNCÜ YIL ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ
KİMYA MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

***Abelmoschus Esculentus* L. BİTKİ EKSTRAKTINDAN SENTEZLENEN
PARTİKÜLLERİN KARAKTERİZASYONU VE İLAÇ GİDERİMİNDE
KULLANILMASI**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Rezan ORHAN
Danışman: Doç. Dr. Tuba ERŞEN DUDU
İkinci Danışman: Doç. Dr. Duygu ALPASLAN

VAN – 2023

T.C.
VAN YÜZÜNCÜ YIL ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ
KİMYA MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

***Abelmoschus Esculentus* L. BİTKİ EKSTRAKTINDAN SENTEZLENEN
PARTİKÜLLERİN KARAKTERİZASYONU VE İLAÇ GİDERİMİNDE
KULLANILMASI**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Rezan ORHAN

Bu çalışma Van YYÜ Bilimsel Araştırma Projeleri Koordinasyon Birimi tarafından
FYL 2022-10037 No'lu proje ile desteklenmiştir.

VAN – 2023

KABUL VE ONAY SAYFASI

Van Yüzüncü Yıl Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı'nda Doç.Dr.Tuba ERŞEN DUDU danışmanlığında, Rezan ORHAN tarafından sunulan “*Abelmoschus Esculentus* L. Bitki Ekstraktından Sentezlenen Partiküllerin Karakterizasyonu ve İlaç Gideriminde Kullanılması” başlıklı bu çalışma Lisansüstü Eğitim ve Öğretim Yönetmeliği'nin ilgili hükümleri gereğince 26/09/2023 37-1 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından oy birliği ile başarılı bulunmuş ve Yüksek Lisans tezi olarak kabul edilmiştir.

Başkan: Doç. Dr. Şeyda TAŞAR

İmza:

Üye: Doç. Dr. Tuba ERŞEN DUDU

İmza:

Üye: Dr. Öğr. Üyesi Şakir YILMAZ

İmza:

Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulu'nun /.... /..... tarih ve sayılı kararı ile onaylanmıştır.

İmza

.....

Enstitü Müdürü

ETİK BEYAN

Tez içindeki bütün bilgilerin etik davranış ve akademik kurallar çerçevesinde elde edilerek sunulduğunu, ayrıca tez yazım kurallarına uygun olarak hazırlanan bu çalışmada bana ait olmayan her türlü ifade ve bilginin kaynağına eksiksiz atıf yapıldığını bildiririm.

İmza

Rezan ORHAN



ÖZET

ABELMOSCHUS ESCULENTUS L. BİTKİ EKSTRAKTINDAN SENTEZLENEN PARTİKÜLLERİN KARAKTERİZASYONU VE İLAÇ GİDERİMİNDE KULLANILMASI

ORHAN, Rezan

Yüksek Lisans Tezi, Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı

Danışman: Doç. Dr. Tuba ERŞEN DUDU

İkinci Danışman: Doç. Dr. Duygu ALPASLAN

Eylül 2023, 59 sayfa

Hızlı nüfus artışı ve sanayileşme sonucu yaşanan iklim değişikliği su kaynaklarının kullanımında bazı sınırlamalar getirmektedir. Özellikle endüstriyel atık suların yeterince arıtılmadan alıcı ortama deşarj edilmesi sonucunda sınırlı olan temiz su kaynakları kirlenmekte, azalmakta ve kullanılamaz hale gelmektedir. Son yıllarda yaşanan covid-19 pandemisi nedeni ile çok fazla ilaç kullanılmış ve bu ilaçların bir kısmı çevresel sulara atık olarak karışmıştır. Çevreye verilen bu ilaçlar ise, kimyasal yapılarına bağlı olarak, ekolojik dengenin bozulmasına ve buldukları ortamdaki doğal olayların doğrudan ya da dolaylı olarak engellenmesine yol açabilmektedirler. Bu bileşiklerin zararlı etkilerinden korunmak için ilaç atıklarını içeren atık suların arıtımı oldukça büyük önem arz etmektedir. Tüm ekosistemi tehdit eden bu kirleticiler göz önüne alınarak, bu tez çalışmasında *Abelmoschus esculentus* L. (Ae, bamyas, okra) bitki atıklarından elde edilen Ae ekstratı kullanarak emülsiyon ortamında redoks polimerizasyon tekniği ile ilk kez Ae/metal partikülleri sentezlendi ve parasetamol ilacının çevresel sulardan giderimi üzerindeki etkinliğini incelemek için laboratuvar şartlarında sorpsiyon deneyleri gerçekleştirildi. Kadmiyum ve bakır iyonları polimer sentezinde partikülün metal kısmını oluşturmak için seçildi. Daha sonra Fourier Transform Infrared Spektrofotometre (FT-IR), Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM), Termogravimetrik Analiz cihazı (TGA), Brunauer–Emmett–Teller Yüzey Alanı Ölçüm Cihazı (BET) ve Parçacık Boyutu ve Zeta Potansiyeli Ölçüm Cihazı (Zeta Sizer) kullanılarak yapısal karakterizasyonları yapıldı. Farklı parasetamol konsantrasyonlarında (mg/L), farklı pH değerlerinde, farklı sıcaklık ortamlarında (°C), farklı partikül miktarlarında (mg) ve farklı partikül türlerinde sorpsiyon deneyleri gerçekleştirildi ve partiküllerin parasetamol sorpsiyon performansları incelendi. Aynı zamanda sorpsiyon izotermi ve termodinamik parametreler açısından parasetamol sorpsiyonu modellendi. Yapısal karakterizasyon analizleri ile Ae/metal içerikli polimerik partiküllerin başarılı bir şekilde sentezlendiği gözlemlendi. Sulu ortamdan parasetamol ilaç gideriminde etkili ve başarılı sonuçlar vermesi nedeniyle sentezlenen partiküllerin sorpsiyon deneylerinde mevcut malzemelerle kıyaslanabileceği öngörülmektedir.

Anahtar kelimeler: *Abelmoschus Esculentus*, Farmasötik kirleticiler, Polimer, Sorpsiyon

ABSTRACT

CHARACTERIZATION OF PARTICLES SYNTHETIC FROM *ABELMOSCHUS ESCULENTUS* L. PLANT EXTRACT AND USAGE IN DRUG REMOVAL

ORHAN, Rezan

M.Sc. Thesis, Department of Chemical Engineering

Supervisor: Assoc. Prof. Dr. Tuba ERŞEN DUDU

Second Supervisor: Assoc. Prof. Dr. Duygu ALPASLAN

September 2023, 59 pages

Climate change as a result of rapid population growth and industrialization imposes some limitations on the use of water resources. In particular, as a result of the discharge of industrial wastewater into the receiving environment without being sufficiently treated, the limited clean water resources are polluted, reduced, and become unusable. Due to the COVID-19 pandemic in recent years, too many drugs have been used and some of these drugs have been mixed into environmental waters as waste. These drugs, which are given to the environment, depending on their chemical structures, may lead to the deterioration of the ecological balance and the direct or indirect prevention of natural events in the environment they are in. To protect against the harmful effects of these compounds, the treatment of wastewater containing pharmaceutical wastes is of great importance. Considering these pollutants that threaten the entire ecosystem, in this thesis, Ae/metal particles were synthesized for the first time by redox polymerization technique in emulsion media, using Ae extract obtained from plant wastes of *Abelmoschus esculentus* (Ae, okra, okra). At the same time, sorption experiments were carried out under laboratory conditions to examine the effectiveness of these particles on the removal of paracetamol from environmental waters. Cadmium and copper ions were chosen to form the metal part of the particle in polymer synthesis. Later, Structural characterizations were performed using Fourier Transform Infrared Spectrophotometer (FT-IR), Scanning Electron Microscope (SEM), Thermogravimetric Analyzer (TGA), Brunauer–Emmett–Teller Surface Area Meter (BET), and Particle Size and Zeta Potential Meter (Zeta Sizer). Sorption experiments were carried out at different paracetamol concentrations (mg/L), different pH values, different temperature environments (°C), different particle amounts (mg), and different particle types, and the paracetamol sorption performances of the particles were examined. At the same time, paracetamol sorption was modeled in terms of sorption isotherms and thermodynamic parameters. It was observed that Ae/metal-containing polymeric particles were successfully synthesized by structural characterization analyses. The synthesized particles are predicted to be compared with existing materials in sorption experiments since they give effective and successful results in paracetamol drug removal from aqueous media.

Keywords: *Abelmoschus Esculentus*, Pharmaceutical contaminants, Polymer, Sorption



TEŐEKKÜR

Yüksek lisans öğrenimim süresince bilgi ve tecrübesiyle bana yol gösteren, tezimin yönlendirilmesi ve yürütülmesi sırasında büyük emeđi geçen ve yakın ilgisiyle beni sürekli motive eden sayın hocam Doç. Dr. Tuba ERŐEN DUDU'ya teşekkür ederim. Aynı zamanda çalışmalarımın her aşamasında yanımda olan, emeđi ve anlayışı için ikinci danışmanım Doç. Dr. Duygu ALPASLAN'a teşekkür ederim.

Çalışmalarım sırasında büyük bir özen ile desteklerini esirgemeyen kıymetli arkadaşlarım Abdullah TURAN ve Mustafa YAVUZCANLI'ya teşekkür ederim.

Çalışmalarımı FYL-2022-10037 no'lu proje ile destekleyen Van Yüzüncü Yıl Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Başkanlığı'na teşekkür ederim.

Öğrenim hayatım boyunca bana destek olan sevgisini ve güvenini esirgemeyen aileme teşekkür ederim.

2023

Rezan ORHAN



İÇİNDEKİLER

Sayfa

ÖZET	i
ABSTRACT	iii
TEŞEKKÜR	v
İÇİNDEKİLER	vii
ÇİZELGELER LİSTESİ	xi
ŞEKİLLER LİSTESİ	xiii
SİMGELER VE KISALTMALAR	xv
1. GİRİŞ.....	1
1.1 İlaçlar Hakkında Genel Bilgi	2
1.2 İlaçların Çevrede ve Alıcı Ortamda Davranışları	3
1.3 Parasetamol.....	4
1.4 Polimerik Malzemeler	5
1.4.1 Kimyasal Özelliklerine Göre Sınıflandırma	6
1.4.1.1 Kimyasal Bileşenine Göre	6
1.4.1.2 Kaynağına Göre	6
1.4.1.3 Zincir Şekline Göre	7
1.5 <i>Abelmoschus Esculentus</i> L. (Bamya)	7
1.6 Sorpsiyon	8
1.6.1 Sorpsiyon Çeşitleri	9
1.6.1.1 Sorban Özellikleri	10
1.6.1.2 pH.....	10
1.6.1.3 Sıcaklık.....	11
1.7 Atıksu Arıtımında Sorpsiyon	11
2. KAYNAK BİLDİRİŞLERİ	13
3. MATERYAL VE YÖNTEM.....	17
3.1 Materyal.....	17
3.1.1 Kullanılan Kimyasal Maddeler	17
3.1.2 Analizde Kullanılan Cihazlar	17
3.1.2.1 Fourier Transform İnfrared Spektrofotometre (FT-IR).....	17
3.1.2.2 Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM)	18
3.1.2.3 Termogravimetrik Analiz (TGA).....	18
3.1.2.4 Brunauer–Emmett–Teller Yüzey Alanı Ölçüm Cihazı (BET) .	18

3.1.2.5	Parçacık Boyutu ve Zeta Potansiyeli Ölçüm Cihazı (Zeta).....	18
3.1.2.6	UV-VİS spektrofotometre (UV-VIS).....	19
3.1.2.7	pH Metre.....	19
3.1.2.8	Isıtıcı Manyetik Karıştırıcı	19
3.1.2.9	Etüv	19
3.1.2.10	Hassas terazi	20
3.1.2.11	Santifirüj	20
3.2	Deneysel Yöntem.....	20
3.2.1	Bitki Ekstraktının Hazırlanması	20
3.2.2	Partikül Sentezi	20
3.3	Sorpsiyon Deneyleeri.....	23
3.3.1	Sorpsiyon İzotermleri ve Termodinamik Parametreler	25
4.	BULGULAR.....	29
4.1	Polimerik Partiküllerin Karakterizasyonu	29
4.1.1	Fourier Transform İnfrared Spektrofotometre Analizi (FT-IR).....	29
4.1.2	Taramalı Elektron Mikroskopisi (SEM) Analizi.....	31
4.1.3	Termogravimetrik (TGA) Analizi	33
4.1.4	BET Analizi	35
4.1.5	Parçacık Boyutu ve Yüzey Yükü (Zeta DLS) analizi	36
4.2	Parasetamol İlaç Sorpsiyonu.....	37
4.2.1	p(Ae)/Cu Temelli Partiküllerin Parasetamol Sorpsiyonu	37
4.2.1.1	p(Ae)/Cu Temelli Partikül Türünün Sorpsiyona Etkisi.....	37
4.2.1.2	p(Ae)/Cu Partikül Miktarının Sorpsiyona Etkisi	38
4.2.1.3	Parasetamol Başlangıç Konsantrasyonunun Sorpsiyona Etkisi	39
4.2.2	Çözelti pH Değerinin Sorpsiyona Etkisi	40
4.2.2.1	Sıcaklığın Sorpsiyona Etkisi.....	41
4.2.3	p(Ae)/Cd Temelli Partiküllerin Parasetamol Sorpsiyonu	42
4.2.4	p(Ae)/Cd Temelli Partikül Türünün Sorpsiyona Etkisi	42
4.2.4.1	p(Ae)/Cd Partikül Miktarının Sorpsiyona Etkisi	44
4.2.4.2	Parasetamol Başlangıç Konsantrasyonunun Sorpsiyona Etkisi	45
4.2.5	Çözelti pH Değerinin Sorpsiyona Etkisi	46
4.2.6	Sıcaklığın Sorpsiyona Etkisi	47
4.3	Sorpsiyon İzotermleri	48
4.4	Sorpsiyon Termodinamik Parametreleri.....	49

5. TARTIŞMA VE SONUÇ.....	51
KAYNAKLAR.....	55
ÖZ GEÇMİŞ.....	59



ÇİZELGELER LİSTESİ

Çizelge 3.1 Partikül sentezi ve adlandırmaları	23
Çizelge 3.2 Sorpsiyon izoterm modelleri	26
Çizelge 4.1 p(Ae), p(Ae)/Cd ve p(Ae)/Cu partiküllerinin gözenek yapı karakterizasyonu	36
Çizelge 4.2 p(Ae)/Cu ₃ , p(Ae)/Cu ₇ , p(Ae)/Cd ₆ ve p(Ae)/Cd ₇ partiküllerin parasetamol sorpsiyonu için izoterm sabitleri	49
Çizelge 4.3 Parasetamolün p(Ae)/Cu ₃ , p(Ae)/Cu ₇ , p(Ae)/Cd ₆ , ve p(Ae)/Cd ₇ partikülleri üzerine sorpsiyonunda farklı sıcaklıklardaki termodinamik parametreler	50





ŞEKİLLER LİSTESİ

Şekil 1.1 Çevrede en çok rastlanan farmasötik grupları (Karaalp, 2010)	3
Şekil 1.2 Parasetamolün yapısı	4
Şekil 4.1 p(Ae), p(Ae)/Cd ₁ ve p(Ae)/Cd ₁₀ temelli partiküllerin FT-IR spektrumu	30
Şekil 4.2 (Ae), p(Ae)/Cu ₁ ve p(Ae)/Cu ₁₀ temelli partiküllerin FT-IR spektrumu	31
Şekil 4.3 (a) p(Ae), (b) p(Ae)/Cu ₁ ve (c) p(Ae)/Cu ₁₀ partiküllerinin SEM görüntüleri..	32
Şekil 4.4 (a) p(Ae)/Cd ₁ ve (b) p(Ae)/Cd ₁₀ partiküllerinin SEM görüntüleri	33
Şekil 4.5 p(Ae), p(Ae)/Cd ₁ ve p(Ae)/Cd ₁₀ temelli partiküllerin termal davranışı	35
Şekil 4.6 p(Ae), p(Ae)/Cu ₁ ve p(Ae)/Cu ₁₀ temelli partiküllerin termal davranışı	35
Şekil 4.7 p(Ae)/Cu temelli partikül türünün parasetamol sorpsiyonuna etkisi	38
Şekil 4.8 p(Ae)/Cu ₃ ve p(Ae)/Cu ₇ partikül miktarının parasetamol sorpsiyonuna etkisi	39
Şekil 4.9 p(Ae)/Cu ₃ ve p(Ae)/Cu ₇ partikülleri için başlangıç konsantrasyonunun parasetamol sorpsiyonuna etkisi	40
Şekil 4.10 Farklı pH değerlerinin parasetamol sorpsiyonu üzerindeki etkisi	41
Şekil 4.11 Farklı sıcaklıkların parasetamol sorpsiyonu üzerindeki etkisi	42
Şekil 4.12 p(Ae)/Cd temelli partikül türünün parasetamol sorpsiyonuna etkisi	43
Şekil 4.13 p(Ae)/Cd ₆ ve p(Ae)/Cd ₇ partikül miktarının parasetamol sorpsiyonuna etkisi	44
Şekil 4.14 p(Ae)/Cd ₆ ve p(Ae)/Cd ₇ partikülleri için başlangıç konsantrasyonunun parasetamol sorpsiyonuna etkisi	45
Şekil 4.15 p(Ae)/Cd ₆ ve p(Ae)/Cd ₇ partiküllerin farklı pH değerlerinin parasetamol sorpsiyonu üzerindeki etkisi	47
Şekil 4.16 p(Ae)/Cd ₆ ve p(Ae)/Cd ₇ partiküllerin farklı sıcaklıkların parasetamol sorpsiyonu üzerindeki etkisi	48



SİMGELER VE KISALTMALAR

Bu çalışmada kullanılmış bazı simgeler ve kısaltmalar, açıklamalarıyla aşağıda sunulmuştur.

Simgeler	Açıklama
Ce	Konsantrasyon
mm	Milimetre
m	Metre
km	Kilometre
nm	Nanometre
dak	Dakika
M	Molarite
g	Gram
mg	Miligram
L	Litre
mL	Mililitre
µL	Mikrolitre
°C	Santigrat derece
K	Kelvin
kJ	Kilo joule
p	Poli
%	Yüzde
R²	Regresyon kararlılık indeksi
m/V	Kütle/Hacim



Kısaltmalar**Açıklama**

AC	Aktif Karbon
AKM	Askıda Katı Madde
APS	Amonyum Persülfat
ASA	Asetil Salisik Asit
Cd	Cadmiyum
Cu	Bakır
DNA	Deoksiribonükleik Asit
EGDMA	Etilenglikol Dimetakrilat
FT-IR	Fouriertransfrom İnfrared Spektrofotometre
GCN	Grafitik Karbon Nitrür
HCl	Hidroklorik Asit
KOİ	Kimyasal Oksijen İhtiyacı
NaOH	Sodyum Hidroksit
PAN	Poliakrilonitril
PC	Parasetamol
PE	Polietilen
PMMA	Polimetil Metakrilat
PNC	Polimerik Nanokompozitler
PPM	Part per million
PS	Polistiren
RPM	Rotation per minute (dakikada dönme)
SEM	Taramalı Elektron Mikroskop
TEMED	Tetrametilendiamin
TGA	Termogravimetrik Analiz
TOK	Toplam Organik Karbon
UV-VIS	Ultraviyole Görünür Bölge Spektroskopisi



1. GİRİŞ

Doğada bulunan kaynakların başında su gelmektedir. Suyu kirleticilerin karışması sonucunda suların fiziksel, biyolojik ve kimyasal özellikleri değişerek su kirliliğine neden olur. Böylece su kirliliği hem insan sağlığını hem de diğer canlıları tehdit ederek önemli bir çevre sorunu haline gelir. Su kirliliğine neden olan faktörlerin başında kentleşme, sanayileşme, nüfus artışı, kimyasal gübreler, tarım ilaçları ve mikro kirleticiler gelmektedir. Atık su ortamındaki kirleticiler; estetik kirliliğe, toksik reaksiyona neden olabilir ve suda yaşayan canlıların yaşam koşullarını bozabilir (Karaca, 2016). Son yıllarda özellikle mikro kirleticilerin sucul ekosisteme karışması ise insan ve çevre sağlığı açısından endişelerin artmasına neden olmaktadır. Başta tıbbi ilaçlar ve kişisel bakım ürünleri olmak üzere steroid hormonlar, endüstriyel kimyasallar, zirai ilaçlar, veteriner ilaçları ve poliaromatik hidrokarbonlar mikro kirleticilere örnektir. Mikro kirleticiler biyolojik arıtma metotlarına dirençlidir ve geleneksel atıksu arıtma tesislerinde sadece bir kısmı ya da hiç arıtılmadan alıcı ortamlara verilmektedirler. Mikro kirleticilerden farmasötik kimyasalların çeşitliliğinin ve kullanımının ilerleyen son zamanlardaki artışı bu kimyasalların ekosisteme girişi, ekosistemde bulunma süreçleri hem canlılar hem de çevreye olan etkileri ve giderimleri konusundaki araştırmaların artmasına neden olmaktadır (Soylu, 2020).

Bu elementlerin neden olduğu birçok kirletici atık suya karışmaktadır. Atık su ortamındaki kirleticiler; estetik kirliliğe, toksik reaksiyona neden olabilir ve suda yaşayan canlıların yaşam koşullarını bozabilir. Ayrıca su ortamından yararlanmak insan veya diğer canlılar için tehlikeli durumlara sebep olmaktadır (Karaca, 2016).

Günümüzde toksik maddelerin atıksulardaki biyolojik proseslerle giderimi oldukça zordur. Ancak ozonlama, klorlama, sorpsiyon (adsorpsiyon/absorpsiyon) gibi kimyasal ve fiziksel işlemler halen yaygın olarak kullanılmaktadır (Schroder 1998). Sorpsiyon yöntemi, yüksek verim, geniş uygulama alanı, kolay uygulama, düşük maliyet ve ikincil kirlilik oluşturmaması nedeniyle diğer yöntemlere göre daha avantajlı bir yöntemdir.

Son zamanlarda, sürdürülebilir malzemelerin kullanımına olan ihtiyacın artmasıyla birlikte, yenilenebilir kaynaklardan elde edilen polimerlerin kullanımına ilgi artmaktadır. Bu anlamda, son yıllarda biyolojik kökenli malzemelerin tıp, mühendislik

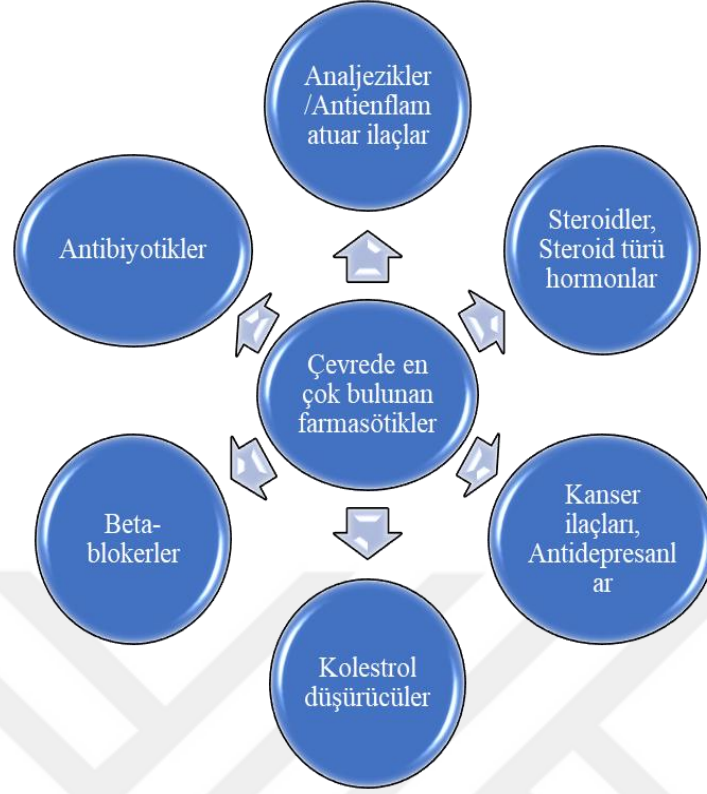
veya çevresel uygulamalarda kullanımına odaklanılmıştır. Dolayısıyla bu tez kapsamında, *Abelmoschus esculentus* L. (Ae, bamyas, okra) bitkisi, adsorptif, biyolojik olarak parçalanabilen ve toksik olmayan bir malzeme olduđu için, bitki ekstraktından sentezlenen partiküllerin çevresel kirleticilerin sulu çözeltilerden uzaklaştırılmasında kullanımını incelendi.

1.1 İlaçlar Hakkında Genel Bilgi

Mikro kirleticilerin çevresel sulardaki en büyük kaynağı evsel atıksulardır. Hastanelerden, eczanelerden ve marketlerden kaynaklanan farmasötikler, su ortamlarında sıklıkla görülür; bu ilaçların bazıları reçetesiz temin edilebilir (örneğin, parasetamol asetaminofen, ibuprofen, naproksen ve aspirin). Bu ilaçlar insan ve hayvan sağlığı için kullanılmasına rağmen, vücutta tamamen metabolize edilmezler. Vücutta kalan farmasötikler insanlar ve hayvanlar tarafından vücuttan atılıp atıksulara karışırlar. Üretim süreçlerinde sucul ortama ulaşan ve son kullanma tarihi geçmiş ilaçlardan kaynaklanan atıklar da atık ilaç kaynakları olabilir (Kim ve Zoh, 2009).

İlaçlar, çevresel kirleticilerin en önemli gruplarından biri olarak sınıflandırılmıştır. Yaygın ilaçlar antibiyotikler, analjezikler ve antiinflamatuvarlar, ağrı kesiciler ve hormonlardır. Bu kimyasallar hastanelerin, ilaç fabrikalarının ve çöplüklerin atık sularında görülür. Atık sulardaki ilaçların konsantrasyonu düşük olmasına rağmen, su sistemine sürekli salınmaları yeni bir çevre sorununa neden olmaktadır (Ahmed, 2017).

Çevrede en çok rastlanan farmasötik grupları Şekil 1’de gösterilmektedir (Selvi, 2019).



Şekil 1.1 Çevrede en çok rastlanan farmasötik grupları (Karaalp, 2010)

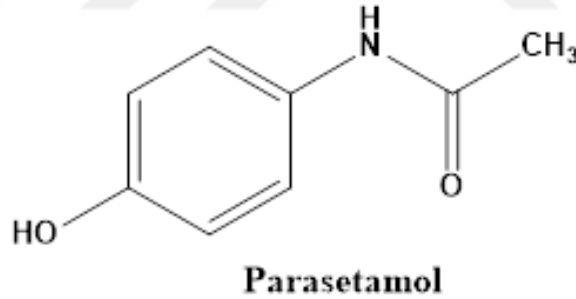
1.2 İlaçların Çevrede ve Alıcı Ortamda Davranışları

İlaçlar insan ve hayvan sağlığı için vazgeçilmezdir. Kullanımdan sonra aktif maddeler ve metabolitleri atılır, daha sonra farklı yollardan çevreyi etkiler. Yüzey sularında, yeraltı sularında, içme sularında, tortularda, kanalizasyon çamurlarında ve gübrede bulunurlar. Birincil kaynakları, sağlık hizmeti atık suları, evsel atık sular, çamur ve düzenli depolama alanlarından gelen sızıntılardır. Atık su arıtma tesisleri modern ilaçları ve bunların metabolitlerini etkili bir şekilde parçalayamadığından, antibiyotiğe dirençli mikroorganizmaları uzaklaştıramaz, bu bileşikler atık su arıtma tesisi atık suyunda bulunur ve çamurda emilir, kompost haline getirilir daha sonra tarımda uygulanır. Farmasötiklerin çevreye giren miktarları, farmasötik etkin maddelerin orijini, metabolizma ve transformasyon yolları, etkin maddelerin, metabolitlerin ve transformasyon ürünlerinin sucul organizmalar üzerindeki etkileri ve bunların çevrede kalıcılığı veya bozuna bilirliliği ile ilgili bilgi eksikliği devam etmektedir (Mackulak vd., 2019).

Farmasötik bileşiklere sadece su ortamlarında rastlanmaz. Yapılan araştırmalar sonucu sedimentlerde de biriktiği görülmüştür. Arıtma tesisi çıkış sularının ve çamurlarının tarım alanlarında kullanılmasıyla farmasötik bileşikler önce toprağa oradan da yeraltı suyuna ulaşabilmekte hatta bitkilerde bile bu bileşiklere rastlanabilmektedir. Farmasötik bileşikler ayrıca, atıksu içerisindeki mikrobiyal denge üzerinde de olumsuz etkilere sebep olmaktadır. Bu bileşikler kompleks oldukları için biyolojik olarak ayrışaabilirlikleri zordur ve kimyasal olarak kararlıdır. Bundan dolayı uzun yıllar doğada bulunabilirler (Şahan, 2007).

1.3 Parasetamol

Dünyada en çok kullanılan analjezik olan asetaminofen (N-asetil-p-aminofenol, parasetamol, APAP) Türkiye’de 300’den fazla ilaç preparatının yapısında bulunur. Tedavi dozlarında alındığında parasetamolün %90’ı karaciğerde sülfat ve glukronit ile konguje edilerek metabolize olur. Bu metabolitler daha sonra idrarla atılır. Yaklaşık %2’si değişmeden idrarla atılır. Ucuz ve kolay ulaşılabilir (Mücahit, 2016).



Şekil 1.2 Parasetamolün yapısı

Genelde olarak hafif ve orta şiddetli ağrı ve ateşi düşürmek için kullanıldığı halde ameliyat sonrasında oluşan daha şiddetli ağrıların tedavi uygulamalarında da kullanılmaktadır. Yaygın olarak 300-500 mg arasında değişen dozlarda kullanımı bulunmaktadır. Aynı zamanda mide mukozasıyla teması sonucu, karaciğer metabolizmasını bozması, alerji ve iştah kaybı gibi yan etkilere neden olmuştur. Hidrojele yüklenip harici kullanıldığı durumlarda ise iltihaplanmayı ve ağrıyı hafifletici

etkilere sahiptir. Bununla birlikte karaciğer toksisitesine sebep olmadığından dolayı vucüt için oldukça güvenlidir (Madakbaş ve Demir, 2019).

Su ortamında parasetamol içeren farmasötik ilaçların varlığı, düşük düzeyde olsada toksisiteleri ve fizyolojik etkileri nedeniyle ortaya çıkan kirleticiler olarak kabul edilebilir. Parasetamol evsel, endüstriyel ve hastane atık sularında bulunabilir. Parasetamolün çevresel etkileri ve toksisiteleri bildirilmiştir (Bolong vd., 2009). Ancak arıtma tesislerinde atıksudan toplam kirleticileri giderebilecek bir arıtma yöntemi bulunmamaktadır. Bu nedenle, fazla bulunan Parasetamol doğal su ortamı üzerinde olumsuz bir etkiye sahiptir, su ve ekosisteme zarar verebilir (Cai vd., 2003)

1.4 Polimerik Malzemeler

Polimer, Yunanca kökenli çok küçük parça anlamında kullanılan -meros ve çok anlamında kullanılan -poly kelimelerinden türetilmiştir. Son yıllarda polimerler farklı uygulamalarda çeşitli amaçlarla kullanılarak teknolojinin ilerlemesi ile bilimsel alanlardaki etkinliğini çok fazla arttırmaktadır. Polimerler; kolay şekillendirilebilen, daha az maliyetli, hafif, çeşitli amaçlarda kullanılabilen, mekanik mukavemeti fazla ve kimyasal olarak inert maddelerdir. Bu ayırt edici yapılarından dolayı polimerler; endüstri, kimya, tekstil, medikal alanlarda tıbbi malzeme bileşeni gibi farklı dallarda kullanılmaktadır. İnsanlık tarihi boyunca giyecek, yiyecek, inşaat ve benzeri temel gereksinimlerini karşılamak amacıyla ağaç, ipek, pamuk, yün, kauçuk ve deri gibi doğal polimerik maddeler kullanmıştır. Bilim adamları tarafından yapılan çalışmalar sonucunda sentetik ve yarı sentetik polimerik maddeler bulunmuş ve bu polimerik maddeler günlük yaşamımızda yerini almaya başlamıştır (Demiral, 2020).

Biyo bazlı polimerlerin tarihi, sentetik olanların tarihinden çok daha eskidir; ancak doğal polimerlerin daha düşük performansları ve daha yüksek maliyetleri, geçmişte sentetik olanların kullanımının artmasına neden olmuştur.

Polimerler; kimyasal yapısı, polimer zincirinin şekli, bileşiklerin kaynağı, termal davranışı, tekrar eden birimin bileşimi, polimer zincirinin yapısı, polimerizasyon yöntemleri, monomer türleri ve mekanik özelliklerine göre çeşitli sınıflara ayrılır.

1.4.1 Kimyasal Özelliklerine Göre Sınıflandırma

Polimerler kimyasal özelliklerine göre şu şekilde sınıflandırılabilir;

- Kimyasal Bileşene Göre
 - ✓ Organik
 - ✓ İnorganik
- Kaynağa göre
 - ✓ Doğal
 - ✓ Yarı sentetik
 - ✓ Sentetik
- Zincir Şekline Göre
 - ✓ Dallanmış
 - ✓ Çapraz
 - ✓ Doğrusal (Demiral, 2020).

1.4.1.1 Kimyasal Bileşenine Göre

Organik polimerler, yapısında genelde karbon atomu ve hidrojen atomu bulunan, ana zincirinde ise karbon atomları içeren polimerlerdir. Selüloz, doğada çok fazla bulunan organik polimerlere örnektir. İnorganik polimerler, ana zincirindeki karbon atomunun yerine silisyum, fosfor, kükürt gibi atomları içeren polimerlerdir. Organik polimerlerin ısı ve mekanik direnci, inorganik polimerlere göre daha düşüktür. Boratlar, silikatlar ve silikonlar inorganik polimerlere örnektir (Demiral, 2020).

1.4.1.2 Kaynağına Göre

Doğal, sentetik ve yarı sentetik olarak polimerler kaynağına göre üç gruba ayrılır. Doğal polimerler ise hayvan ve bitki gibi canlı organizmalarda bulunan polimerlerdir. Bu polimerler farklı yapıdaki çeşitli bileşenin toplanmasıyla oluşur. Hayati faaliyetleri sürdürebilmek için önemli rolü olana deoksirübo nükleik asit (DNA),

ribonükleik asit (RNA), enzimler ve proteinler de doğal polimerlere örnek oluşturur. Bunların yanı sıra nişasta, selüloz, ipek, yün ve doğal kauçuk da doğal polimerlere örnek verilebilir.

Doğal polimerlerin yapılarının değiştirilmesiyle yarı sentetik polimerler oluşturulur. Selülozun nitrolanmasıyla 1868'de J.W. Hyatt tarafından sentezlenen selüloit yarı sentetik bir polimer örneğidir. Sentetik polimerler, sentetik işlemlerle oluşturulan polimerlere denir. Polimerlerin çeşitliliğinde özellikle II. Dünya savaşında sonra bir yükseliş başlamıştır. Bunun nedeni ise, polimer kimyasındaki gelişmelerin artmasıyla değişik plastik, lif ve elastomer çeşitlerinin sentetik işlemlerle sentezlenmesidir. Polivinilklorür (PVC), polistiren (PS), polipropilen (PP), polimetil metakrilat (PMMA) polimerler sentetik polimerlere örnektir (Demiral, 2020).

1.4.1.3 Zincir Şekline Göre

Dallanmış, doğrusal ve çapraz bağlı olarak polimerler zincir şekline göre üç gruba ayrılır. Doğrusal polimerler, karbon atomlarının birbirine kimyasal bağlarla bağlanmasıyla oluşan uzun ve düz zincirli polimerin ana zincirini oluşturan polimerlere denir. Bu polimerlerin ana zincirleri, başka zincirlere kovalent bağlarla bağlanmamıştır ve ana zincirin üzerinde bulunan karbon atomlarında sadece yan gruplar bulunur. Zincir yapılarına göre polar ya da apolar çözücülerde çözünen doğrusal polimerler aynı zamanda eritilip defalarca yeniden şekillendirilebilirler. Polivinilklorür (PVC), polietilen (PE), poliakrilonitril (PAN) polimerler doğrusal polimerlere örnek verilir (Demiral, 2020).

1.5 *Abelmoschus Esculentus* L. (Bamya)

Hanım parmağı ve bamya olarak bilinen bamya meyvesi (*Abelmoschus esculentus* L.) önemli bir sebze mahsulüdür. Afrika'ya özgü yıllık bir bitkidir ve dünyanın farklı ülkelerinde, özellikle tropikal, alt tropikal ve ılıman bölgelerde yetiştirilmiştir (Xia vd., 2015). Son yıllarda *Abelmoschus esculentus* L., Kuzey ve Güney Çin'de de yaygın olarak yetiştirilmektedir (Jiang vd., 2017). *Abelmoschus esculentus* L. meyveleri çok çeşitli tıbbi değere sahip ve birçok hastalık ve

rahatsızlıkları kontrol etmek için kullanılmıştır (Sabitha vd., 2011). *Abelmoschus esculentus* L. meyvesinin sağlığı geliştirici etkileri, çeşitli biyolojik aktivitelerinden kaynaklanmaktadır. Farmakolojik çalışmalar, *Abelmoschus esculentus* L. meyvesinin antioksidan, anti-diyabetik, anti-hiperlipidemik ve anti hiperglisemik etkiler gibi çeşitli biyoaktivitelere sahip olduğunu göstermiştir. Genel olarak fenolik bileşikler, *Abelmoschus esculentus* L. meyvesindeki çeşitli biyoaktivitelerden sorumlu olan ana biyoaktif bileşenler olarak kabul edilmektedir. Bununla birlikte, bamyra meyvelerinin farklı olgunlaşma evrelerinde fenolik bileşiklerin değişimleri, antioksidan kapasiteleri ve sindirim enzimleri (pankreatik lipaz, a-glukosidaz ve a-amilaz) üzerindeki inhibitör etkileri üzerine yapılan araştırmalar çok az araştırılmıştır. Bu nedenle, olgunlaşma sırasında *Abelmoschus esculentus* L. meyvelerinde fenolik bileşiklerin birikme modelini iyi anlamak ve sağlık açısından yararlı fenolik bileşikler düzeyi yüksek *Abelmoschus esculentus* L. meyveleri elde etmek için, fizikokimyasal özellikler, fenolik profiller, antioksidan kapasiteler ve farklı olgunlaşma aşamalarında bamyra meyvelerinin sindirim enzimleri (pankreatik lipaz, a-glukosidaz ve a-amilaz) üzerindeki inhibitör etkileri sistematik olarak incelenmiştir. Ayrıca, *Abelmoschus esculentus* L. meyveleri dikkate değer antioksidan kapasiteler ve inhibe edici etkiler gösterir (Shen vd., 2019).

1.6 Sorpsiyon

Sıvı veya katıdaki iyonlar, atomlar veya moleküller arası kuvvetler, etrafındaki diğer iyonlar veya moleküller tarafından dengelenirken, yüzeydeki bazı kuvvetler dengelenmez. Bu nedenle katı ve sıvı yüzeyler temas ettikleri gazları veya sıvıları çekerler. Maddelerin bu kuvvetlerle katı veya sıvı yüzey üzerine yapışmasına adsorpsiyon, iç bölgede yapışmasına (emilimine) ise absorpsiyon denir. Sorpsiyon durumunda ara yüzeye tutunan maddeye emilen madde, bu yüzeye de soğurucu denir. Sorpsiyonu etkileyen birçok faktör vardır. Bunların başlıcaları; sıcaklık, pH, absorplanan madde konsantrasyonu, tuz türü konsantrasyonu, absorbent gözenek boyutu ve sorbent yüzey alanıdır (Erşen, 2018).

Sorpsiyon, bir katı veya sıvı (sorban) yüzeyinde bir gaz veya sıvı çözünen birikerek moleküler veya atomik bir film (sorbit) oluşturduğunda meydana gelen bir işlemdir. Sorpsiyon çoğu doğal fiziksel, biyolojik ve kimyasal sistemde etkindir ve aktif

kömür, sentetik reçineler ve su arıtma gibi endüstriyel uygulamalarda yaygın olarak kullanılır. Bu yöntemler arasında sorpsiyon, basitliği ve maliyet etkinliği nedeniyle şu anda atık su arıtımı için çok uygun bir yöntem olarak kabul edilmektedir (Lakherwal, 2014).

Sorpsiyon işlemlerinde yaygın olarak kullanılan sorbentler;

- Aktif karbon
- Kil
- Zeolit
- Kitosan
- Gaz beton (Pomza taşı)
- Reçine
- Turba yosunu
- Petrol atıkları
- Lastik atıkları
- Ağaç kabukları ve tanince zengin materyaller
- Lignin
- Pirinç kabuğu atıkları
- Fındık ve ceviz kabuğu atıkları
- Deniz yosunu ve alginat
- Polimerler

1.6.1 Sorpsiyon Çeşitleri

Sorpsiyon, sorplananı yüzeyde tutan kuvvetlerin çeşitlerine göre fiziksel sorpsiyon (Van der Waals adsorpsiyonu) ve kimyasal sorpsiyon olarak ikiye ayrılır (Nas, 2006).

Fiziksel bağlanmada meydana gelen etkileşim, zayıf bağlar ve çekici kuvvetlerin bir sonucu olarak ortaya çıkar. Fiziksel sorpsiyon, sorbe edilen moleküller ile sorban moleküller arasındaki Van der Waals çekimi sonucu meydana gelen, tek veya çok katmanlı bir işlem olarak gerçekleşen tamamen geri dönüşümlü bir işlemdir (Erşan, 2014).

Sorbe edilen moleküller ile sorban arasındaki kimyasal bağlanma kuvvetlerinin bir sonucu olarak meydana gelen sorpsiyon, kimyasal sorpsiyondur. Tersinir değildir ve tek bir tabaka halinde oluşur (Erşan, 2014)

Çevrede ve doğada bol miktarda bulunan organik ve inorganik maddelerin veya insan kaynaklı atıkların ve ürün fazlalarının atık arıtımında kullanılması ekonomiye ve çevreye katkı sağlayabilir. Sorpsiyon, düşük maliyeti ve çevre dostu olması sebebiyle atık arıtımında kullanılan edilen ileri bir arıtma prosesidir (Şeker, 2007).

1.6.1.1 Sorban Özellikleri

Yüzey alanı sorbanın en önemli özelliğidir. Sorpsiyon, sorbatın sorpsiyonunu sağlayan yüzey alanı ile doğru orantılıdır. Yani, yüzey alanı arttıkça sorpsiyonda artar. Gözenekliliğin yüzey alanını artırıcı etkisi olduğundan gözenekliliği yüksek malzemeler daha fazla tercih edilir. Bununla birlikte, gözenek çapı, sorbat moleküllerinin çapıyla uyumlu olmalıdır. Sorpsiyon hızı gözenek difüzyonu ile belirlenirse, sorpsiyon sınırlı olabilir çünkü çok fazla gözeneklilik direnci artıracaktır. Başka önemli bir özellik ise partikül boyutudur. Birçok çalışma partikül boyutunun küçülmesiyle sorpsiyon kapasitesinin arttığını göstermektedir (Erdoğan, 2005).

1.6.1.2 pH

Çözeltide bulunan sorbat iyonunun türünü, ortamın pH değeri belirler. Bu nedenle yüzey ile etkileşimi direk etkiler. Dolayısıyla hidrojen ve hidroksil iyonları sorban yüzeyindeki merkezlerde tutulur, dolayısıyla pH'dan etkilenir. Bir iyonun adsorpsiyonu, belirli bir pH aralığında veya değerinde maksimum değerine gelir. Aynı iyonun farklı bir sorban üzerinde tutulması sürecinde, bu pH değeri genellikle değişir. Aynı durum farklı metal iyonları için de geçerlidir (Erdoğan, 2005). Parçacık yüzeyi, içinde olduğu ortamın bazik veya asidik yapısına göre fonksiyonel gruplar içerir. Çözelti fazında emilen madde, katı faz yüzeyindeki gruplar üzerinde tutulur. Genel olarak maddelerin nötr olduğu pH değerlerinde emilim oranı artar. Bunun nedeni hidrojen ve hidroksit iyonlarının çok güçlü soğurma yetenekleridir. Ortamda çok fazla hidrojen ve hidroksit iyonu varsa bu iyonlar emilen maddelerle yüzeye bağlanmak için

rekabete girecektir. Dolayısıyla, yüzeyin emilen madde molekülleri ile kaplanma riskinin daha az olduğu anlamına gelir. Bu nedenle emilim de nötr duruma göre daha az olur (Erşen, 2018).

1.6.1.3 Sıcaklık

Sıcaklığın sorpsiyon üzerindeki etkisi sorpsiyonun ekzotermik veya endotermik olmasına göre değişecektir. Genellikle ekzotermik olan sorpsiyon reaksiyonları sıcaklıkla ters orantılıdır. Yani sıcaklık arttıkça sorpsiyon kapasitesi azalır (Erdoğan, 2005). Eğer reaksiyon endotermik yani ortamdaki ısı alan bir reaksiyon ise sıcaklık arttıkça sorpsiyon artacaktır (Erşen, 2018)

1.7 Atıksu Arıtımında Sorpsiyon

Atıksu arıtımında sorpsiyonun uygulanmasının nedeni, arıtılan atıksuyun daha kaliteli arıtılabilmesidir. Koku, askıda katı maddeler, organik maddeler, boyarmaddeler ve ağır metaller gibi kirleticilerin giderilmesinde oldukça etkili bir yöntemdir. Yüksek hacimli atıksularda düşük konsantrasyonlar da bulunan kirleticilerin arıtımı için düşük maliyetli bir yöntem olması sorpsiyonu tercih nedeni yapmaktadır.

Sorpsiyon işleminin başka bir avantajı da klasik atıksu arıtma tesislerinde oluşan fazla çamurun burada görülmemesidir. Daha önce yapılmış çalışmalara bakıldığında sorbent olarak çoğunlukla granül veya toz aktif karbonun tercih edildiği görülmektedir. Bununla birlikte, aktif karbon, saflaştırma maliyetini büyük ölçüde artırır. Maliyeti düşürmek için başka sorbanlar aranmış ve birçok farklı sorban kullanılmıştır. Sorpsiyon da doğal ve çeşitli sentetik sorbanlar kullanılabilir. Sorpsiyon yoluyla su arıtımında en yaygın kullanılan doğal sorbanlar, aktif karbon, alümina, dolgu toprağı, iyon değiştirici reçineler, bazik makro gözenekli, silika jel ve aktif silikadır. Bunların yanı sıra mısır koçanı, pirina, ağaç kabuğı, çam kozalağı, sönmemiş kireç, ayçiçeğı kabuğı, ceviz kabuğı, fındık kabuğı, odun kömürü, aktif kil gibi daha ucuz hammaddelerden üretilen doğal sorbanlar da kullanılmıştır (Selvi, 2019).

Sorpsiyon yöntemi su ve atıksu arıtımında;

- ❖ Biyolojik arıtma ile uzaklaştırılmayan pestisit ve ilaçların sulardan uzaklaştırılmasında,
- ❖ İstenmeyen tat ve kokuların giderilmesinde,
- ❖ Deterjan kalıntılarının sudan uzaklaştırılmasında,
- ❖ Endüstriyel atıksulardan kalıcı organik madde ve renk gideriminde,
- ❖ TOK ve KOİ ihtiyacını azaltmada,
- ❖ Bazı ağır metalleri uzaklaştırmasında kullanılır (Şeker, 2007).



2. KAYNAK BİLDİRİŞLERİ

Farmasötik maddelerin sorpsiyonu ile ilgili yapılan çalışmaları şu şekilde özetlenebilir:

Yaygın olarak kullanılan parasetamol, analjezik (ağrı kesici) ve antipretik (ateş düşürücü) etkisi olan farmasötik bir bileşiktir. Yapılan bu çalışmada, kesikli bir prosesinde aktif çamur biyokütlesi (AKM) kullanılarak sentetik atık sudan parasetamol giderim verimi incelenmiştir. Bu çalışmada başlangıç parasetamol konsantrasyonları olarak 2.5, 5.0, 7.5, 10.0 ve 12.5 mg/L; biyokütle konsantrasyonları ise 1000, 2000, 3000, 4000 mg/L olarak deney laboratuvar koşullarında gözlemlenmiştir. Parasetamol aktif çamura eklendikten sonra, çamurun fiziko-kimyasal şartlara 11 gün içinde uyum sağladığı görülmüştür ve yüksek parasetamol giderim verimi gözlemlenmiştir. Biyokütle miktarının artırılması aktif çamur prosesindeki giderim oranının arttığını göstermiştir. Sonuçlar en uygun parasetamol giderim kinetiğinin birinci derece reaksiyon kinetiğine 0,9928'lik regresyon katsayısıyla uyum sağladığı tespit edilmiştir (Balcı vd., 2012).

Tıbbi alanlarda yaygın olarak kullanılan bir ilaç olan Parasetamol (PC), genellikle kullanılmayan kısmı suya karışarak insan sağlığına zarar verir. Bu nedenle, PC'yi atık sudan etkin bir şekilde uzaklaştırabilen fotokatalizörlerin geliştirilmesi zorunludur. Grafitik karbon nitrür (GCN), enerji ve çevre kirliliği kontrolü alanında önemli bir fotokatalizör sınıfını oluşturur. Bu çalışmada, atık sudaki PC'nin fotodegradasyonunu geliştirmek için kobalt katkılı bir GCN (Co/GCN) hazırlanmıştır. Co/GCN, elektronların ve deliklerin ayrılmasını önemli ölçüde iyileştirdi, bant aralığı enerjisini daralttı ve ışığın emilimini genişletti. Yüksek PC başlangıç konsantrasyonunda bile Co/GCN, 60 dakika güneş ışığına maruz kaldıktan sonra %82.6'lık bir PC giderme verimliliği sergiledi; bu, katkısız GCN'den 1,7 kat daha yüksektir. ≤ 1 mg/L'lik düşük başlangıç konsantrasyonunda Co/GCN, neredeyse %100'e ulaşan en yüksek bozunma verimliliğiyle PC'yi ayrıştırma yeteneğine sahipti. Kinetik sonuç, Co/GCN'nin GCN'den 3,7 kat daha yüksek fotodegradasyon hızına ulaştığını gösterdi. Ayrıca, Co/GCN birçok kez geri dönüştürülebilir, bu da onun atık sudaki farmasötiklerin arıtılması için fotokatalizör olarak potansiyel kullanımını gösterir (Pham vd., 2021).

Çalışmada adsorban olarak kullanılan aktif çamur, kullanılan ağrı kesici ilaçlar (parasetamol ve diklofenak) piyasada yaygın tüketilmeleri ve reçetesiz ulaşılması sebebiyle tercih edilmiştir. Adsorpsiyon deneyleri 100 ml lik beher içerisine karıştırılarak konulan 25'şer mililitrelik çamur ve ilaç çözeltilerinin orbital çalkalayıcı yardımıyla (75 rpm) farklı süreler boyunca (5, 10, 20, 40, 80, 160 dk) 25°C de çalkalanmıştır. İşlem sonrası karışım santrifüjlenerek (6000 rpm, 20 dk) üstteki berrak fazdan alınan örneklerle ölçüm yapılmıştır. Aktif çamur tarafından adsorplanan ilaç miktarı hesaplanmıştır. Başlangıç adsorpsiyon deneyleri her bir ilaç için 10, 20, 30, 40, 50 mg/L konsantrasyonlarında 160 dakikalık temas süresi kullanılarak yapılmıştır. Gerçekleştirilen ilk adsorpsiyon deneyleri, ilaçların aktif çamur tarafından benzer oranlarda adsorbe edildiğini ve her ilaç için adsorpsiyon prosesinin çoğunlukla ilk 20-40 dakika içerisinde gerçekleştiğini göstermiştir. Kullanılan ilaçların ise düşük ve orta adsorpsiyon potansiyeli gösterdiği görülmüştür (Kabak, 2012).

Bu tez çalışmasında, Parasetamol ilaç etken maddesinin portakal meyvesinin kabuklarının ZnCl₂ etkileşimiyle elde edilen toz aktif karbon ile sulu çözeltilerden giderimi gözlemlenmiştir. Başlangıç parasetamol konsantrasyonu (100-500 mg/L), pH (2-10), adsorban dozu (10-500 mg), temas süresi (5-120 dakika) ve sıcaklık (25-45°C) parametrelerinin parasetamol 'ün sulu çözeltilerden verimindeki denge değerleri incelenmiştir. Parasetamol 'ün adsorpsiyon dengesi ve kinetik modeller parametreler ile adsorpsiyon mekanizması açıklanmıştır. Deneysel verilere uygulanan denge izotermelerinden Langmuir, Freundlich, Temkin ve Dubinin-Radushkevichi izotermeleri denenmiştir. Bu izoterm modelleri arasında en yüksek korelasyon R²=0,95 değerini gösteren Freundlich izotermine karar verilmiştir. Uygulanan yalancı birinci derece ve yalancı ikinci derece kinetik modeller sonucunda, korelasyon katsayısı R²=0.99 olan yalancı ikinci derece kinetik modelin parasetamol adsorpsiyonunu en iyi gösterdiği görülmüştür. Portakal kabuğundan elde edilen aktif karbonun parasetamol gideriminde verimli bir adsorban olduğu bu çalışmada görülmüştür (Konuk Akça, 2022).

Farmasötik kirleticiler çevre üzerinde önemli etkiye sahiptir, bu nedenle tedavileri birçok çalışmada ele alınmıştır. Aktif karbon (AC) adsorbanı, yüksek kapasite ve gözeneklilik ile temsil edilen benzersiz özelliklerinden dolayı bu bileşikler için en iyi çekiciliği gösterir. Bu çalışmada, AC'nin ibuprofen, ketoprofen, naproksen ve diklofenak gibi non-steroidal antiinflamatuvar ilaçlara (NSAID'ler) adsorpsiyon

performansı gözden geçirildi. Toplanan verilere göre, bu ilaçlar için Langmuir izoterminden sırasıyla 417, 25, 290 ve 372 mg/g maksimum adsorpsiyon kapasiteleri elde edildi. Freundlich izotermi için $1/n$ değerleri, incelenen tüm ilaçlar için birlikten düşüktü ve doğrusal olmayan ve olumlu adsorpsiyonu doğruladı. Ek olarak, kinetik veriler yalancı ikinci dereceden model tarafından iyi bir şekilde temsil edildi ve mekanizma tek başına gözenek difüzyon adımı tarafından kontrol edilmedi. AC adsorpsiyonu, seçilen tüm NSAID'ler için üstün performans gösterdi, dolayısıyla bu farmasötik kirleticilerin tedavisi için verimli bir teknoloji oldu (Ahmed, 2017).





3. MATERYAL VE YÖNTEM

3.1 Materyal

3.1.1 Kullanılan Kimyasal Maddeler

Son zamanlarda, sürdürülebilir malzemelere yönelik artan talep, yenilenebilir doğal kaynaklardan elde edilen polimerlerin kullanımına olan ilginde artmasına neden olmuştur. Dolayısıyla atık *Abelmoschus esculentus* L.'den (Bamya, Okra) (Ae) elde edilen bu ekstraktların polimerik partikül sentezinde kullanılması ve parasetamol ilaç sorpsiyonunda uygulanması mevcut malzemelere kıyasla oldukça yerli, ucuz ve çevreci bir yenilik katmaktadır. Bu tez kapsamında, Ae ekstraktı kullanılarak emülsiyon ortamında redoks polimerizasyon tekniği ile ilk kez p(Ae) ve p(Ae)/metal partikülleri sentezlendi. Tez kapsamında çapraz bağlayıcı olarak Etilenglikol dimetakrilat (EGDMA, %99, Sigma-Aldrich), başlatıcı olarak amonyumpersülfat (APS, %98, Merck) ve hızlandırıcı olarak N, N, N', N'- tetrametilendiamin (TEMED, % 99, Merck) kullanıldı. Fluka'dan temin edilen kadmiyum klorür kimyasalı (%100, CdCl₂) 1000 ppm kadmiyum iyonları içeren çözeltiyi hazırlamak için kullanıldı. Sigma-Aldrich'den temin edilen bakır klorür kimyasalı (%100, CuSO₄) 1000 ppm bakır iyonları içeren çözeltiyi hazırlamak için kullanıldı. Ae, yerel tedarikçilerin atıklarından temin edildi. Çözelti pH'ı, sodyum hidroksit (%100, NaOH, Merck) ve hidroklorik asit (%37.5, HCl, Sigma Aldrich) kullanılarak hazırlanan çözeltiler ile ayarlandı. Aynı zamanda deneyler süresince saf su (18.2 MΩ.cm; Human II-UV) kullanıldı. pH ölçümleri Thermo Scientific pH metre ile ölçüldü. Sorpsiyon çalışmaları sırasında, ilacın miktarını ölçmek için UV-Vis spektroskopi (Thermo Scientific GENESYS 10S, ABD) cihazı kullanıldı.

3.1.2 Analizde Kullanılan Cihazlar

3.1.2.1 Fourier Transform İnfrared Spektrofotometre (FT-IR)

p(Ae), p(Ae)/Cd ve p(Ae)/Cu partiküllerinin yapısal karakterizasyonları Thermo Scientific marka Nicolet iS10 model (üretim yeri; Amerika) Fourier Transform İnfrared

Spektroskopi (FT-IR) cihazı ile gerçekleştirildi. FT-IR analizleri için örnekler iyice kurutulduktan sonra toz haline getirildi ve 4000-500 1/cm dalga boyu aralığında tespit edilen spektrumları incelendi.

3.1.2.2 Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM)

p(Ae), p(Ae)/Cd ve p(Ae)/Cu partiküllerinin morfolojik özellikleri, Ultra Alan Emisyonlu Taramalı Elektron Mikroskobu Cihazı (SEM) (ZEISS marka, model FESEM-EDX, Almanya) kullanılarak gözlemlendi. Örnekleri taramak için 10 kV voltaj kullanıldı. Analizden önce parçacıkların yüzeyleri altın/platinle kaplandı.

3.1.2.3 Termogravimetrik Analiz (TGA)

p(Ae), p(Ae)/Cd ve p(Ae)/Cu partiküllerinin termal davranışları Setaram marka Labsys Evo 1600 model (üretim yeri; Fransa) Termogravimetrik Analiz cihazı ile belirlendi. Bu polimerik partiküllerin termal davranışlarının belirlenebilmesi için örnekler iyice kurutulduktan sonra toz haline getirildi ve yaklaşık 4-6 mg arasında olan toz örnekler seramik küvetlere yerleştirildi. Analiz argon gazı atmosferinde, 10 °C/dk ısıtma hızında ve 50-1000 °C sıcaklık aralığında gerçekleştirildi. Sıcaklığın bir fonksiyonu olarak kütle kaybı grafiği çizdirilerek örneklerin termal bozunmaları incelendi.

3.1.2.4 Brunauer–Emmett–Teller Yüzey Alanı Ölçüm Cihazı (BET)

p(Ae), p(Ae)/Cd ve p(Ae)/Cu partiküllerinin yüzey özelliklerini belirlemek amacıyla Mikromeritics marka Tristar II 3020 model Brunauer–Emmett–Teller Yüzey Alanı Ölçüm Cihazı (BET) (üretim yeri: Amerika) kullanıldı. Çok noktalı BET analizinden önce yapıdaki nemi gidermek için 100 °C'de 5 saat boyunca degaz işlemi gerçekleştirildi.

3.1.2.5 Parçacık Boyutu ve Zeta Potansiyeli Ölçüm Cihazı (Zeta)

p(Ae), p(Ae)/Cd ve p(Ae)/Cu partiküllerinin zeta potansiyeli ve parçacık boyutunu belirlemek için dinamik ışık saçma cihazı (Zeta Sizer) kullanıldı (Malvern marka, üretim yeri: Birleşik Krallık). Parçacıklar, 90 ° 'lik bir saçılma açısında aseton içinde 25 °C'de 600 nm lazer kurulumu kullanılarak boyutlandırıldı. Parçacıkların zeta potansiyeli, 25 °C'de saf suda süspansiyon edilmiş 1-0.1 g mL⁻¹ (yaklaşık 1 mL) numune kullanılarak ölçüldü. Deneysel belirsizliklerin standart hatalarını değerlendirmek için en az üç tekrar yapıldı.

3.1.2.6 UV-VİS spektrofotometre (UV-VIS)

Parasetamol ilaç sorpsiyon uygulamalarında sulu ortamdan uzaklaştırılan parasetamol miktarını belirlemek için Thermo Scientific Marka GENESYS 10S model Ultra Viyole Görünür Bölge Spektroskopisi (UV-Vis) cihazı (üretim yeri: Amerika) kullanıldı.

3.1.2.7 pH Metre

Belirli pH'a sahip çözeltilerin pH'ları Thermo Scientific marka (üretim yeri; Amerika) pH metre ile ölçüldü.

3.1.2.8 Isıtıcı Manyetik Karıştırıcı

p(Ae), p(Ae)/Cd ve p(Ae)/Cu partiküllerinin sentezinde ve sorpsiyon uygulamalarında, 0 ile 200 °C aralığında sıcaklık kontrolü yapabilen, Daihan Scientific marka WiseStir model (üretim yeri; Kore) çoklu ısıtıcılı manyetik karıştırıcı kullanıldı.

3.1.2.9 Etüv

p(Ae), p(Ae)/Cd ve p(Ae)/Cu partiküllerinin kurutulması için, 0 °C ile 300 °C arasında çalışabilen Memmert marka UN55 model (üretim yeri; Almanya) etüv kullanıldı.

3.1.2.10 Hassas terazi

Hammadde ve partiküllere ilişkin tüm tartımları Simadzu marka AUX220 model (üretim yeri; Japonya) hassas terazi ile yapıldı.

3.1.2.11 Santifirüj

Partikülleri sıvı ortamdan ayırmak için MPW marka MPW 350R model (üretim yeri: Polonya) santifirüj cihazı kullanıldı.

3.2 Deneysel Yöntem

3.2.1 Bitki Ekstraktının Hazırlanması

Tez kapsamında kullanılacak *Abelmoschus esculentus* L. (Bamya, Okra) (Ae) bitkisi yerel tedarikçilerden temin edildi. Ae bitkisi 1g/100 mL saf su içinde homojenize edildi. Parçalanmış bitkiler 48 saat boyunca 50 °C’de manyetik karıştırıcıda karıştırıldı. 48 saat sonunda çözelti falkon tüplerine alınarak 9000 rpm de 20 dk boyunca santrifüjlendi ve çöken katı madde ile sıvı ekstrakt süzülerek birbirinden ayrıldı. Ae ekstraktı falkon tüplerine aktararak buzdolabında analizler için bekletildi

3.2.2 Partikül Sentezi

p(Ae) partikül sentezi: Metal içermeyen Ae temelli polimerik partiküller, bir emülsiyon ortamında redoks polimerizasyon tekniği ile sentezlendi. Özetlenecek olursa; 40 mL’lik bir reaksiyon kabına 10 mL etanol ve 10 mL saf su ilave edildi ve manyetik karıştırıcı kullanılarak 900 rpm sabit karıştırma hızında 10 dakika oda sıcaklığında karıştırıldı. Daha sonra reaksiyon ortamına 2 mL Ae ekstraktı ve 1 mL EGDMA çapraz bağlayıcısı ilave edilerek homojen bir karışım oluşana kadar sürekli karıştırılmaya devam edildi. Daha sonra bu karışıma sırasıyla 40 µL TEMED ve 100 µL APS çözeltisi (0.001 mol) eklenerek polimerizasyonun başlaması sağlandı. Polimerizasyon reaksiyonu tamamlanmaya kadar bu karışım manyetik karıştırıcıda 25 °C oda sıcaklığında 5 saat

boyunca sürekli karıştırıldı. Polimerizasyon reaksiyonu tamamlandıktan sonra polimerizasyon karışımı santrifüj tüplerine alındı, 9000 rpm'de 30 dakika santrifüjlendi ve daha sonra süzülerek üstteki sıvı faz ve katı partiküller ayrıldı. Sıvı fazdan ayrıldıktan sonra katı partiküller asetonla yıkandı, 40 °C'lik bir etüvde sabit ağırlığa kadar kurutuldu ve sonraki uygulamalar için kapalı kaplarda saklandı. Ae ekstraktından sentezlenen partiküle p(Ae) adı verildi.

p(Ae)/Cd partikül sentezi: Ae/Cd metali temelli polimerik partiküller, bir emülsiyon ortamında redoks polimerizasyon tekniği ile sentezlendi. Özetlenecek olursa; 40 mL'lik bir reaksiyon kabına 10 mL etanol ve 10 mL saf su ilave edildi ve manyetik karıştırıcı kullanılarak 900 rpm sabit karıştırma hızında 10 dakika oda sıcaklığında karıştırıldı. Daha sonra reaksiyon ortamına 2 mL Ae ekstraktı ve 1 mL EGDMA çapraz bağlayıcısı ilave edilerek homojen bir karışım oluşana kadar sürekli karıştırıldı. Karışıma 1000 ppm Cd metal iyonu içeren 1 mL CdCl₂ çözeltisi ilave edildikten sonra karışım 10 dakika (900 rpm) boyunca karıştırılmaya devam edildi. Ae/Cd metali içeren partiküller, 1000 ppm'den 100 ppm'e kadar 10 farklı konsantrasyonda Cd iyonu içeren çözeltiler kullanılarak ayrı ayrı sentezlendi ve sentez adımları her bir Cd metal konsantrasyonu için yukarıda anlatıldığı gibi tekrarlandı. Cd Metali içeren karışım iyice karıştırıldıktan sonra bu karışıma sırasıyla 40 µL TEMED ve 100 µL APS çözeltisi (0.001mol) eklendi. Polimerizasyon reaksiyonu tamamlanmaya kadar bu karışım manyetik karıştırıcıda 25 °C oda sıcaklığında 5 saat boyunca sürekli karıştırıldı. Polimerizasyon reaksiyonu tamamlandıktan sonra polimerizasyon karışımı santrifüj tüplerine alındı, 9000 rpm'de 30 dakika santrifüjlendi ve daha sonra süzülerek üstteki sıvı faz ve katı partiküller ayrıldı. Sıvı fazdan ayrıldıktan sonra katı partiküller asetonla yıkandı, 40 °C'lik bir etüvde sabit ağırlığa kadar kurutuldu ve sonraki uygulamalar için kapalı kaplarda saklandı. Ae ekstraktından sentezlenen Cd iyonu içeren partiküle p(Ae)/Cd adı verildi. Ae/Cd temelli polimerik partiküllerin hazırlanma aşamaları ve adlandırmaları Çizelge 3.1'de özetlendi.

p(Ae)/Cu partikül sentezi: Ae/Cu metali temelli polimerik partiküller, bir emülsiyon ortamında redoks polimerizasyon tekniği ile sentezlendi. Özetlenecek olursa; 40 mL'lik bir reaksiyon kabına 10 mL etanol ve 10 mL saf su ilave edildi ve manyetik karıştırıcı kullanılarak 900 rpm sabit karıştırma hızında 10 dakika oda sıcaklığında karıştırıldı. Daha sonra reaksiyon ortamına 2 mL Ae ekstraktı ve 1 mL EGDMA çapraz

bağlayıcısı ilave edilerek homojen bir karışım oluşana kadar sürekli karıştırıldı. Karışıma 1000 ppm Cu metal iyonu içeren 1 mL CuSO₄ çözeltisi ilave edildikten sonra karışım 10 dakika (900 rpm) boyunca karıştırılmaya devam edildi. Ae/Cu metali içeren partiküller, 1000 ppm'den 100 ppm'e kadar 10 farklı konsantrasyonda Cu iyonu içeren çözeltiler kullanılarak ayrı ayrı sentezlendi ve sentez adımları her bir Cu metal konsantrasyonu için yukarıda anlatıldığı gibi tekrarlandı. Cu metali içeren karışım iyice karıştırıldıktan sonra bu karışıma sırasıyla 40 µL TEMED ve 100 µL APS çözeltisi (0.001 mol) eklendi. Polimerizasyon reaksiyonu tamamlanuncaya kadar bu karışım manyetik karıştırıcıda 25 °C oda sıcaklığında 5 saat boyunca sürekli karıştırıldı. Polimerizasyon reaksiyonu tamamlandıktan sonra polimerizasyon karışımı santrifüj tüplerine alındı, 9000 rpm'de 30 dakika santrifüjlendi ve daha sonra süzülerek üstteki sıvı faz ve katı partiküller ayrıldı. Sıvı fazdan ayrıldıktan sonra katı partiküller asetonla yıkandı, 40 °C'lik bir etüvde sabit ağırlığa kadar kurutuldu ve sonraki uygulamalar için kapalı kaplarda saklandı. Ae ekstraktından sentezlenen Cu iyonu içeren partiküle p(Ae)/Cu adı verildi. Ae/Cu temelli polimerik partiküllerin hazırlanma aşamaları ve adlandırmaları Çizelge 3.1'de özetlendi.

Çizelge 3.1 Partikül sentezi ve adlandırmaları

Metal Çözeltisi		Malzemeler					Kodlama
CdCl ₂ / CuSO ₄ konsantrasyonu (ppm)	Ae ekstraktı (mL)	Etanol (mL)	Su (mL)	EGDMA (mL)	TEMED (µL)	APS (µL)	
100	2	10	10	1	40	100	p(Ae)/Cd ₁ p(Ae)/Cu ₁
200	2	10	10	1	40	100	p(Ae)/Cd ₂ p(Ae)/Cu ₂
300	2	10	10	1	40	100	p(Ae)/Cd ₃ p(Ae)/Cu ₃
400	2	10	10	1	40	100	p(Ae)/Cd ₄ p(Ae)/Cu ₄
500	2	10	10	1	40	100	p(Ae)/Cd ₅ p(Ae)/Cu ₅
600	2	10	10	1	40	100	p(Ae)/Cd ₆ p(Ae)/Cu ₆
700	2	10	10	1	40	100	p(Ae)/Cd ₇ p(Ae)/Cu ₇
800	2	10	10	1	40	100	p(Ae)/Cd ₈ p(Ae)/Cu ₈
900	2	10	10	1	40	100	p(Ae)/Cd ₉ p(Ae)/Cu ₉
1000	2	10	10	1	40	100	p(Ae)/Cd ₁₀ p(Ae)/Cu ₁₀

3.3 Sorpsiyon Deneyleri

Bu çalışmada, 10 farklı konsantrasyonda Cd ve Cu iyonu içeren metal çözeltiler ve yerel tedarikçilerin atıklarından temin edilen Ae bitkisinden elde edilen ekstrakt kullanılarak redoks polimerizasyon tekniği ile p(Ae), 10 farklı p(Ae)/Cd ve 10 farklı p(Ae)/Cu temelli partikül sentezlendi ve parasetamol gideriminde sorbent olarak

değerlendirildi. Parasetamol sorpsiyon deneyleri, üç tekrarlı ve kesikli sorpsiyon deneyleri şeklinde gerçekleştirildi. Çevresel sulardan parasetamol gideriminde ilk olarak sentezlenen p(Ae), 10 farklı p(Ae)/Cd ve 10 farklı p(Ae)/Cu partikül tipinin etkinliği ayrı ayrı incelendi. Parasetamol konsantrasyonu, sıcaklık, karıştırma hızı, pH, süre ve partikül/parasetamol çözelti oranı 50 mg/L, 25 °C, 900 rpm, saf su ortamı (pH=6.5), 24 saat ve 0.2 mg/mL'de sırasıyla sabit tutuldu. Parasetamolu en iyi tutan partiküller olarak p(Ae), p(Ae)/Cd₆, p(Ae)/Cd₇, p(Ae)/Cu₃ ve p(Ae)/Cu₇ temelli partiküller seçildikten sonra, partikül miktarının ve parasetamol başlangıç konsantrasyonunun parasetamol giderimi üzerindeki etkisi incelendi ve diğer deneysel parametreler sabit tutuldu. Partikül miktarının sorpsiyon giderimi üzerindeki etkisini incelemek için partikül miktarı 2.5 mg ile 50 mg arasında değiştirildi. Konsantrasyonun sorpsiyona etkisini incelemek için partikül/parasetamol çözelti oranı 0.05 mg/mL olarak belirlendi ve 10 mg/L'den 200 mg/L'ye kadar farklı parasetamol konsantrasyonlarında kesikli sorpsiyon deneyleri yapıldı. Partikül türü, miktarı ve parasetamol ilaç konsantrasyonu optimize edildikten sonra, sorpsiyon kapasitesini artırmak için pH ve sıcaklık parametrelerinin parasetamol ilaç giderimi üzerindeki etkinliği de ayrıca araştırıldı. pH'nın parasetamol giderimi üzerindeki etkisi 3 ile 9 aralığında incelendi ve çözelti pH değeri 0.1 M NaOH ve 0.1 M HCl çözeltileri kullanılarak ayarlandı. Sıcaklığın sorpsiyon giderimi üzerindeki etkisi p(Ae)/Cd temelli partiküller için, pH 5'te 10 °C ile 50 °C sıcaklık aralığında, 0.05 mg/mL partikül/parasetamol çözelti ortamında, 900 rpm karıştırma hızında 24 saat süreyle incelendi. Sıcaklığın sorpsiyon giderimi üzerindeki etkisi p(Ae)/Cu temelli partiküller için, pH 5 ve 9'da 10°C ile 50°C sıcaklık aralığında, 0.05 mg/mL partikül/parasetamol çözelti ortamında, 900 rpm karıştırma hızında 24 saat süreyle incelendi. p(Ae)/Cd partikülü tarafından parasetamol ilacının sentetik çevresel sularından uzaklaştırılmasında partikül türü, parasetamol konsantrasyonu, partikül miktarı, pH ve sıcaklık değişimlerinin etkinliği ayrı ayrı incelendi ve otimum deney şartları sırasıyla p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇, 50 mg/L, 2.5 mg , 5 ve 30 °C olarak belirlendi. p(Ae)/Cu partikülü tarafından parasetamol ilacının sentetik çevresel sularından uzaklaştırılmasında partikül türü, parasetamol konsantrasyonu, partikül miktarı, pH ve sıcaklık değişimlerinin etkinliği de ayrı ayrı incelendi ve otimum deney şartları sırasıyla p(Ae)/Cd₃ ve p(Ae)/Cd₇, 50 mg/L, 2.5 mg , 5, ve 20 °C olarak belirlendi. Çözeltide kalan parasetamol ilaç miktarı, UV-Vis spektrofotometre

kullanılarak 240 nm dalga boyunda belirlendi. Denge sorpsiyonu (q_e (mg/g)) ařađıdaki eřitlik kullanılarak hesaplandı.

$$q_e = \frac{(C_0 - C_e) * V}{m} \quad (3.1)$$

C_0 : parasetamolün bařlangıç konsantrasyonunu (mg/L),

C_e : parasetamolün denge konsantrasyonu (mg/L),

V: çözeltili hacmi (L),

m: partikül miktarı (g).

Yapılan çalıřmalarda çözeltilinin sorpsiyonu pH'a, sıcaklıđa, sorplanacak maddenin yapısına ve çözeltili ierisindeki konsantrasyonuna bađlıdır. Çözeltilerin sorpsiyonu, sorbent yüzeyinde tutunması sorbentle etkileřen taneciklerin katının en aktif merkezine tutunmasıyla gerekleřir. Aktif merkez doyurulduktan sonra katı yüzeyi sorplanan tanecikler ile tabaka halinde kaplanır. Bu sorpsiyon kimyasal sorpsiyon ise sorpsiyon bittiđinde sonlanır, fiziksel sorpsiyon ise ve birinci tabakanın üzerine yeni tabakalar oluřacak kadar sorplayıcı sorplanan etkileřimi görölürse çok tabakalı sorpsiyon oluřur (Zeytuncu, 2014).

3.3.1 Sorpsiyon İzotermi ve Termodinamik Parametreler

Sorpsiyon izotermi, sorbent malzeme tarafından emilen bir çözünen madde miktarı ile sabit bir sıcaklıkta sıvı fazdaki çözünen madde konsantrasyonu arasındaki iliřkiyi ifade eder. Sorpsiyon izotermi, çeřitli malzemelerin sorpsiyon davranıřını incelemek, hava ve su arıtma, gaz ayırma ve kataliz gibi çeřitli uygulamalar için sorpsiyon iřlemlerini tasarlamak ve optimize etmek için yaygın olarak kullanılır. Langmuir (3.2), ve Freundlich (3.3), izotermi gibi 2 temel sorpsiyon izotermi ile sorpsiyon mekanizması kolayca açıklanabilir (Dudu vd., 2015). Bu modellerin her biri sorpsiyon sisteminin farklı özelliklerini kullanır ve kendi sınırlamaları vardır. Bu çalıřmada denge sorpsiyon verilerini analiz etmek için kullanılan izoterm modelleri Çizelge 3.2'de verilmiřtir.

Çizelge 3.2 Sorpsiyon izoterm modelleri

Model	Matematiksel Eşitlik
Langmuir (3.2)	$\frac{C_e}{q_e} = \left(\frac{C_e}{q_{max}}\right) + \left(\frac{1}{q_{max} \cdot K_L}\right)$
Freundlich (3.3)	$\log q_e = \log K_f + \left(\frac{1}{n}\right) \log C_e$

Sorpsiyon izoterm eşitiğinde verilen sabitler:

C_e : Denge anında çözültide sorplanmadan kalan madde konsantrasyonu (mg/L)

q_e : Partikülün birim kütlesi başına sorplanan madde miktarı (mg/g)

q_{max} : Maksimum sorpsiyon kapasitesini ifade eden Langmuir sabiti (mg/g)

K_L : Sorpsiyon enerjisini ifade eden Langmuir izoterm sabiti (L/mg)

C_e/q_e nin, C_e değerine karşı çizilen lineer grafiğin eğimi $1/q_{max}$, kayması ise $1/(q_{max} \cdot K_L)$ 'ye eşittir. q_{max} değeri eğimden, K_L değeri ise kesişimden hesaplanır.

K_f : Sorpsiyon kapasitesini gösteren Freundlich sabiti (mg/g)

n : Sorpsiyon yoğunluğunu gösteren Freundlich sabiti

$\log q_e$ 'nin $\log C_e$ 'ye göre yapılan lineer grafiğin eğimi $1/n$ 'ye ve kayma değeri ise $\log K_f$ 'ye aynıdır. $1/n$ değeri sorpsiyon kuvvetleri ve sorpsiyonun gerçekleştiği sorban yüzeyindeki aktif yerlerin dağılımını gösterir. $1/n$ değeri heterojenite katsayısıdır ve 0-1 aralığında değerler alır. Yüzey ne kadar heterojen olursa $1/n$ değeri sıfıra o kadar yaklaşır (Dada vd., 2012).

Sorpsiyon termodinamik parametreleri, sorpsiyona uğrayan bir sistemin termodinamik özelliklerinin nicel ölçümleridir. Sorpsiyon, gaz veya sıvı gibi bir maddenin, katı veya sıvı gibi başka bir maddenin yüzeyine tutunduğu işlemi ifade eder. En çok kullanılan sorpsiyon termodinamik parametreleri, Gibbs serbest enerji değişimi (ΔG°), Entalpi değişimi (ΔH°) ve Entropi değişimidir (ΔS°). Termodinamik parametreler aşağıdaki eşitlikler kullanılarak hesaplandı.

$$K^0 = \frac{C_t}{C_e} \quad (3.4)$$

$$\Delta G^0 = \Delta H^0 - T \cdot \Delta S^0 \quad (3.5)$$

$$\ln K^0 = \frac{\Delta S^0}{R} - \frac{\Delta H^0}{R \cdot T} \quad (3.6)$$

K_0 : sorpsiyon dengesiyle ilgili bir sabittir.

C_t , t zamanında absorpsiyon parasetamol konsantrasyonudur (mg/L).

ΔH^0 ve ΔS^0 deęerleri, Van't Hoff eřitlięine g6re hesaplandı ve $\ln K_0$ 'a karřı $1/T$ 'nin eęiminden ve keřiřiminden elde edildi.



4. BULGULAR

Bu tez çalışmasında Ae bitki ekstraktı saf su çözücü ortamından elde edildi. Bitki/çözücü oranı, ekstraksiyon süresi ve sıcaklık sırasıyla 1g/100 mL, 48 saat ve 50 °C olarak sabit tutuldu ve manyetik karıştırıcı kullanılarak sürekli karışması sağlandı. Ekstraksiyon süresi tamamlandıktan sonra çözelti 20 dakika 9000 rpm de santrifüjlendi ve katı ve sıvı faz birbirinden ayrılarak Ae ekstraktı elde edildi. Elde edilen ekstrakt EGDMA çapraz bağlayıcısı kullanılarak etanol-su emülsiyon ortamında redoks polimerizasyon tekniği ile çapraz bağlandı. Bu sentez yöntemi ile p(Ae) temelli partiküller sentezlendi. Aynı zamanda partikül sentezi esnasında farklı konsantrasyonlarda (100, 200, 300, 400, 500, 600, 700, 800, 900 ve 1000 ppm) ayrı ayrı kadmilyum ve bakır metal çözeltisi ortama eklendi, metal yüklü p(Ae)/Cd ve p(Ae)/Cu partikülleri sentezlendi. Sentezlenen p(Ae), p(Ae)/Cd ve p(Ae)/Cu temelli partiküllerin yapısal özellikleri SEM, FT-IR, Zeta Sizer, TGA ve BET cihazları kullanılarak incelendi. İlaç sorpsiyon davranışlarını incelemek için parasetamol ilacının giderimi üzerindeki etkinlikleri ayrıca incelendi.

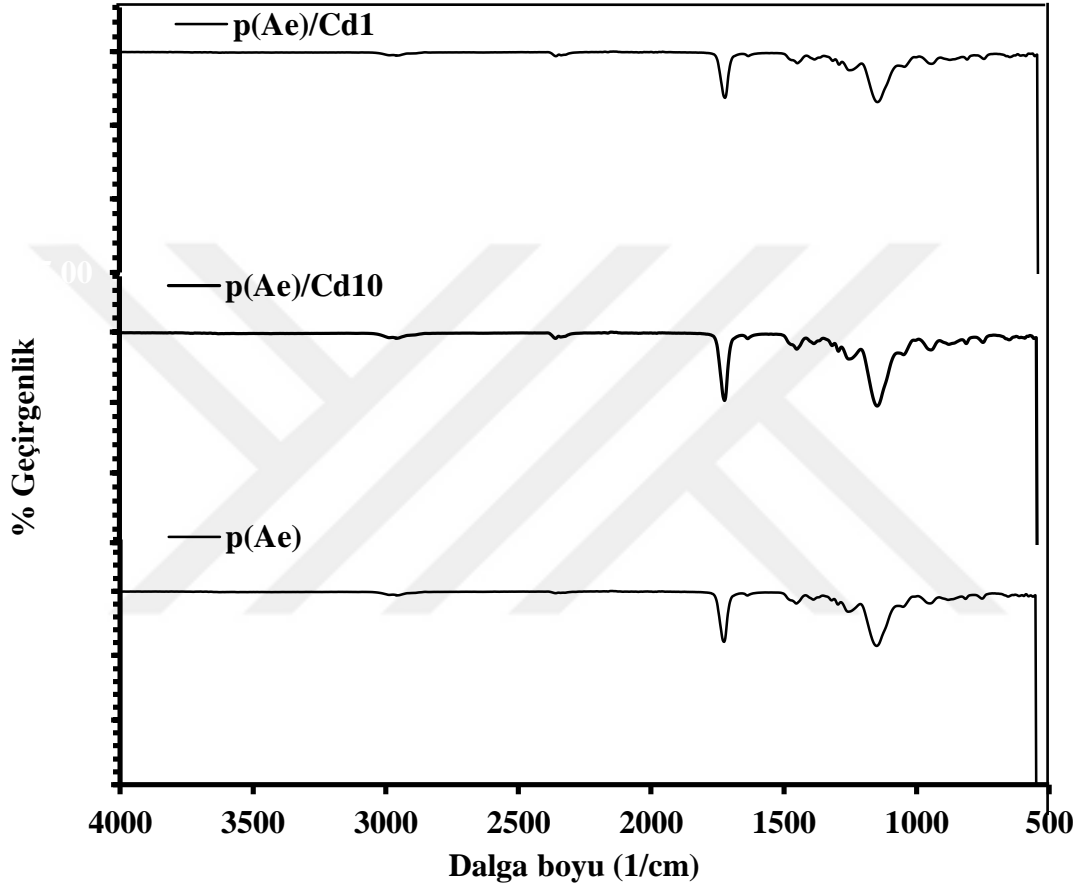
4.1 Polimerik Partiküllerin Karakterizasyonu

4.1.1 Fourier Transform İnfrared Spektrofotometre Analizi (FT-IR)

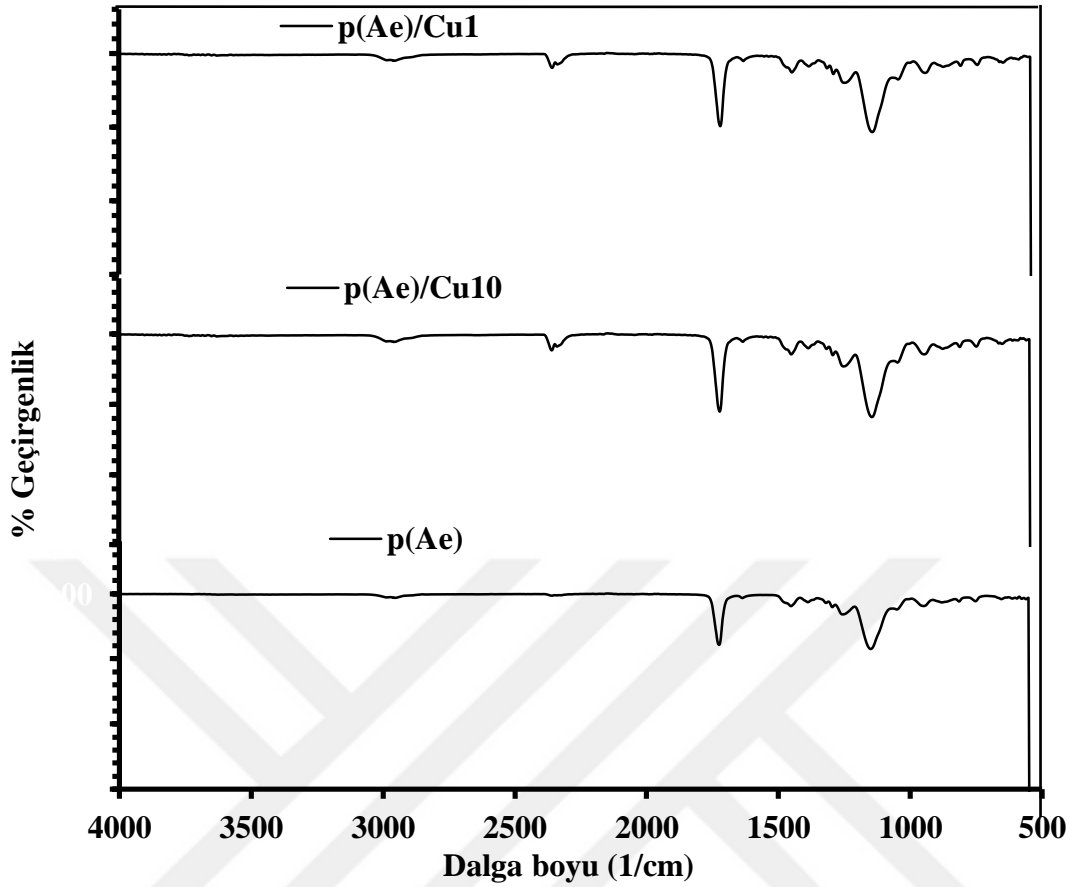
Sentezlenen p(Ae), p(Ae)/Cd ve p(Ae)/Cu temelli polimerik partiküllerin kimyasal yapılarını aydınlatmak ve olası bağ yapılarını incelemek için FT-IR spektrofotometre cihazı kullanıldı. EGDMA ile çapraz bağlanmış polimerik partiküller için 4000-500 1/cm dalga boyu aralığında elde edilen FT-IR spektrumları Şekil 4.1 ve Şekil 4.2’de verildi.

Literatürdeki Ae liflerine ait spektrumlar incelendiğinde 3600–3100 1/cm dalga boyu aralığında geniş -OH bandının var olduğu tespit edilmiştir. Ancak Şekil 4.1 ve Şekil 4.2 incelendiğinde -OH bandının polimerizasyon reaksiyonundan sonra kaybolduğu gözlemlendi. Kaybolan -OH pikleri yeni hidrojen bağlarının oluştuğunu ve EGDMA ile çapraz bağlanmış polimerik partiküllerin sentezini desteklediğini ispatlar niteliktedir. Tüm FT-IR spektrumları incelendiğinde yaklaşık 2950 1/cm’de görülen

pikin alkanın C-H gerilim titreşimini temsil etmektedir. Ayrıca yaklaşık 1724 1/cm'de görülen pik EGDMA ve hemiselülozdaki lignin veya ester grubundaki karboksilik asit bağının gerilme titreşimine atfedilir. 1450 1/cm ve 1149 1/cm dalga boyunda görülen piklerin sırasıyla alkana ait C-H ve estere ait C-O'ye bağımlı temsil ettiği düşünülmektedir.



Şekil 4.1 p(Ae), p(Ae)/Cd₁ ve p(Ae)/Cd₁₀ temelli partiküllerin FT-IR spektrumu



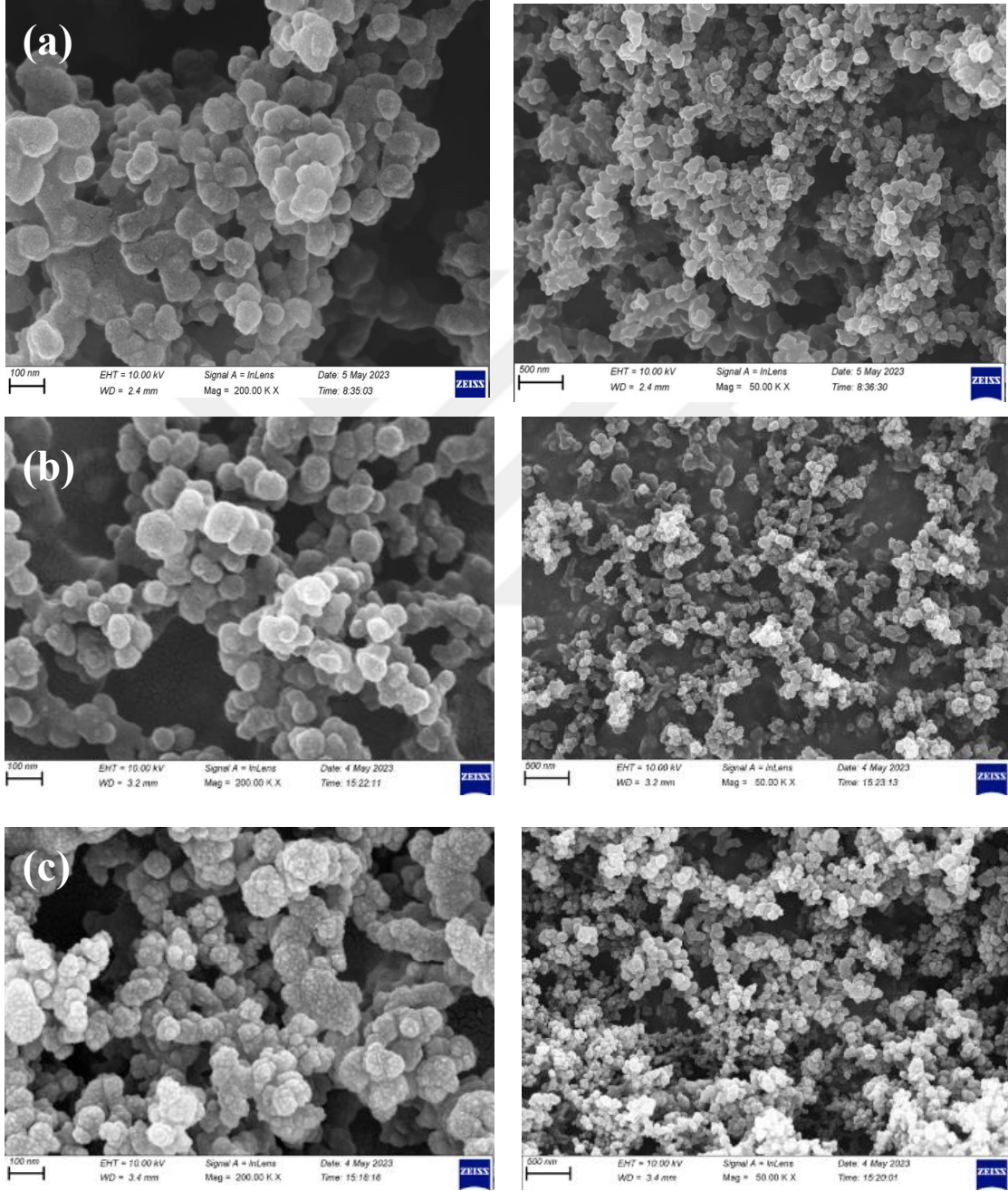
Şekil 4.2 (Ae), p(Ae)/Cu₁ ve p(Ae)/Cu₁₀ temelli partiküllerin FT-IR spektrumu

4.1.2 Taramalı Elektron Mikroskopisi (SEM) Analizi

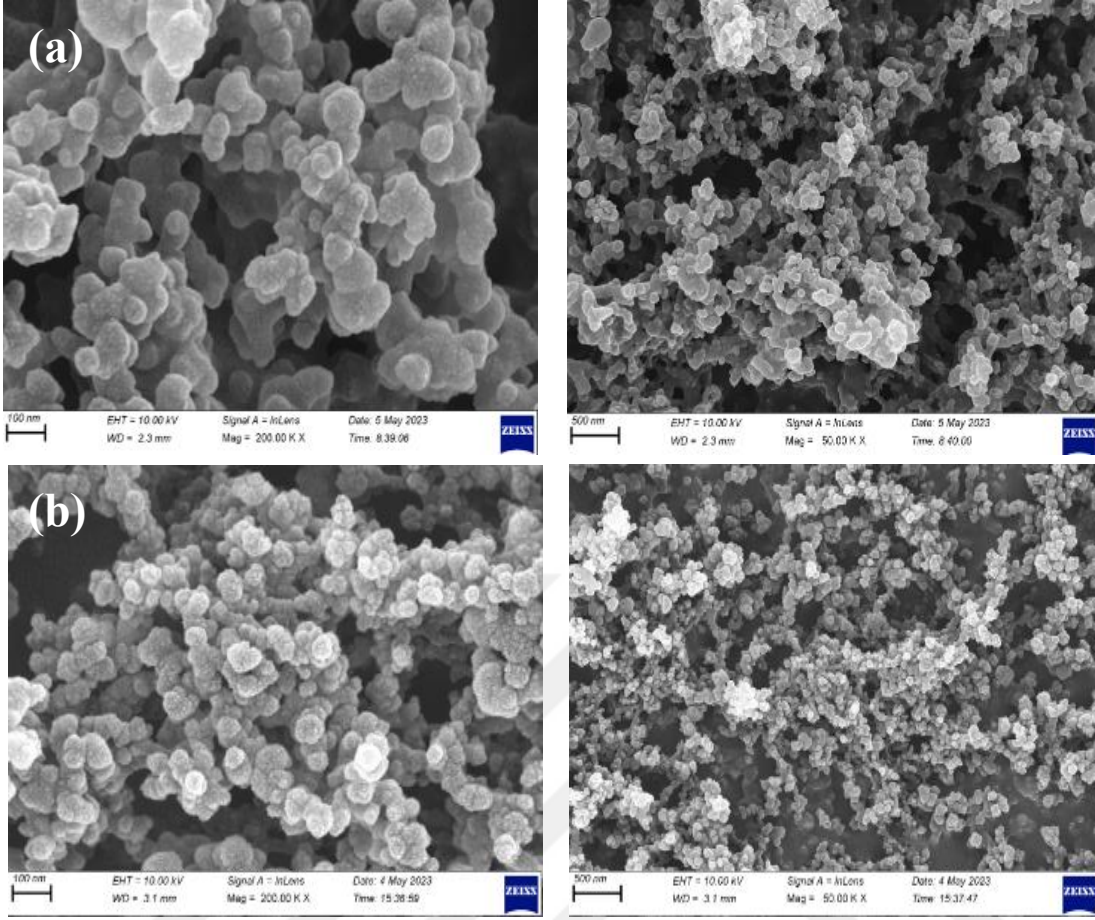
SEM analizi ile p(Ae), p(Ae)/Cd ve p(Ae)/Cu temelli polimerik partiküllerin morfolojik yapıları incelendi. Şekil 4.3' de sentezlenen tüm partiküllerin 100 nm ve 500 nm şartları altında çekilen morfolojik yapının genel görüntüsü bulunmaktadır. Şekil 4.3 (a) incelendiğinde sentezlenen p(Ae) partikülünün genel olarak yüzeyin gözenekli, düzenli küresel yapıda olduğu ve çok tabakalı olmakla birlikte yüzeyde ufak yarıkların olduğu tespit edildi. Şekil 4.3(b) ve Şekil 4.3(c) incelendiğinde Ae polimerine ait yüzey özelliklerinin korunduğu ancak yapıya Cu iyonu eklenmesi ile yüzeyde küçük pütürlü yapıların (kabarcıkların) oluştuğu tespit edildi. Ayrıca Cu iyonu konsantrasyonu 100 ppm den 1000 ppm çıkartıldığında bu küçük pütürlü yapıların arttığı ve buna bağlı olarak yüzey alanının arttığı düşünülmektedir.

Şekil 4.4(a) ve Şekil 4.4(b) incelendiğinde ise yapıya Cd iyonu eklenmesi ile yüzeyde yine küçük pütürlü yapıların (kabarcıkların) oluştuğu tespit edildi. Ayrıca Cd

iyonu konsantrasyonu 100 ppm den 1000 ppm çıkartıldığında da bu küçük pütürlü yapıların arttığı ve buna bağlı olarak yüzey alanının arttığı düşünülmektedir. Her iki metal iyonunda da benzer sonuçlar elde edildi ve çekilen görüntüler mevcut iyonların yapıya başarılı bir şekilde bağlandığını ispatlamaktadır.



Şekil 4.3 (a) p(Ae), (b) p(Ae)/Cu₁ ve (c) p(Ae)/Cu₁₀ partiküllerinin SEM görüntüleri



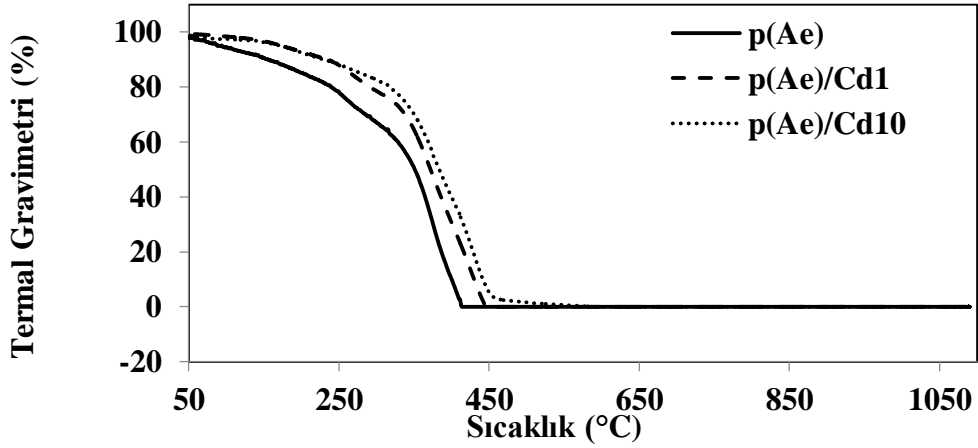
Şekil 4.4 (a) p(Ae)/Cd₁ ve (b) p(Ae)/Cd₁₀ partiküllerinin SEM görüntüleri

4.1.3 Termogravimetrik (TGA) Analizi

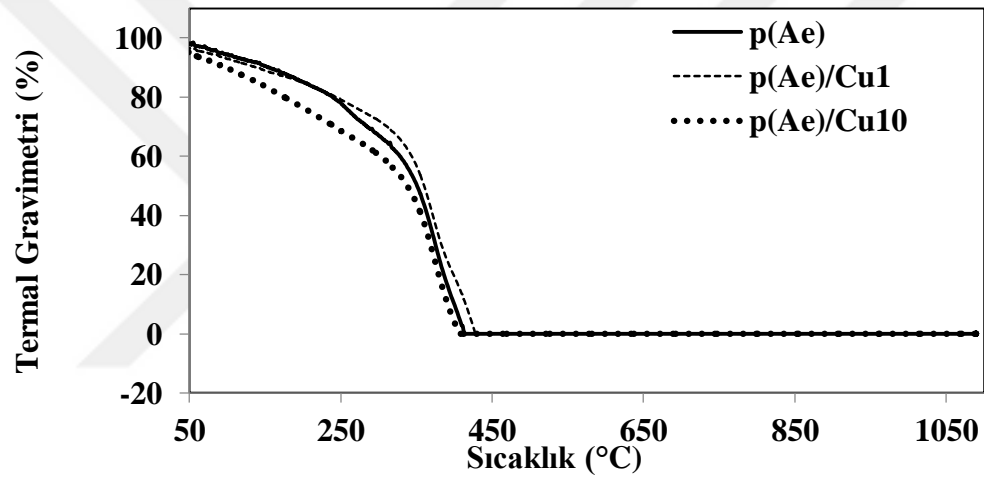
p(Ae), p(Ae)/Cd ve p(Ae)/Cu partiküllerinin termal bozunma davranışını incelemek için TGA/DSC analiz cihazı kullanıldı ve sonuçlar Şekil 4.5 ve Şekil 4.6 'da sunuldu. Görüldüğü gibi, argon atmosferi altında 1000 °C'ye kadar ısıtıldığında p(Ae)/Cd₁₀ partikülünün kütle kaybının yaklaşık %98'e ulaştığı gözlemlendi. Ve aynı zamanda p(Ae) ve p(Ae)/Cd₁ partiküllerinin, sırasıyla %100 ve %100 kütle kaybı ile benzer bozunma davranışı sergiledikleri gözlemlendi. p(Ae) ve p(Ae)/Cd₁ partikülleri aynı termal davranışa ve üç farklı bozunma basamağına sahip olduğu tespit edildi. p(Ae) için ilk bozunma basamağı, yaklaşık 50 ile 246 °C'de %21 kütle kaybı ile başladı ve ikinci basamağın, %19 kütle kaybıyla 246 ile 328 °C arasında olduğu tespit edildi. Üçüncü bozunma basamağı 328 ile 413 °C arasında %60 kütle kaybı ile sonlandı. p(Ae)/Cd₁ için ilk bozunma basamağı 50 °C' den 232 °C'ye kadar olan sıcaklık aralığında meydana geldi ve kütle kaybı yaklaşık %10'a ulaştı. İkinci basamak ise sıcaklık 232°C'den

328°C'ye yükseldiğinde meydana geldi ve kütle kaybı yaklaşık %17 olarak tespit edildi. Üçüncü bozunma basamağı 328 ile 469 °C arasında %73 kütle kaybı ile sonlandı. p(Ae)/Cd₁₀ için ilk kütle kaybı 50-180 °C sıcaklık aralığında %6 olduğu gözlemlendi. İkinci bozunma basamağı 180-307 °C aralığında gözlemlendi ve kütle kaybı %12'ye ulaştı. Üçüncü bozunma basamağı 307-404 °C arasında %44 kütle kaybı ile sonlandı. Dördüncü bozunma basamağı 476 °C'nin sonunda tamamlandı ve %36'lık kütle kaybı elde edildi. Partikül yapısına eklenen kadmiyum iyonunun konsantrasyonu arttıkça bozunma davranışının değiştiği gözlemlendi.

p(Ae)/Cu₁ ve p(Ae)/Cu₁₀ partiküllerine ait termogramlar incelendiğinde sırasıyla dört ve üç farklı bozunma basamağına sahip oldukları gözlemlendi. p(Ae)/Cu₁ için ilk bozunma basamağı 50-195 °C sıcaklık aralığında gerçekleşti ve ilk kütle kaybının %15 olduğu gözlemlendi. İkinci bozunma basamağı 195-312 °C aralığında gözlemlendi ve kütle kaybı %15'e ulaştı. Üçüncü bozunma basamağı 312-402 °C arasında %52 kütle kaybı ile sonlandı. Dördüncü bozunma basamağı 457 °C'nin sonunda tamamlandı ve %18'lik kütle kaybı elde edildi. p(Ae)/Cu₁₀ için ilk bozunma basamağı 50 °C' den 316 °C'ye kadar olan sıcaklık aralığında meydana geldi ve kütle kaybı yaklaşık %43'e ulaştı. İkinci basamak ise sıcaklık 316 °C'den 376 °C'ye yükseldiğinde meydana geldi ve kütle kaybı yaklaşık %34 olarak tespit edildi. Üçüncü bozunma basamağı 376 °C ile 406 °C arasında %23 kütle kaybı ile sonlandı. Elde edilen sonuçlara göre artan bakır iyon konsantrasyonunun bozunma davranışını etkilediği ve yüksek konsantrasyonlu partiküllerde ilk bozunma basamağında daha fazla kütle kaybı meydana geldiğini gösterdi. Tüm termogramlar incelendiğinde, yaklaşık 50 ile 250 °C aralığındaki kütle kayıplarının yapıdaki serbest/bağlı su moleküllerinin ve aynı zamanda hafif uçucu bileşiklerin yapıdan uzaklaşmasından kaynaklandığı öngörülmektedir. Daha yüksek sıcaklıklardaki kütle kayıplarının ise partiküllerin ana zincirlerinin ve çapraz bağlarının kırılması ile meydana geldiği düşünülmektedir



Şekil 4.5 p(Ae), p(Ae)/Cd₁ ve p(Ae)/Cd₁₀ temelli partiküllerin termal davranışı



Şekil 4.6 p(Ae), p(Ae)/Cu₁ ve p(Ae)/Cu₁₀ temelli partiküllerin termal davranışı

4.1.4 BET Analizi

Emülsiyon ortamında redoks polimerizasyon tekniği ile farklı kadmiyum ve bakır iyon konsantrasyonlarında sentezlenen polimerik partiküllerin yüzey alanı ve gözenek özelliği üzerinde meydana gelen değişiklikleri incelemek için N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi kullanıldı. Çizelge 4.1’de partiküllerin BET yüzey alanı (m²/g), toplam gözenek hacmi (cm³/g) ve gözenek çapı (nm) verildi. p(Ae) partikülüne kıyasla p(Ae)/Cd₁ partikülünde yüzey alanı 86.89 m²/g’den 58.01 m²/g’a, gözenek hacmi 0.27 cm³/g’den 0.23 cm³/g’a düştü ve gözenek çapı 11.16 nm’den 13.86 nm’ye yükseldi. Yüzey alanındaki bu azalmanın metal iyonlarının aktif bölgeleri kapattığı ve bağlanmayı azalttığı sonucunu doğrulamaktadır. p(Ae)/Cd₁₀ partikülünde yüzey alanı

86.89 m²/g'dan 112.67 m²/g'a, gözenek hacmi 0.27 cm³/g'den 0.36 cm³/g'a, gözenek çapı 11.16 nm'den 11.70 nm'ye artış gösterdi. Kadmiyum metal iyon konsantrasyonundaki artış ile birlikte yüzey alanının artması bu sorbentin kirletici gideriminde etkili sonuçlar doğuracağını göstermektedir. p(Ae) partikülüne kıyasla p(Ae)/Cu₁ partikülünün yüzey alanında, gözenek hacminde ve gözenek çapında benzer sonuçlar elde edildi.

Ancak p(Ae)/Cu₁₀ partikülünün BET analiz sonuçları incelendiğinde artan bakır iyon konsantrasyonunu ile taneciklerin birbirine yaklaşarak daha az gözenekli yapılar meydana getirdiği ve yüzey alanı ile gözenek hacminde dikkate değer bir azalma meydana geldiği tespit edildi. Sentezlenen partiküllerin farklı yüzey alanı ve boyutlarda olması atık sulardan çeşitli kirleticilerin giderilmesinde avantaj sağlayacağı düşünülmektedir.

Çizelge 4.1 p(Ae), p(Ae)/Cd ve p(Ae)/Cu partiküllerinin gözenek yapı karakterizasyonu

Sorbent	BET Yüzey Alanı (m ² /g)	BJH Gözenek Hacmi (cm ³ /g)	BJH Gözenek Çapı (nm)
p(Ae)	86.89	0.27	11.16
p(Ae)/Cd ₁	58.01	0.23	13.86
p(Ae)/Cd ₁₀	112.67	0.36	11.70
p(Ae)/Cu ₁	86.90	0.28	11.87
p(Ae)/Cu ₁₀	9.47	0.03	11.82

4.1.5 Parçacık Boyutu ve Yüzey Yükü (Zeta DLS) analizi

Zeta potansiyeli malzemenin kararlılığı hakkında bilgi verir ve molekülün etrafında meydana gelen çift tabakanın oluşturduğu yüklerden meydana gelmektedir. Elektriksel çift tabaka oluşumu sonucunda tanecikler birbirini iter ve taneciklerin bir araya gelerek topaklanmasını engeller. Dolayısıyla sistemdeki tüm partiküller negatif veya pozitif zeta potansiyeline sahipse birbirlerini iterler ve sistemi stabilize ederler. Öte yandan, düşük zeta potansiyeline sahip partiküller birbirlerini itmek için yeterli güce sahip değildir ve bu nedenle topaklanma meydana gelebilir. p(Ae), p(Ae)/Cd₁,

p(Ae)/Cd₁₀, p(Ae)/Cu₁ ve p(Ae)/Cu₁₀ partiküllerinin zeta potansiyelleri sırasıyla -1.05 mV, -0.125 mV, 0.0712 mV, 0.0825 mV ve -25 mV olarak ölçüldü. Sentezlenen p(Ae), p(Ae)/Cd₁, p(Ae)/Cd₁₀, p(Ae)/Cu₁ ve p(Ae)/Cu₁₀ partiküllerinin partikül boyutları ise sırasıyla 226.6 nm, 185.1 nm, 1.14*10⁵ nm, 269 nm ve 174.1 nm olarak ölçüldü.

4.2 Parasetamol İlaç Sorpsiyonu

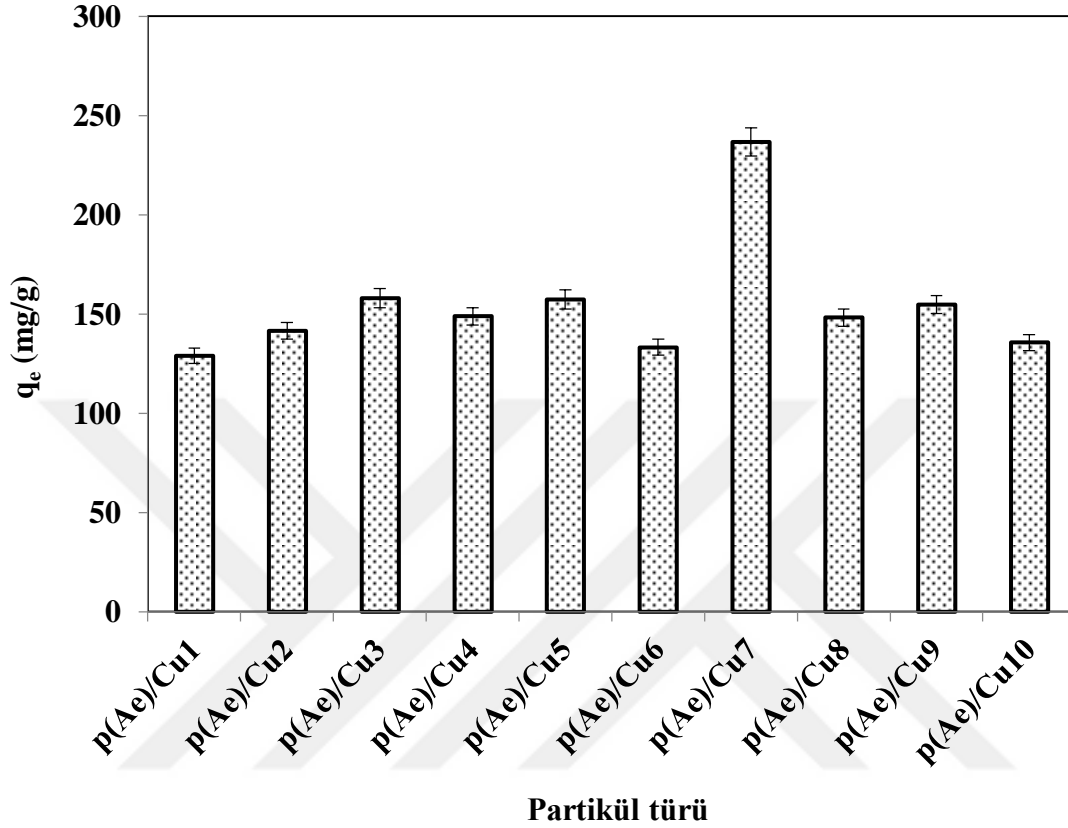
Bu tez çalışmasında parasetamol ilacının p(Ae)/Cu ve p(Ae)/Cd partikülleri tarafından sorpsiyon çalışmaları partikül türü, partikül miktarı, parasetamol ilaç konsantrasyonu, pH ve sıcaklık açısından detaylı bir şekilde incelendi.

4.2.1 p(Ae)/Cu Temelli Partiküllerin Parasetamol Sorpsiyonu

4.2.1.1 p(Ae)/Cu Temelli Partikül Türünün Sorpsiyona Etkisi

İlk olarak sentezlenen 10 farklı p(Ae)/Cu partikülünün parasetamol giderimindeki etkinliğini incelemek için parasetamol konsantrasyonu, sıcaklık, karıştırma hızı, pH, süre ve partikül/parasetamol çözelti oranı sırasıyla 50 mg/L, 25 °C, 900 rpm, saf su ortamı (pH=6.5), 24 saat ve 0.2 mg/mL'de sabit tutuldu. Şekil 4.5'te p(Ae)/Cu partiküllerin gram başına tutukladığı parasetamol miktarının değişimi gösterildi. Şekil 4.7 incelendiğinde en iyi parasetamol giderimine sahip partikülün 700 ppm konsantrasyonunda Cu iyonu içeren çözelti ile sentezlenen p(Ae)/Cu₇ partikülünde gerçekleştiği ve 236.7 mg/g' a ulaştığı tespit edildi. Diğer partiküllerin benzer sorpsiyon davranışı sergiledikleri gözlemlendi. Parasetamol ilacının pKa değerinin 9.38 olduğu bilinmektedir. Dolayısıyla parasetamol çözeltilerinde pH_{çözelti} < pKa ise (0–9.38 aralığında) protonlanmış veya nötr form baskın olurken, pH > 9.38 olduğunda deprotonlanmış form baskın olacaktır (Juela, D.M. 2020). p(Ae)/Cu₁ partikülünün yüzey yükü pozitif iken p(Ae)/Cu₁₀ partikülünün yüzey yükünün negatife kaydığı zeta sizer sonuçlarında gözlemlendi. Sunulan çalışmada çözelti pH değeri 6.5 olduğu için bu durum olası sorpsiyon özelliklerini açıklamaktadır. p(Ae)/Cu₇ dışındaki diğer partiküllerin sorpsiyon kapasitesindeki düşüş olası topaklanmaların olduğu ve yüzen kapandığı ve bu nedenle partikül ile yüzey arasında etkileşimin kısıtlandığı düşünülmektedir. Elde edilen

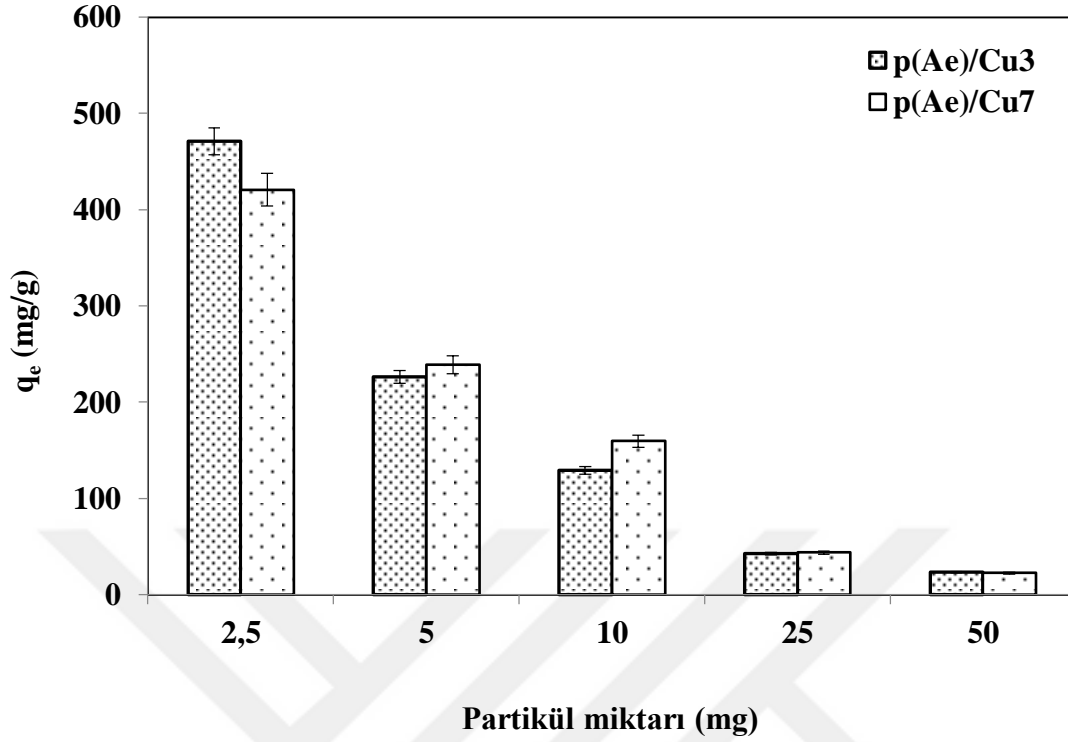
bulgular ışığında sorpsiyon çalışmalarında p(Ae)/Cu₇ ve p(Ae)/Cu₃ temelli partiküller en iyi parasetamol sorpsiyon kapasitesine sahip partiküller olarak seçildi ve diğer deneyler bu partiküller üzerinden yürütüldü.



Şekil 4.7 p(Ae)/Cu temelli partikül türünün parasetamol sorpsiyonuna etkisi

4.2.1.2 p(Ae)/Cu Partikül Miktarının Sorpsiyona Etkisi

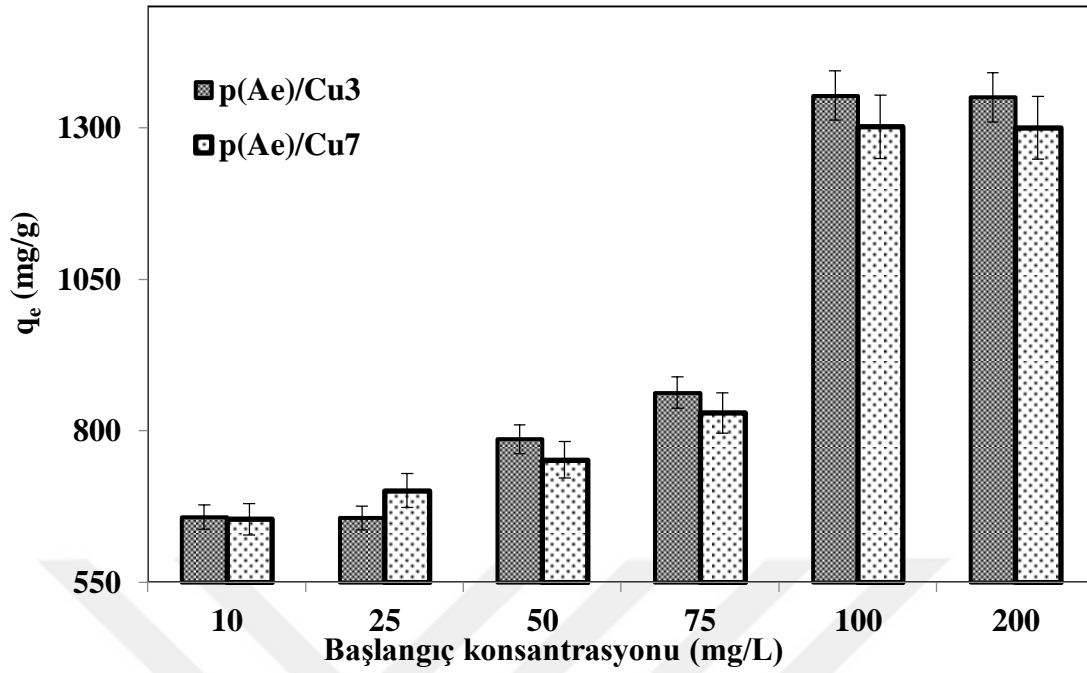
Deneyler oda sıcaklığında, 50 mL çözelti hacminde, saf su ortamında (pH=6.5), 50 mg/L parasetamol başlangıç konsantrasyonunda gerçekleştirildi ve p(Ae)/Cu partikül miktarı 2.5 mg, 5mg, 10 mg, 25 mg ve 50 mg olarak değiştirildi. Şekil 4.8’de p(Ae)/Cu₃ ve p(Ae)/Cu₇ partiküllerinin gram başına tutukladığı parasetamol miktarlarının değişimi gösterildi. Şekil 4.8 incelendiğinde 2.5 mg sorbent miktarında en yüksek parasetamol sorpsiyonuna ulaşıldığı gözlemlendi. p(Ae)/Cu₃ ve p(Ae)/Cu₇ partiküllerinin gramı başına tutuklanan parasetamol miktarı sırasıyla 471 mg/g ve 420.7 mg/g olarak hesaplandı. Ayrıca artan partikül miktarıyla birlikte p(Ae)/Cu₃ ve p(Ae)/Cu₇ partiküllerinin tutukladığı parasetamol madde miktarı arasındaki fark azaldı.



Şekil 4.8 p(Ae)/Cu₃ ve p(Ae)/Cu₇ partikül miktarının parasetamol sorpsiyonuna etkisi

4.2.1.3 Parasetamol Başlangıç Konsantrasyonunun Sorpsiyona Etkisi

Konsantrasyonun sorpsiyona etkisini incelemek için partikül/parasetamol çözelti oranı 0.05 mg/mL olarak belirlendi ve 10, 25, 50, 75, 100 ve 200 mg/L olacak şekilde farklı parasetamol konsantrasyonlarında sorpsiyon deneyleri yapıldı. Şekil 4.9’da p(Ae)/Cu₃ ve p(Ae)/Cu₇ partiküllerinin gram başına tutukladığı parasetamol miktarlarının başlangıç konsantrasyonu ile değişimi verildi. Şekil 4.9’a göre parasetamol başlangıç konsantrasyonu arttıkça sorpsiyonun arttığı gözlemlendi ve belirli bir derişimden sonra değişmediği tespit edildi. Sorpsiyonda itici güç kütle transferidir ve sistem deneyegeye ulaşınca kadar artan parasetamol konsantrasyonu ile sorpsiyonun arttığı ve dengeye ulaştıktan sonra sabit kaldığı tespit edildi. Ayrıca p(Ae)/Cu₃ ve p(Ae)/Cu₇ partiküllerinin gram başına tutukladıkları maksimum parasetamol miktarı sırasıyla 1350 mg/g ve 1300 mg/g olarak hesaplandı.

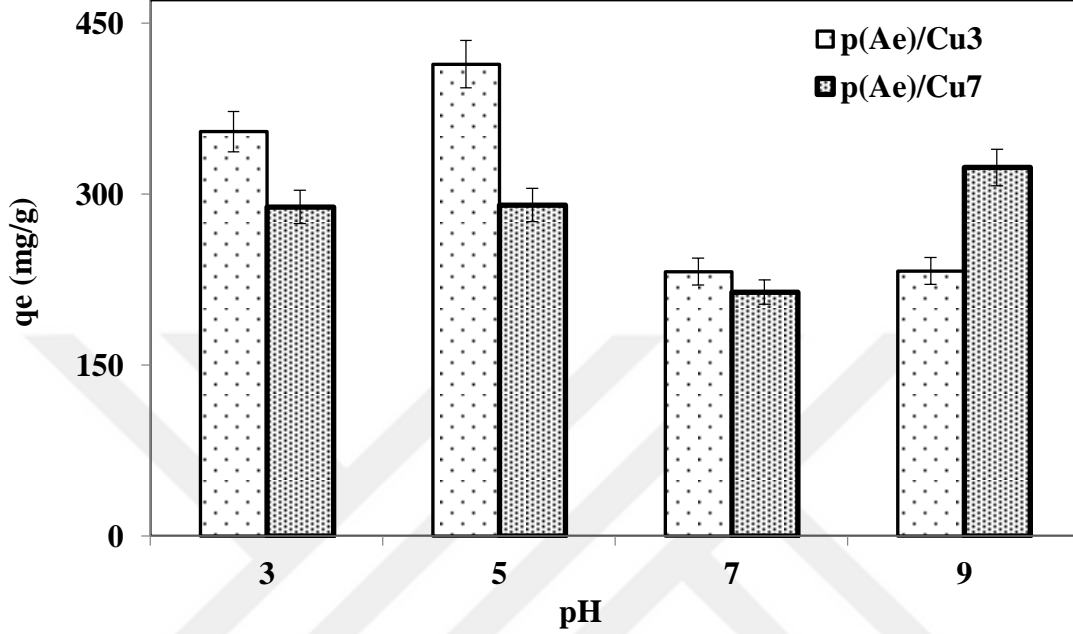


Şekil 4.9 p(Ae)/Cu₃ ve p(Ae)/Cu₇ partikülleri için başlangıç konsantrasyonunun parasetamol sorpsiyonuna etkisi

4.2.2 Çözelti pH Değerinin Sorpsiyona Etkisi

pH değerinin sorpsiyona etkisi oda sıcaklığında, 50 mL çözelti hacminde, 50 mg/L parasetamol başlangıç konsantrasyonunda p(Ae)/Cu₃ ve p(Ae)/Cu₇ partikülleri için gerçekleştirildi ve çözelti pH değeri 3, 5, 7 ve 9 olacak şekilde deneyler yapıldı. Şekil 4.10'da p(Ae)/Cu₃ ve p(Ae)/Cu₇ partiküllerinin gram başına tutukladığı parasetamol miktarlarının pH değeri ile değişimi gösterildi. Şekil 4.10 incelendiğinde sorpsiyon kapasitesinin belirlenmesinde çözelti pH'nın önemli rolü olduğu gözlemlendi. Ayrıca p(Ae)/Cu₃ partikülü için maksimum sorpsiyon kapasitesine pH 5'te ulaşıldığı ve 414 mg/g olduğu tespit edildi. pH 5 değerinden sonra ise artan pH'ın sorpsiyon kapasitesini azalttığı gözlemlendi. p(Ae)/Cu₇ partikülü için maksimum sorpsiyon kapasitesine pH 9'da ulaşıldığı ve 324 mg/g olduğu tespit edildi. Parasetamol ilacının pKa değeri 9.38'dir. Dolayısıyla parasetamol çözeltilerinde pH_{çözelti} < pKa ise (0–9.38 aralığında) protonlanmış veya nötr form baskın olurken, pH > 9.38 olduğunda deprotonlanmış form baskın olacaktır (Juela, D.M. 2020). Elde edilen deneysel bulgular ışığında p(Ae)/Cu temelli partiküller tarafından parasetamol gideriminde iyonik etkileşimlerden ziyade hidrojen bağı ile bağlanmalarının etkili olduğu düşünülmektedir.

p(Ae)/Cu temelli partiküllerin zeta sizer analiz sonuçlarında ise p(Ae)/Cu₁ partikülünün yüzey yükü pozitif iken p(Ae)/Cu₁₀ partikülünde yüzey yükü negatife dönüşmüştür. Bu sonuç ise sorpsiyon özelliklerini destekler niteliktedir.

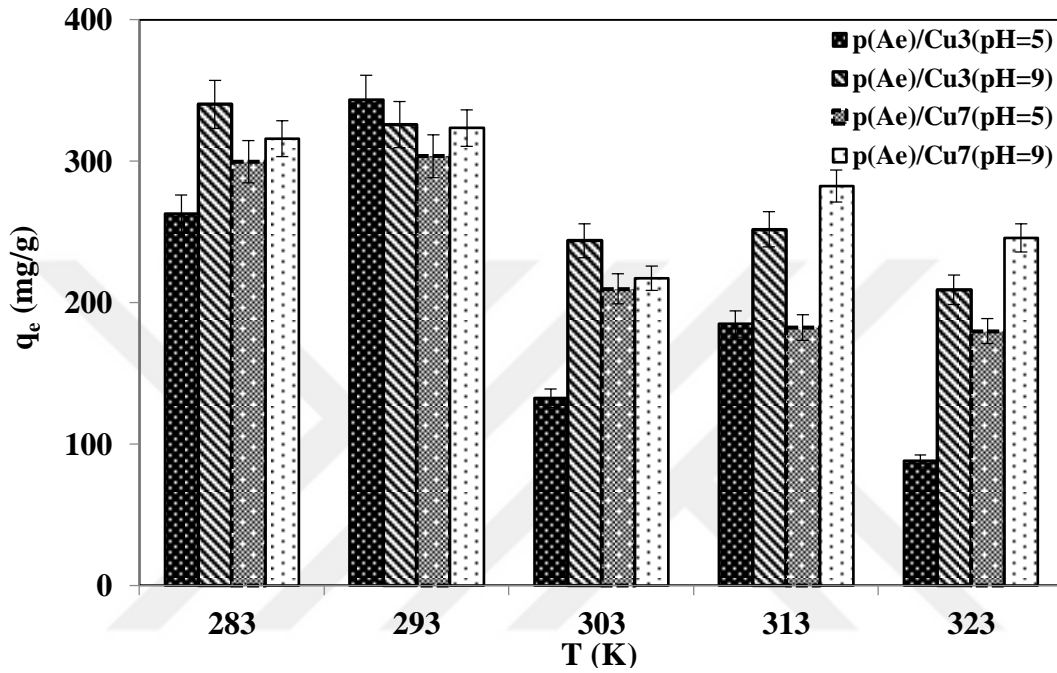


Şekil 4.10 Farklı pH değerlerinin parasetamol sorpsiyonu üzerindeki etkisi

4.2.2.1 Sıcaklığın Sorpsiyona Etkisi

p(Ae)/Cu₃ ve p(Ae)/Cu₇ partiküllerinin parasetamol sorpsiyonuna sıcaklığın etkisi 50 mL çözelti hacminde, 50 mg/L parasetamol başlangıç konsantrasyonunda ve iki farklı pH değerinde (pH 5 ve 9) incelendi. Şekil 4.11’de p(Ae)/Cu₃ ve p(Ae)/Cu₇ partiküllerinin gram başına tutukladığı parasetamol miktarlarının sıcaklık ile değişimi gösterildi. Şekil 4.11 incelendiğinde maksimum parasetamol sorpsiyon kapasitesine genel olarak 10 °C ve 20 °C sıcaklıklarda ulaşıldığı gözlemlendi. Artan sıcaklıkla sorpsiyon kapasitesinin azaldığı gözlemlendi. p(Ae)/Cu₃ partikülü pH 5 ortamında maksimum sorpsiyon kapasitesine 20 °C’de ulaştı ve değeri 343.8 mg/g’dır. Aynı zamanda p(Ae)/Cu₃ partikülü pH 9 ortamında maksimum sorpsiyon kapasitesine 10 °C’de ulaştı ve değeri 340.3 mg/g’dır. p(Ae)/Cu₇ partikülü ise pH 5 ve pH 9 da maksimum sorpsiyon kapasitesine 20 °C’de ulaştı ve değeri sırasıyla 303.7 mg/g ve 323.5 mg/g’dır.

Çözelti sıcaklığı sorpsiyonunun endotermik (ısı alan) ya da ekzotermik (ısı veren) bir reaksiyon olup olmadığı hakkında bilgi verir ve entalpi, entropi ve serbest enerji açısından değerlendirilerek sorpsiyon mekanizmasının aydınlatılmasına katkı sağlar. Elde edilen bulgular p(Ae)/Cu partikülleri tarafından parasetamol sorpsiyonunun ekzotermik özellik sergilediğini göstermektedir.



Şekil 4.11 Farklı sıcaklıkların parasetamol sorpsiyonu üzerindeki etkisi

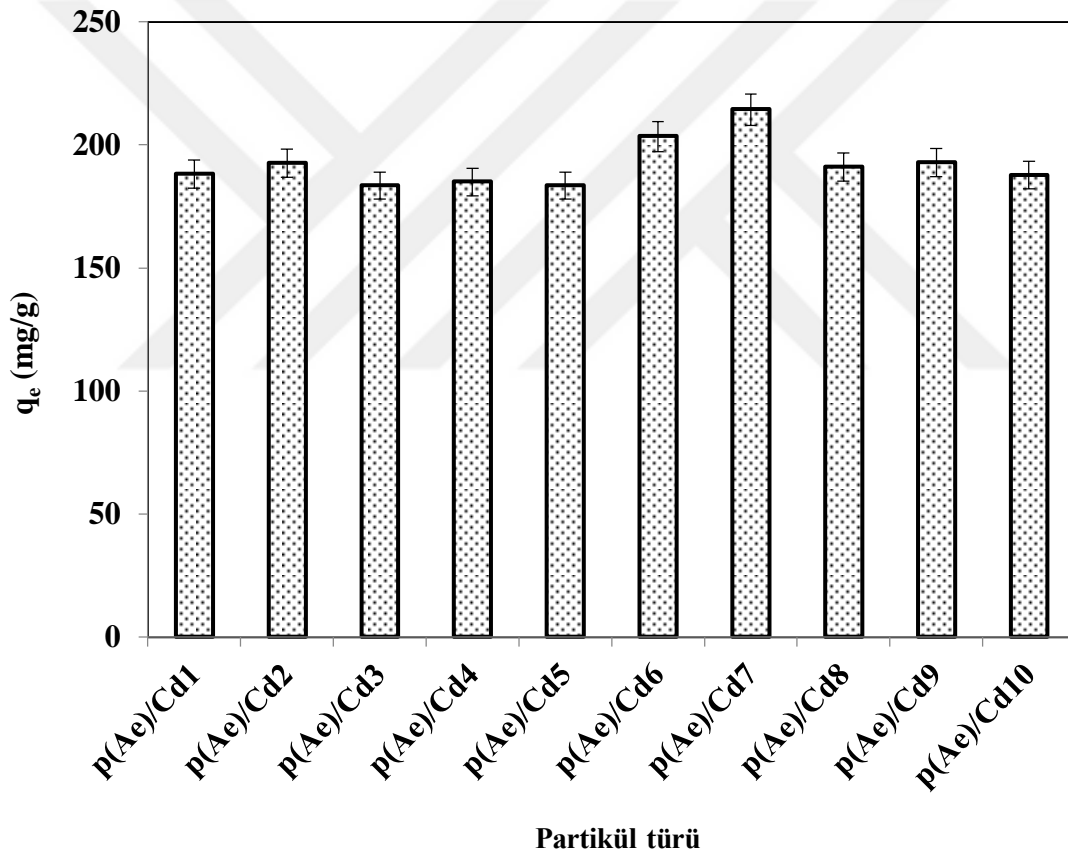
4.2.3 p(Ae)/Cd Temelli Partiküllerin Parasetamol Sorpsiyonu

4.2.4 p(Ae)/Cd Temelli Partikül Türünün Sorpsiyona Etkisi

İlk olarak sentezlenen 10 farklı p(Ae)/Cd partikülünün parasetamol giderimindeki etkinliğini incelemek için parasetamol konsantrasyonu, sıcaklık, karıştırma hızı, pH, süre ve partikül/parasetamol çözelti oranı sırasıyla 50 mg/L, 25 °C, 900 rpm, saf su ortamı (pH=6.5), 24 saat ve 0.2 mg/mL'de sabit tutuldu. Şekil 4.12'de p(Ae)/Cd partiküllerin gram başına tutukladığı parasetamol miktarının değişimi gösterildi.

Şekil 4.12 incelendiğinde en iyi parasetamol giderimine sahip partikülün 700 ppm konsantrasyonunda Cd iyonu içeren çözelti ile sentezlenen p(Ae)/Cd₇ partikülünde gerçekleştiği ve 214.3 mg/g' a ulaştığı tespit edildi. Diğer partiküllerin benzer sorpsiyon

davranışı sergiledikleri gözlemlendi. Parasetamol ilacının pKa değerinin 9.38 olduğu bilinmektedir. Dolayısıyla parasetamol çözeltilerinde $pH_{\text{çözelti}} < pKa$ ise (0–9.38 aralığında) protonlanmış veya nötr form baskın olurken, $pH > 9.38$ olduğunda deprotonlanmış form baskın olacaktır (Juella, D.M. 2020). p(Ae)/Cd₁ partikülünün yüzey yükü negatif iken p(Ae)/Cd₁₀ partikülünün yüzey yükünün pozitif kaydığı zeta sizer sonuçlarında gözlemlendi. Sunulan çalışmada çözelti pH değeri 6.5 olduğu için bu durum olası sorpsiyon özelliklerini açıklamaktadır. p(Ae)/Cd₇ dışındaki diğer partiküllerin sorpsiyon kapasitesindeki düşüş olası topaklanmaların olduğu ve yüzen kapandığı ve bu nedenle partikül ile yüzey arasında etkileşimin kısıtlandığı düşünülmektedir.

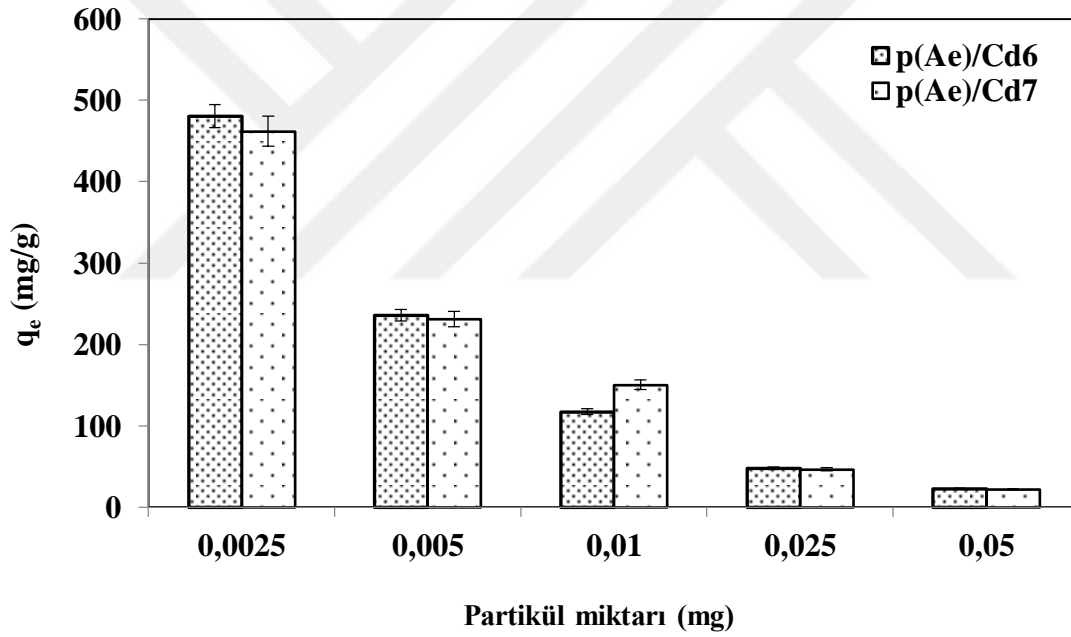


Şekil 4.12 p(Ae)/Cd temelli partikül türünün parasetamol sorpsiyonuna etkisi

Elde edilen bulgular ışığında sorpsiyon çalışmalarında p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ temelli partiküller en iyi parasetamol sorpsiyon kapasitesine sahip partiküller olarak seçildi ve diğer deneyler bu partiküller üzerinden yürütüldü.

4.2.4.1 p(Ae)/Cd Partikül Miktarının Sorpsiyona Etkisi

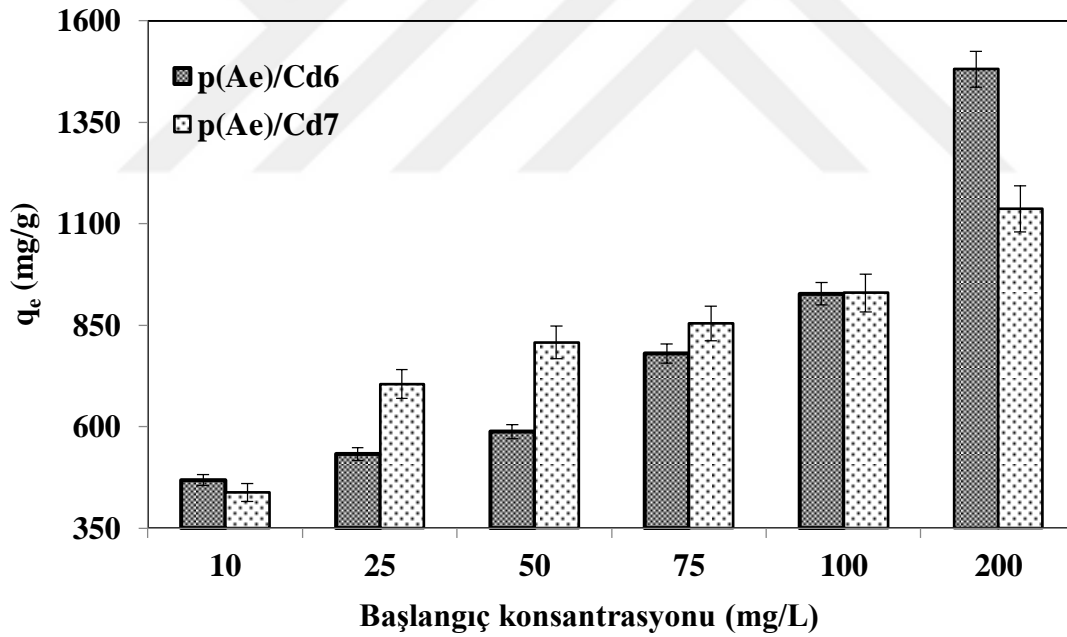
Deneysel oda sıcaklığında, 50 mL çözelti hacminde, saf su ortamında (pH=6.5), 50 mg/L parasetamol başlangıç konsantrasyonunda gerçekleştirildi ve p(Ae)/Cd partikül miktarı 2.5 mg, 5mg, 10 mg, 25 mg ve 50 mg olarak değiştirildi. Şekil 4.13'te p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partiküllerinin gram başına tutukladığı parasetamol miktarlarının değişimi gösterildi. Şekil 4.13 incelendiğinde 2.5 mg sorbent miktarında en yüksek parasetamol sorpsiyonuna ulaşıldığı gözlemlendi. p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partiküllerinin gramı başına tutuklanan parasetamol miktarı sırasıyla 480.5 mg/g ve 461.9 mg/g olarak hesaplandı. Ayrıca artan partikül miktarı ile birlikte p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partiküllerinin tutukladığı parasetamol madde miktarı arasındaki fark azaldı.



Şekil 4.13 p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partikül miktarının parasetamol sorpsiyonuna etkisi

4.2.4.2 Parasetamol Başlangıç Konsantrasyonunun Sorpsiyona Etkisi

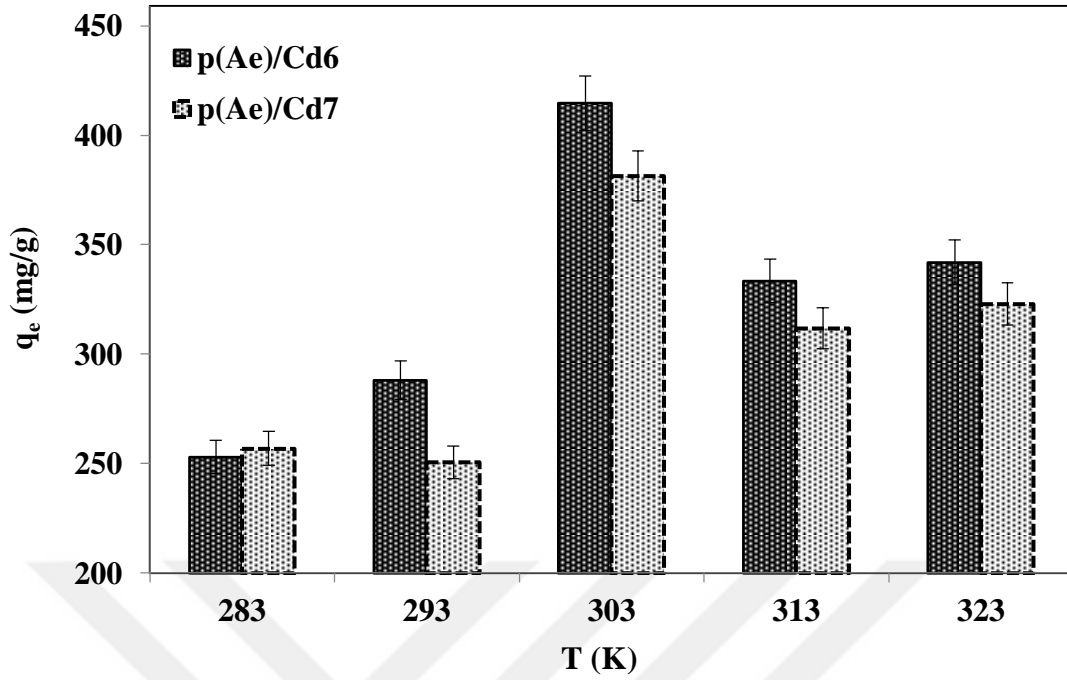
Konsantrasyonun sorpsiyona etkisini incelemek için partikül/parasetamol çözelti oranı 0.05 g/mL olarak belirlendi ve 10, 25, 50, 75, 100 ve 200 mg/L olacak şekilde farklı parasetamol konsantrasyonlarında sorpsiyon deneyleri yapıldı. Şekil 4.14’de p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partiküllerinin gram başına tutukladığı parasetamol miktarlarının başlangıç konsantrasyonuyla değişimi verildi. Şekil 4.14’de göre parasetamol başlangıç konsantrasyonu arttıkça sorpsiyonun arttığı gözlemlendi ve belirli bir derişimden sonra değişmediği tespit edildi. Sorpsiyonda itici güç kütle transferidir ve sistem deneyegeye ulaşınca kadar artan parasetamol konsantrasyonu ile sorpsiyonun arttığı ve dengeye ulaştıktan sonra sabit kaldığı tespit edildi. Ayrıca p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partiküllerinin gram başına tutukladıkları maksimum parasetamol miktarı sırasıyla 1481 mg/g ve 1137 mg/g olarak hesaplandı.



Şekil 4.14 p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partikülleri için başlangıç konsantrasyonunun parasetamol sorpsiyonuna etkisi

4.2.5 Çözelti pH Değerinin Sorpsiyona Etkisi

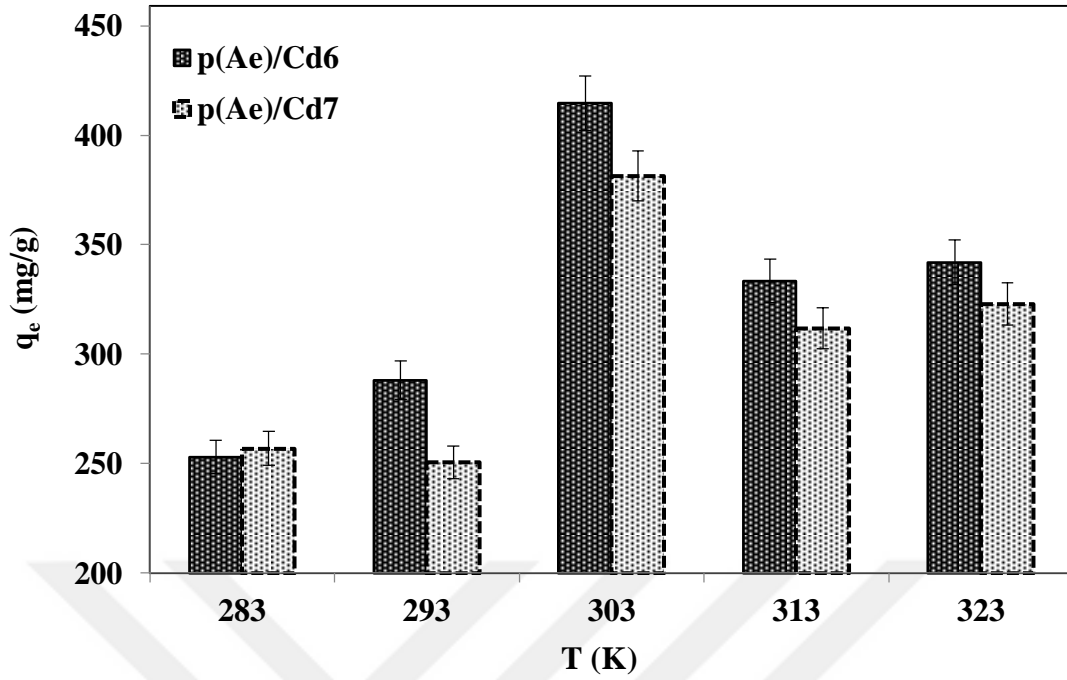
pH değerinin sorpsiyona etkisi oda sıcaklığında, 50 mL çözelti hacminde, 50 mg/L parasetamol başlangıç konsantrasyonunda p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partikülleri için gerçekleştirildi ve çözelti pH değeri 3, 5, 7 ve 9 olacak şekilde deneyler yapıldı. Şekil 4.15’de p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partiküllerinin gram başına tutukladığı parasetamol miktarlarının pH değeri ile değişimi gösterildi. Şekil 4.15 incelendiğinde sorpsiyon kapasitesinin belirlenmesinde çözelti pH’nın önemli rolü olduğu gözlemlendi. Ayrıca p(Ae)/Cd₆ partikülü için maksimum sorpsiyon kapasitesine pH 5’de ulaşıldığı ve 378.1 mg/g olduğu tespit edildi. pH 5 değerinden sonra ise artan pH’ın sorpsiyon kapasitesini azalttığı gözlemlendi. p(Ae)/Cd₇ partikülü için maksimum sorpsiyon kapasitesine pH 5’de ulaşıldığı ve 323.6 mg/g olduğu tespit edildi. Parasetamol ilacının pKa değeri 9.38’dir. Dolayısıyla parasetamol çözeltilerinde pH_{çözelti} < pKa ise (0–9.38 aralığında) protonlanmış veya nötr form baskın olurken, pH > 9.38 olduğunda deprotonlanmış form baskın olacaktır (Juola, 2020). Elde edilen deneysel bulgular ışığında p(Ae)/Cd temelli partiküller tarafından parasetamol gideriminde iyonik etkileşmelerden ziyade hidrojen bağı ile bağlanmalarının etkili olduğu düşünülmektedir. p(Ae)/Cd temelli partiküllerin zeta sizer analiz sonuçlarında ise p(Ae)/Cd₁ partikülünün yüzey yükü negatif iken p(Ae)/Cu₁₀ partikülünde yüzey yükü pozitif dönüşmüştür. Bu sonuç ise sorpsiyon özelliklerini destekler niteliktedir.



Şekil 4.15 p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partiküllerinin farklı pH değerlerinin parasetamol sorpsiyonu üzerindeki etkisi

4.2.6 Sıcaklığın Sorpsiyona Etkisi

p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partiküllerinin parasetamol sorpsiyonuna sıcaklığın etkisi 50 mL çözelti hacminde, 50 mg/L parasetamol başlangıç konsantrasyonunda ve pH 5’de incelendi. Şekil 4.16’de p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partiküllerinin gram başına tutukladığı parasetamol miktarlarının sıcaklık ile değişimi gösterildi. Şekil 4.16 incelendiğinde maksimum parasetamol sorpsiyon kapasitesine 30°C sıcaklıklarda ulaşıldığı gözlemlendi. 30 °C sıcaklıktan sonra artan sıcaklıkla sorpsiyon kapasitesinin azaldığı gözlemlendi. p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partikülleri için maksimum parasetamol sorpsiyon değeri sırasıyla 414.7 mg/g ve 381.5 mg/g olarak hesaplandı. Çözelti sıcaklığı sorpsiyonunun endotermik (ısı alan) ya da ekzotermik (ısı veren) bir reaksiyon olup olmadığı hakkında bilgi verir ve entalpi, entropi ve serbest enerji açısından değerlendirilerek sorpsiyon mekanizmasının aydınlatılmasına katkı sağlar. Elde edilen bulgular p(Ae)/Cd partikülleri tarafından parasetamol sorpsiyonun 30 °C sıcaklığa kadar endotermik ve bu sıcaklıktan sonra ekzotermik özellik sergilediğini göstermektedir.



Şekil 4.16 p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partiküllerinin farklı sıcaklıkların parasetamol sorpsiyonu üzerindeki etkisi

4.3 Sorpsiyon İzotermi

(Ae)/Cu₃, p(Ae)/Cu₇, p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partikülleri tarafından parasetamol sorpsiyonu Langmuir, ve Freundlich izoterm modellerine göre incelendi ve Çizelge 4.2’de izoterm sabitleri gösterildi. Korelasyon katsayısı sonuçlarına göre bu partiküllerin parasetamol sorpsiyonu için uygun olup olmadıkları değerlendirildi.

Çizelge 4.2’de görüldüğü gibi parasetamolün p(Ae)/Cu₃, p(Ae)/Cu₇, p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partikülleri üzerine sorpsiyonunda Langmuir izotermine uygun olduğu ve korelasyon katsayılarının sırasıyla 0.9357, 0.9284, 0.9510 ve 0.9830 olduğu gözlemlendi. Langmuir izotermine göre partikül yüzeyinde tek tabaka parasetamol sorpsiyonunun gerçekleştiği ve partikül yüzeyinin homojen olduğu söylenebilir (Dudu, T.E. 2020). Aynı zamanda Çizelge 4.2 incelendiğinde p(Ae)/Cu₃, p(Ae)/Cu₇, p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partikülleri için hesaplanan teorik maksimum sorpsiyon kapasiteleri sırasıyla 1111 mg/g, 1111 mg/g, 714.3 mg/g ve 1250 mg/g olarak hesaplandı. Teorik ve deneysel olarak hesaplanan maksimum sorpsiyon değerlerinin genel olarak uyumlu olduğu tespit edildi. Freundlich izotermi sorbent yüzeyinin heterojenliğini, yüzeydeki aktif bölgelerin dağılımını ve enerjilerini gösterir (Reddad vd., 2002).

Çizelge 4.2’de görüldüğü gibi partiküller tarafında parasetamol sorpsiyonunda Freundlich izoterme için düşük korelasyon katsayıları elde edildi ve parasetamol sorpsiyonun bu izoterme uymadığı tespit edildi. Çizelge 4.2’e göre parasetamolün p(Ae)/Cu₃, p(Ae)/Cu₇, p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partikülleri tarafından sorpsiyonunda sorpsiyon yoğunluğunu temsil eden Freundlich sabiti (n) değerleri sırasıyla 7.42, 11.8, 3.09 ve 4.32 olarak bulundu. Yüksek n değerleri sentezlenen partiküllerin avantajlı bir sorbent olduğuna işaret etmektedir (Sarkar vd., 2007).

Çizelge 4.2 p(Ae)/Cu₃, p(Ae)/Cu₇, p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partiküllerin parasetamol sorpsiyonu için izoterm sabitleri

Model		Partikül			
		p(Ae)/Cu ₃	p(Ae)/Cu ₇	p(Ae)/Cd ₆	p(Ae)/Cd ₇
Langmuir İzoterm Sabitleri	K _L (L/mg)	0.094	0.081	1.556	0.067
	q _m (mg/g)	1111	1111	714.3	1250
	R ²	0.9357	0.9284	0.9510	0.9830
Freundlich İzoterm Sabitleri	K _f	566.8	679.1	226.1	345.3
	n	7.42	11.8	3.09	4.32
	R ²	0.5765	0.4838	0.7965	0.8034

4.4 Sorpsiyon Termodinamik Parametreleri

Parasetamolün partiküller üzerine sorpsiyonu ile ilgili termodinamik parametreleri Eşitlik 3.4, 3.5 ve 3.6’ya göre hesaplandı. ln K_c’ye karşı 1/T’nin grafiğinin eğiminden sorpsiyon entalpisi (ΔH^0) ve kayma değerinden sorpsiyon entropisi (ΔS^0) hesaplandı. Elde edilen tüm sonuçlar Çizelge 4.3’ de verildi. p(Ae)/Cu temelli partiküller için sorpsiyon entalpi değerlerinin (ΔH^0) negatif olması parasetamolün partiküller ile sorpsiyonunun ekzotermik olduğunu göstermektedir. p(Ae)/Cd temelli partiküller için sorpsiyon entalpi değerlerinin (ΔH^0) pozitif olması ise parasetamolün partiküller ile sorpsiyonunun endotermik olduğunu göstermektedir (Rodrigues ve Pinto da Silva 2010; Jia ve ark., 2017). p(Ae)/Cu temelli partiküller için sorpsiyon entropi değerlerinin (ΔS^0) negatif çıkması sorbent-tutuklanan madde ara yüzeyindeki rastlantısallığın parasetamol sorpsiyonu sırasında azaldığını gösterir. p(Ae)/Cd temelli partiküller için sorpsiyon entropi değerlerinin (ΔS^0) pozitif çıkması ise rastlantısallığın arttığını gösterir (Unuabonah vd., 2007).

Çizelge 4.3 Parasetamolün p(Ae)/Cu₃, p(Ae)/Cu₇, p(Ae)/Cd₆, ve p(Ae)/Cd₇ partikülleri üzerine sorpsiyonunda farklı sıcaklıklardaki termodinamik parametreler

Partikül	pH	Sıcaklık (K)	Termodinamik Parametreler		
			ΔG° (J/mol)	ΔH° (J/mol)	ΔS° (J/(mol*K))
p(Ae)/Cu ₃	5	283	3457.7	-22868.5	-93
		293	4387.9		
		303	5318.2		
		313	6248.4		
		323	7178.7		
p(Ae)/Cu ₃	9	283	2702.3	-11645.4	-50.7
		293	3209.3		
		303	3716.3		
		313	4223.3		
		323	4730.3		
p(Ae)/Cu ₇	5	283	2960.9	-14157.1	-60.5
		293	3565.8		
		303	4170.7		
		313	4775.6		
		323	5380.4		
p(Ae)/Cu ₇	9	283	2760.3	-6717.6	-33.5
		293	3095.2		
		303	3430.6		
		313	3764.9		
		323	4099.9		
p(Ae)/Cd ₆	5	283	3559.9	7243.9	13.1
		293	3429.7		
		303	3299.5		
		313	3169.3		
		323	3039.1		
p(Ae)/Cd ₇	5	283	3699.4	6374.8	9.9
		293	3604.9		
		303	3510.3		
		313	3415.8		
		323	3321.2		

5. TARTIŞMA VE SONUÇ

Dünyadaki bilinen tüm yaşam formlarının varlığının devam etmesi için benzersiz bir kaynak olan su, bilinçsiz kullanımlar nedeniyle çeşitli organik ve inorganik kirleticiler tarafından sürekli olarak kirlenmektedir. Özellikle son yıllarda artan salgın hastalıklar nedeniyle ilaç üretimi ve tüketimi artmaktadır. Dolayısıyla ilaç etken maddelerin sucul ekosistemde yüksek konsantrasyonlara ulaşması toksik etkilere neden olabilmektedir.

- Tüm ekosistemi tehdit eden bu kirleticiler göz önüne alınarak, bu tez çalışmasında *Abelmoschus esculentus* (Ae, bamyas, okra) bitki atıklarından elde edilen Ae ekstratı kullanarak emülsiyon ortamında redoks polimerizasyon tekniği ile literatürde ilk kez Ae/metal partikülleri sentezlendi ve parasetamol ilacının çevresel sulardan giderimi üzerindeki etkinliğini incelemek için laboratuvar şartlarında sorpsiyon deneyleri gerçekleştirildi. Kadmiyum ve bakır iyonları polimer sentezinde partikülün metal kısmını oluşturmak için seçildi.
- Fourier Transform Infrared Spektrofotometre (FT-IR), Taramalı Elektron Mikroskopu (SEM), Termogravimetrik Analiz cihazı (TGA), Brunauer–Emmett–Teller Yüzey Alanı Ölçüm Cihazı (BET) ve Parçacık Boyutu ve Zeta Potansiyeli Ölçüm Cihazı (Zeta Sizer) kullanılarak sentezlenen p(Ae), p(Ae)/Cd ve p(Ae)/Cu partiküllerinin yapısal özellikleri aydınlatılmaya çalışıldı.
- p(Ae) partikülüne kıyasla p(Ae)/Cd ve p(Ae)/Cu partiküllerinin FT-IR spektrumlarında gözlenen bağların şiddetindeki değişimler ve yeni bağ oluşumları yapısal özelliklerin değiştiğini gösterdi.
- TGA termogramlarındaki farklılıklar ise artan sıcaklıkla birlikte partiküllerin farklı bozunma basamağı ve bozunma davranışı sergilediklerini gösterdi.
- SEM görüntülerinde sentezlenen p(Ae) partikülünün genel olarak yüzeyin gözenekli, düzenli küresel yapıda olduğu ve çok tabakalı olmakla birlikte yüzeyde ufak yarıkların olduğu tespit edildi. Ancak yapıya Cd ve Cu iyonlarının eklenmesi ile yüzeyde küçük pütürlü yapıların (kabarcıkların) oluştuğu tespit edildi. Ayrıca Cd ve Cu iyonu konsantrasyonu 100 ppm den 1000 ppm çıkartıldığında bu küçük pütürlü yapıların arttığı gözlemlendi.
- BET analiz sonuçlarına göre p(Ae) partikülüne kıyasla p(Ae)/Cd ve p(Ae)/Cu

partiküllerinin farklı yüzey alanı ve boyutlara sahip olması bu partiküllerin atık sularından çeşitli kirleticilerin giderilmesinde avantaj sağlayacağını düşündürmektedir.

- Parçacık Boyutu ve Zeta Potansiyeli Ölçüm Cihazı sonuçlarından elde edilen düşük zeta potansiyeli değerleri partiküllerin kararsız yapıya sahip olduğu ve topaklanma eğilimi sergilediğini gösterir.
- Sentezlenen p(Ae), p(Ae)/Cd ve p(Ae)/Cu temelli partiküller sulu ortamdan parasetamol ilacının gideriminde sorbent olarak kullanıldı. Elde edilen bulgular ışığında sorpsiyon çalışmalarında p(Ae)/Cu₃, p(Ae)/Cu₇, p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ temelli partiküller en iyi parasetamol sorpsiyon kapasitesine sahip partiküller olarak seçildi ve diğer deneyler bu partiküller üzerinden yürütüldü.
- Partikül miktarının parasetamol sorpsiyon kapasitesi üzerine etkisi incelendiğinde tüm partiküller için en iyi sonuca 2,5 mg partikül miktarında ulaşıldığı gözlemlendi. p(Ae)/Cu₃, p(Ae)/Cu₇, p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partiküllerin gramı başına tutuklanan parasetamol miktarları sırasıyla 471 mg/g, 420.7 mg/g, 480.5 mg/g ve 461.9 mg/g olarak hesaplandı.
- Farklı konsantrasyonlarda gerçekleştirilen parasetamol sorpsiyon deneylerinde p(Ae)/Cu₃, p(Ae)/Cu₇, p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partikülleri için hesaplanan maksimum parasetamol sorpsiyon kapasiteleri sırasıyla 1350 mg/g, 1300 mg/g, 1481 mg/g ve 1137 mg/g'dır.
- pH'nın sorpsiyon üzerindeki etkisi incelenirken sorpsiyon kapasitesinin belirlenmesinde çözelti pH'nın önemli rolü olduğu gözlemlendi. Ayrıca p(Ae)/Cu₃ partikülü için maksimum sorpsiyon kapasitesine pH 5' de ulaşıldığı ve 414 mg/g olduğu tespit edildi. p(Ae)/Cu₇ partikülü için maksimum sorpsiyon kapasitesine pH 9'da ulaşıldığı ve 324 mg/g olduğu tespit edildi. Ayrıca p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partikülleri için maksimum sorpsiyon kapasitesine pH 5' de ulaşıldığı ve sırasıyla 378.1 mg/g ve 323.6 mg/g olduğu tespit edildi. Elde edilen deneysel bulgular ışığında partiküller tarafından parasetamol gideriminde iyonik etkileşimlerden ziyade hidrojen bağı ile bağlanmalarının etkili olduğu düşünülmektedir.
- Sıcaklığın sorpsiyon üzerindeki etkisi incelendiğinde p(Ae)/Cu partikülleri tarafından parasetamol sorpsiyonunun ekzotermik özellik sergilediği tespit edildi.

Aynı zamanda p(Ae)/Cd partikülleri tarafından parasetamol sorpsiyonunun 30°C sıcaklığa kadar endotermik özellik sergilediği gözlemlendi.

- p(Ae)/Cu₃, p(Ae)/Cu₇, p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partikülleri tarafından parasetamol sorpsiyonu Langmuir, ve Freundlich izoterm modellerine göre incelendi ve korelasyon katsayısı sonuçlarına göre bu partiküllerin parasetamol sorpsiyonu için uygun olup olmadıkları değerlendirildi. Parasetamolün p(Ae)/Cu₃, p(Ae)/Cu₇, p(Ae)/Cd₆ ve p(Ae)/Cd₇ partikülleri üzerine sorpsiyonunda Langmuir izoterminin uygun olduğu ve korelasyon katsayılarının sırasıyla 0.9357, 0.9284, 0.9510 ve 0.9830 olduğu gözlemlendi.
- Elde edilen tüm sonuçlar sorpsiyon entalpi değerleri açısından değerlendirildiğinde p(Ae)/Cu ve p(Ae)/Cd temelli partiküller için sorpsiyonun sırasıyla ekzotermik ve endotermik olduğu gözlemlendi. p(Ae)/Cu temelli partiküller için sorpsiyon entropi değerlerinin (ΔS^0) negatif çıkması sorbent-tutuklanan madde ara yüzeyindeki rastlantısallığın parasetamol sorpsiyonu sırasında azaldığını gösterdi. p(Ae)/Cd temelli partiküller için sorpsiyon entropi değerlerinin (ΔS^0) pozitif çıkması ise rastlantısallığın arttığını gösterdi.
- Sonuçlar sentezlenen p(Ae), p(Ae)/Cu ve p(Ae)/Cd temelli partiküllerin başta parasetamol giderimi olmak üzere pek çok mikrokirlleticinin gideriminde etkin bir şekilde kullanılabileceğini göstermektedir.



KAYNAKLAR

- Ahmed, M. J. (2017). Adsorption of non-steroidal anti-inflammatory drugs from aqueous solution using activated carbons. *Journal Of Environmental Management*, 190, 274-282.
- Al-Khateeb, L. A., Almotiry, S., Salam, M. A. (2014). Adsorption of pharmaceutical pollutants onto graphene nanoplatelets. *Chemical Engineering Journal*, 248, 191-199.
- Ashfaq, M., Khan, K. N., Rehman, M. S. U., Mustafa, G., Nazar, M. F., Sun, Q., Yu, C. P. (2017). Ecological risk assessment of pharmaceuticals in the receiving environment of pharmaceutical wastewater in Pakistan. *Ecotoxicology And Environmental Safety*, 136, 31-39.
- Balcı, B., Keskinan, O., Erkuş, A. (2016). Atık sulardan parasetamol gideriminde aktif çamur kullanılması. *Çukurova Üniversitesi Mühendislik-Mimarlık Fakültesi Dergisi*, 27(2), 1-12.
- Bolong, N., Ismail, A. F., Salim, M. R., Matsuura, T. (2009). Atık sularda ortaya çıkan kirleticilerin etkilerinin ve bunların giderilme seçeneklerinin gözden geçirilmesi. *Tuzdan Arındırma*, 239 (1-3), 229-246.
- Bolton, J. L., Trush, M. A., Penning, T. M., Dryhurst, G., Monks, T. J. (2000). Role of quinones in toxicology. *Chemical Research In Toxicology*, 13(3), 135-160.
- Cai, Q., Dmitrieva, N. I., Michea, L. F., Rocha, G., Ferguson, D., Burg, M. B. (2003). Toxicity of acetaminophen, salicylic acid, and caffeine for first-passage rat renal inner medullary collecting duct cells. *Journal of Pharmacology and Experimental Therapeutics*, 306(1), 35-42.
- Dada, A. O., Olalekan, A. P., Olatunya, A. M., Dada, O., (2012). Langmuir, freundlich, temkin and dubinin-radushkevich isotherms studies of equilibrium sorption of Zn²⁺ onto phosphoric acid modified rice husk. *Journal of Applied Chemistry*, 3(1), 38-45.
- Demiral, A. (2020). *Antibakteriyel fonksiyonel poli (etilen tereftalat) liflerinin üretimi ve karakterizasyonu*, Yüksek Lisans Tezi, Kırıkkale Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Biyomühendislik Ana Bilim Dalı, Kırıkkale.
- Dudu, T. E. (2020). Removal of anionic phenol red from water solution in the batch system by using N, N-dimethylacrylamide and 3-acrylamidopropyl-trimethyl ammonium chloride-based polymeric hydrogels. *MANAS Journal Of Engineering*, 8(2), 99-105.
- Dudu, T. E., Sahiner, M., Alpaslan, D., Demirci, S., Aktas, N. (2015). Removal of As (V), Cr (III) and Cr (VI) from aqueous environments by poly (acrylonitril-co-acrylamidopropyl-trimethyl ammonium chloride)-based hydrogels. *Journal Of Environmental Management*, 161, 243-251.
- Emet, M. (2016). Asetaminofen (Parasetamol) zehirlenmesi. *Türkiye Klinikleri J Emerg Med-Special Topics*, 2(1), 51-57.
- Erdoğan, A. Y. (2005). *Atıksulardan çeşitli adsorbanlarla arsenik giderimi*, Yüksek Lisans Tezi. İstanbul Teknik Üniversitesi. Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı, İstanbul.
- Erşan, G. (2014). *Organik kirletici maddelerin karbon nanomateryallerle adsorpsiyonu ile adsorpsiyonu ile doğal giderimi*, Doktora Tezi. İstanbul Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul.

- Erşen D. T. (2018). *Tarımsal uygulamalarda kullanılması amacıyla komposit hidrojel malzemelerin hazırlanması*, Doktora Tezi. Van Yüzüncü Yıl Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Van.
- Jia, Z., Li, Z., Ni, T., Li, S. (2017). Adsorption of low-cost absorption materials based on biomass (cortaderia selloana flower spikes) for dye removal: kinetics, isotherms and thermodynamic studies. *Journal Of Molecular Liquids*, 229, 285-292.
- Jiang N, Liu C, Li D, Zhang Z, Liu C, Wang D, Niu L, Zhang M (2017). Evaluation of freeze drying combined with microwave vacuum drying for functional okra snacks: antioxidant properties, sensory quality, and energy consumption. *Lwt Food Sci Technol*, 82, 216–226.
- Juela, D. M. (2020). Comparison of the adsorption capacity of acetaminophen on sugarcane bagasse and corn cob by dynamic simulation. *Sustainable Environment Research*, 30(1), 1-13.
- Kabak, H., Basıbuyuk, M. (2012). Diklofenak ve parasetamol'ün aktif çamur tarafından adsorbsiyonu. *Ekoloji Dergisi*, 21(85).
- Karaca, D. S. (2016). *Fotokatalitik ozonlamayla sulu çözeltilerden ilaç giderimi*, Yüksek Lisans Tezi. Atatürk Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Ana Bilim Dalı, Fizikokimya Bilim Dalı, Erzurum.
- Kim, M. K., Zoh, K. D. (2016). Occurrence and removals of micropollutants in water environment. *Environmental Engineering Research*, 21(4), 319-332.
- Konuk Akça, İ. (2022). *Parasetamolün sulu çözeltilerden adsorpsiyon yöntemi ile giderilmesi*, Yüksek Lisans Tezi. Sakarya Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Sakarya.
- Kümmerer, K. (2009). The presence of pharmaceuticals in the environment due to human use-present knowledge and future challenges. *Journal Of Environmental Management*, 90(8), 2354-2366.
- Lakherwal, D. (2014). Adsorption of heavy metals: a review. *International Journal Of Environmental Research And Development*, 4(1), 41-48.
- Mackul'ak, T., Černanský, S., Fehér, M., Birošová, L., Gál, M. (2019). Farmasötikler, ilaçlar ve dirençli mikroorganizmalar-halkın sağlığı üzerindeki çevresel etki. *Çevre Bilimi ve Sağlıkta Güncel Görüş*, 9, 40-48.
- Madakbaş, S., Demir, S. (2019). *İbuprofen ve parasetamolün çeşitli polimerik malzemelerden kontrollü salınımı*. **Biltek 2019 Uluslararası Bilim, Teknoloji Güncel Gelişmeler Sempozyumu**, Ankara, Türkiye.
- Nas, M. Z. (2006). *Tekstil boyalarının sulu çözeltilerden adsorpsiyon yöntemiyle giderimi*, Yüksek Lisans Tezi. Gebze Yüksek Teknoloji Enstitüsü, Mühendislik ve Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Ana Bilim Dalı, İzmit.
- Pham, TH, Park, JW ve Kim, T. (2021). Parasetamolün kobalt katkılı grafit karbon nitrür ile sudan gelişmiş fotodegradasyonu. *Güneş Enerjisi*, 215, 151-156.
- Reddad, Z., Gerente, C., Andres, Y., Le Cloirec, P. (2002). Adsorption of several metal ions onto a low-cost biosorbent: kinetic and equilibrium studies. *Environmental Science and Technology*, 36, 2067-2073.
- Rodrigues, L. A., Pinto da Silva, M. L. C. (2010). Adsorption kinetic, thermodynamic and desorption studies of phosphate onto hydrous niobium oxide prepared by reverse microemulsion method. *Adsorption*, 16, 173-181.
- Sabitha, V., Ramachandran, S., Naveen, K. R., & Panneerselvam, K. (2011). Antidiabetic and antihyperlipidemic potential of *Abelmoschus esculentus* (L.)

- Moench. in streptozotocin-induced diabetic rats. *Journal of pharmacy and bioallied sciences*, 3(3), 397-402.
- Sarkar, M., Sarkar, A. R., Goswami, J. L. (2007). Mathematical modeling for the evaluation of zinc removal efficiency on clay sorbent. *Journal of Hazardous Materials*, 149, 666-674.
- Savcı, S. (2010). *Veteriner ve beşeri amaçlı kullanılan bazı farmasotiklerin canlı aktif çamur tarafından adsorpsiyonunun incelenmesi*, Yüksek Lisans Tezi, Çukurova Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı, Adana.
- Schroder, H. (1998). Characterization and monitoring of persistent toxic organics in the aquatic environment. *Water Res.*, 38, 151-158.
- Selvi, A. R. (2019). *Su ortamındaki analjeziklerin ve anti-enflamatuarların magnetik nanopartiküller ile giderimi*, Yüksek Lisans Tezi. Necmettin Erbakan Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı, Konya.
- Shen, D. D., Li, X., Qin, Y. L., Li, M. T., Han, Q. H., Zhou, J., ... Wu, D. T. (2019). Physicochemical properties, phenolic profiles, antioxidant capacities, and inhibitory effects on digestive enzymes of okra (*Abelmoschus esculentus*) fruit at different maturation stages. *Journal Of Food Science and Technology*, 56, 1275-1286.
- Sinirlioğlu, D. (2010). *Synthesis and characterization of inorganic-organic nanocomposite polymeric materials via controlled polymerization methods and click reactions*, Yüksek Lisans Tezi. Fatih Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul.
- Soylu, D. (2020). *Farklı çamur yaşlarında anti-enflamatuar özellikteki mikrokirleticilerin giderimi ve respirometrik yöntemler ile akut/kronik etkilerin belirlenmesi*, Yüksek Lisans Tezi. İstanbul Teknik Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Çevre Mühendisliği Ana Bilim Dalı, İstanbul.
- Şahan, A. (2007). *Farmosetik maddelerin aktif çamur arıtma prosesinde abiyotik gideriminin incelenmesi*, Yüksek Lisans Tezi. Çukurova Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Adana.
- Şeker, A. F. (2007). *Tekstil endüstrisinde kullanılan çeşitli boyar maddelerin aktif karbon ile gideriminin incelenmesi*, Yüksek Lisans Tezi. Gebze Yüksek Teknoloji Enstitüsü, Mühendislik ve Fen Bilimleri Enstitüsü, İzmit.
- Unuabonah, E. I., Adebawale, K. O., Olu-Owolabi, B. I., (2007). Kinetic and thermodynamic studies of the adsorption of lead (II) ions onto phosphate-modified kaolinite clay. *Journal of Hazardous Materials*, 144, 386-395.
- Xia F., Zhong, Y., Li, M., Chang, Q., Liao, Y., Liu, X., Pan, R. (2015). Antioxidant and anti-fatigue constituents of okra. *Nutrients*, 7(10), 8846–8858.
- Zeytuncu, B. (2014). *Elektrospinning tekniği ve uv ışımalarının eşzamanlı olarak uygulanması ile nanofiber membranların hazırlanması ve kıymetli metallere adsorpsiyonunda uygulanması*, Doktora Tezi. İstanbul Teknik Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul.



ÖZ GEÇMİŞ

Kişisel Bilgiler

Adı Soyadı : Rezan ORHAN

Eğitim Bilgileri

Lisans : Çevre Mühendisliği
Üniversite : Harran Üniversitesi
Fakülte : Mühendislik Fakültesi
Bölüm : Çevre Mühendisliği
Mezuniyet Yılı : 2018





VAN YÜZÜNCÜ YIL ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ
LİSANSÜSTÜ TEZ ORJİNALLİK RAPORU

Tarih:03/10/2023

Tez Başlığı: Abelmoschus esculentus L. Bitkisini Ekstraktından Sentezlenen Partiküllerin Karakterizasyonu ve İlaç Gideriminde Kullanılması

Yukarıda başlığı belirtilen tez çalışmamın, Kapak sayfası, Giriş, Ana bölümler ve Sonuç bölümlerinden oluşan toplam 59 sayfalık kısmına ilişkin, 03/10/2023 tarihinde şahsım/tez danışmanım tarafından Turnitin intihal tespit programından aşağıda belirtilen filtreleme uygulanarak alınmış olan orijinallik raporuna göre, tezimin benzerlik oranı %13(onüç) dir.

Uygulanan filtreler aşağıda verilmiştir:

- Kabul ve onay sayfası hariç,
- Teşekkür hariç,
- İçindekiler hariç,
- Simge ve kısaltmalar hariç,
- Gereç ve yöntemler hariç,
- Kaynakça hariç,
- Alıntılar hariç,
- Tezden çıkan yayımlar hariç,
- 7 kelimededen daha az örtüşme içeren metin kısımları hariç (Limit match size to 7 words)

Van Yüzüncü Yıl Üniversitesi Lisansüstü Tez Orijinallik Raporu Alınması ve Kullanılmasına İlişkin Yönergeyi inceledim ve bu yönergede belirtilen azami benzerlik oranlarına göre tez çalışmamın herhangi bir intihal içermediğini; aksinin tespit edileceği muhtemel durumda doğabilecek her türlü hukuki sorumluluğu kabul ettiğimi ve yukarıda vermiş olduğum bilgilerin doğru olduğunu beyan ederim.

Gereğini bilgilerinize arz ederim.

Tarih ve İmza

Adı Soyadı: Rezan Orhan
Öğrenci No: 20910001148
Anabilim Dalı: Kimya Mühendisliği
Programı: Tezli Yüksek Lisans
Statüsü: Yüksek lisans Doktora

DANIŞMAN
UYGUNDUR
Doç. Dr. Tuba ERŞEN DUDU

ENSTİTÜ ONAYI
UYGUNDUR
Prof. Dr. Harun AKKUŞ