



**TARTRAZİNİN ULTRASONİKASYON VE ULTRAVİYOLE  
DESTEKLİ YÖNTEMLE SULARDAN GİDERİMİNİN  
ARAŞTIRILMASI**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ**

**ZHALALADDIN JABBIYEV**

**MERSİN ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**KİMYA  
ANABİLİM DALI**

**MERSİN  
AĞUSTOS- 2023**

**TARTRAZİNİN ULTRASONİKASYON VE ULTRAVİYOLE  
DESTEKLİ YÖNTEMLE SULARDAN GİDERİMİNİN  
ARAŞTIRILMASI**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ**

**Zhalaladdin JABBIYEV**  
**ORCID ID: 0000-0002-3978-0345**

**MERSİN ÜNİVERSİTESİ**  
**FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**KİMYA**  
**ANABİLİM DALI**

**DANIŞMAN**  
**DOÇ. DR. Erdal YABALAK**  
**ORCID ID: 0000-0002-4009-4174**

**İKİNCİ DANIŞMAN**  
**PROF. DR. Ahmet Murat GİZİR**  
**ORCID ID: 0000-0002-9781-446X**

**MERSİN**  
**AĞUSTOS- 2023**

## ÖZET

### TARTRAZİNİN ULTRASONİKASYON VE ULTRAVİYOLE DESTEKLİ YÖNTEMLE SULARDAN GİDERİMİNİN ARAŞTIRILMASI

Kimyasal atıklar, tatlandırıcılar ve renklendiriciler içme sularına karıştırıldığında insan sağlığı başta olmak üzere diğer canlıların sağlığını tehdit etmektedir. Tartrazin azo boyarmadde grubuna ait olan bir sentetik renklendirici olup ambalajlı gıda besinleri, alkolsüz meşrubat içecekleri ve daha birçok alanda kullanılan bir katkı maddesidir. Çevreye ve içme sularına karışarak sağlığımızı tehdit eden bu boyar maddenin sulardan giderilmesi için etkili ve çevre dostu yöntemler gerekmektedir. Literatürde tartrazin ile ilgili yapılan birçok degradasyon yöntemlerinden en etili olanları ultraviyole ışınlanması veya farklı ekstraksiyon teknikleri veya adsorpsiyon ile giderime dayanmaktadır. Yapılan bu çalışma tartrazinin sulardan giderilmesi için ultraviyole ışınlanması ve ultrasonik ses ve H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> kombine sisteminin kullanılmasına dayanmaktadır.

Ön deneme çalışmalarında ultraviyole ve ultrasonikasyon yöntemleri beklendiği verim alınmadığı için UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem yöntemi ile yüksek verim elde edilmiştir. 3D grafiklerinde bu üç sistemin kombinasyonu ile H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>'nin daha etkili olduğunu göstermiştir. Bu kombine degradasyon sisteminde ultrasonik ses dalgalarının titreşimiyle HO<sup>•</sup> radikalinin oluşumu ve ultraviyole ışını ile degradasyon işlemi tetikler ve yüksek verim elde ederek renk giderimini sağlar.

Cevap Yüzey Metodu (CYM) deney prosesinin oluşturulması ve en uygun hale getirilmesi için kullanılan, değişken parametrelerin uyumunu çözümlen istatistiğe dayalı bir modelleme tekniğidir. CYM ile tartrazinin sulardan giderimi için uygulanan bu yeni yöntemin optimizasyonu sağlanmış olup tahmini değerler belirlenmiş ve tahmin edilen değerlerin deneysel değerlere yakınlığı ile karşılaştırılmıştır. Prosesin güvenilirliğini değerlendirmek için ANOVA testi yapılmıştır. Modelin F ve p değerleri sırasıyla 67,77 ve <0.0001 olarak elde edilmiştir. R<sup>2</sup> ve düzeltilmiş R<sup>2</sup> sırasıyla 0,9839 ve 0,9694 olarak elde edilmiştir. Cevap yüzey metodunun merkezi kompozit tasarımına göre uygulana modelde tartrazin, %71,93 Amplitüd, 90 dakika işlem süresinde ve 10 mM H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>'de %90,96 oranında giderilmiştir.

**Anahtar Kelimeler:** Tartrazin, Ultraviyole, Ultrasonikasyon, Hidrojen Peroksit, Su arıtımı

**Danışman:** Doç. Dr. Erdal YABALAK, Mersin Üniversitesi, Kimya Anabilim Dalı, Mersin.

**İkinci Danışman:** Prof. Dr. Ahmet Murat GİZİR, Mersin Üniversitesi, Kimya Anabilim Dalı, Mersin.

## ABSTRACT

### INVESTIGATION OF THE REMOVAL OF TARTRAZINE FROM WATER BY ULTRASONICATION AND ULTRAVIOLET ASSISTED METHOD

Chemical wastes, flavorings, and colorants threaten the health of other living things, especially human health when mixed with drinking water. Tartrazine is a synthetic colorant belonging to the azo dyestuff group and is an additive used in packaged foods, soft drinks, and many more. Effective and environmentally friendly methods are required to remove this dyestuff, which threatens our health by mixing with the environment and drinking water. Among the many degradation methods in literature, the most effective ones are based on removal by ultraviolet irradiation or different extraction techniques or adsorption. This study is based on the use of a combined system of ultraviolet irradiation, ultrasonic sound and  $H_2O_2$  to remove tartrazine from water.

High efficiency was obtained with the UV/  $H_2O_2$  / Ultrasonic assisted combined degradation system method, since the ultraviolet and ultrasonication methods did not achieve the expected efficiency in the pre-trial studies. In 3D graphics, it has been shown that  $H_2O_2$  is more effective with the combination of these three systems. In this degradation combined system, the vibration of ultrasonic sound waves triggers the formation of HO radicals and the degradation process with ultraviolet rays and provides high efficiency and color removal.

The Response Surface Method (RSM) is a statistical modeling technique that analyzes the fit of variable parameters, used to establish and optimize the experimental process. Optimization of this new method for the removal of tartrazine from waters by RSM has been achieved and estimated values have been determined and compared with the closeness of the estimated values to the experimental values. ANOVA test was performed to evaluate the reliability of the process. F and p values were obtained as 67.77 and  $<0.0001$ , respectively.  $R^2$  and adjusted  $R^2$  were obtained as 0.9839 and 0.9694, respectively. According to the central composite design of the response surface method, tartrazine was removed by 71.93% Amplitude, 90 minutes treatment time and 90.96% in 10 mM  $H_2O_2$  in the model applied.

**Keywords:** Tartrazine, Ultraviolet, Ultrasonic, Hydrogen Peroxide, Water treatment

**Supervisor:** Assoc. Prof. Dr. Erdal YABALAK, Mersin University, Department of Chemistry, Mersin.

**Second Supervisor:** Prof. Dr. Ahmet Murat GİZİR, Mersin University, Department of Chemistry, Mersin

## TEŞEKKÜR

Değerli danışman hocam Doç. Dr. Erdal YABALAK'a yüksek lisans eğitimim boyunca kendi çalışmaları ile bana ilham olan, bilgi ve tecrübelerini esirgemeyen, maddi ve manevi desteği için en derinden minnettarlığımı ifade etmek istiyorum.

Tez projemi imkanlar dahilinde destekleyen anlayış gösteren hoşgörüsü ile arkamda duran değerli ikinci danışman hocam Prof. Dr. Ahmet Murat GİZİR'e teşekkür ederim

Çalışmalarım boyunca hem araştırma hem de kariyerim hakkında verdiği bilgileri ve her konuda bilinçlendirdiği, motivasyonları ile yönlendiren Mersin Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Kimya Anabilim Dalı yüksek lisans öğrencisi Maryam Alnuaimy'e teşekkür ederim.

Lisans ve yüksek lisans eğitimim boyunca yanımda olan hiçbir konuda desteğini esirgemeyen Mersin Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Kimya Anabilim Dalı yüksek lisans öğrencisi Maya Nobatova'ya teşekkür ederim.

Tüm yaşamımda zorlukların üstesinden gelmem için her daim yanımda olan AİLEM'e sonsuz minnettarım.



# İÇİNDEKİLER

	Sayfa
<b>İÇ KAPAK</b>	<b>i</b>
<b>ONAY</b>	<b>ii</b>
<b>ETİK BEYAN</b>	<b>iii</b>
<b>ÖZET</b>	<b>iv</b>
<b>ABSTRACT</b>	<b>v</b>
<b>TEŞEKKÜR</b>	<b>vi</b>
<b>İÇİNDEKİLER</b>	<b>vii</b>
<b>TABLolar DİZİNİ</b>	<b>ix</b>
<b>ŞEKİLLER DİZİNİ</b>	<b>x</b>
<b>SİMGELER VE KISALTMALAR</b>	<b>xi</b>
<b>1. GİRİŞ</b>	<b>1</b>
<b>2. KAYNAK ARAŞTIRMALARI</b>	<b>4</b>
2.1. Tartrazin	4
2.2. Ultraviyole	8
2.2.1. UV fotokatalitik boya degradasyonları	10
2.3. Ultrasonikasyon	11
2.3.1. Ses Dalgaları	11
2.3.2. Ses dalgasının özellikleri	12
2.3.3. Ultrasound sistem mekanizması	15
2.3.4. Kirleticilerin gideriminde Ultrasonikasyonun kullanımı	17
2.4. Hidrojen peroksit	18
2.5. Cevap Yüzey Metodolojisi	19
<b>3. MATERYAL VE YÖNTEM</b>	<b>22</b>
3.1 Materyal	22
3.1.1. Çalışmada Kullanılan Cihaz ve Kimyasallar	22
3.1.2. Ultrasound sistemi	22
3.1.3 Ultraviyole Lambası	23
3.1.4 UV Spektroskopisi	23
3.1.5. Su banyosu	24
3.2. Yöntem	25
3.3. UV spektrofotometresi ile yapılan kantitatif analiz yöntemi	25
3.3.1. UV fotolitik Degradasyon Yöntemi	26
3.3.2. Ultrasonik Destekli Degradasyon Yöntemi	26
3.3.3. Kombine UV fotolitik- Ultrasonik destekli Degradasyon Yöntemi	26
3.3.4. UV/ H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> Degradasyon Yöntemi	26
3.3.5. H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> / Ultrasonik Destekli Degradasyon Yöntemi	27
3.3.6. UV/ H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine Degradasyon Yöntemi	27
	vii

3.4. CYM metodu	27
3.5. Toplam organik karbon (TOK) metodu	27
<b>4. BULGULAR ve TARTIŞMA</b>	<b>29</b>
4.1. Ön denemeler	29
4.2. UV/ H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine Degradasyon Yönteminde Uygulanan CYM Modelinin Değerlendirilmesi	32
4.3 Toplam organik karbon (TOK) giderimi	45
<b>5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER</b>	<b>46</b>
<b>KAYNAKLAR</b>	<b>47</b>
<b>ÖZGEÇMİŞ</b>	<b>54</b>

---



## TABLULAR DİZİNİ

	<b>Sayfa</b>
<b>Tablo 3.1.</b> Çalışmada kullanılan ultrasound sistemin özellikleri.	22
<b>Tablo 3.2.</b> Ultraviyole lambanın özellikleri	23
<b>Tablo 3.3.</b> Çalışmada kullanılan UV cihaz türü ve özellikleri	23
<b>Tablo 3.4.</b> Çalışmada kullanılan Su banyosu özellikleri	24
<b>Tablo 3.5.</b> Merkezi Kompozit Tasarımdaki (MKT) bağımsız parametrelerin seviyeleri ve kodları.	27
<b>Tablo 4.1.</b> UV/ H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon yönteminde metodunda elde edilen deneysel ve hesaplanan renk giderim yanıtları ve kalıntı değerleri.	33
<b>Tablo 4.2.</b> Sıralı Model Kareler Toplamı renk giderimi	34
<b>Tablo 4.3.</b> UV/ H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem yönteminde uygulanan CYM modelinin ANOVA sonuçları	34
<b>Tablo 4.4.</b> UV/ H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem yönteminde uygulanan CYM modelinin regresyon katsayıları	35
<b>Tablo 4.5.</b> Kodlanmış Faktörler Açısından Katsayılar	36
<b>Tablo 4.6.</b> Tartrazin UV/ H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon yönteminde elde edilen renk giderim ve TOK giderim değerleri	45

## ŞEKİLLER DİZİNİ

	Sayfa
Şekil 2.1. Tartrazin yapısı	4
Şekil 2.2. Tartrazinin toz hali ve sulu çözeltisi	5
Şekil 2.3. Tartrazinin Fenilhidrazin- <i>p</i> -sülfonik asit ve oksaloasetik ester ile kondenzasyonuna dayanan sentez tepkimesi	5
Şekil 2.4. 4-amino benzen sülfonik asidin ve sodyum nitritin tartrazinin saflaştırılması ve sodyum tuzunun sentez tepkimesi	6
Şekil 2.5. Bir madde tarafından ışının absorplanması	9
Şekil 2.6. Ultrasound frekans aralığı	13
Şekil 2.7. Çeşitli ultrasonik sistemler: a) ultrasonik banyo b) sıvı gıda işleme için kullanılan batch tipi prob sistemi ve c) sürekli prob sistemi	16
Şekil 3.1. Çalışmada kullanılan ultrasonik homojenizatör	22
Şekil 3.2. Çalışmada kullanılan Ultraviyole Lamba	23
Şekil 3.3. Çalışmada kullanılan UV spektroskopisi	24
Şekil 3.4. Çalışmada kullanılan Su banyosu özellikleri	25
Şekil 4.1. UV fotolitik degradasyon yöntemi	29
Şekil 4.2. Ultrasonik destekli degradasyon yöntemi	30
Şekil 4.3. Kombine UV fotolitik- Ultrasonik destekli degradasyon yöntemi	30
Şekil 4.4. UV/ H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> degradasyon yöntemi	31
Şekil 4.5. H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> / Ultrasonik Destekli Degradasyon Yöntemi	31
Şekil 4.6. UV/ H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon grafiği	32
Şekil 4.1. UV/ H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem yönteminde uygulanan CYM modelinin gerçek ve tahmin edilen değerleri arasındaki korelasyon.	37
Şekil 4.2. UV/ H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem yönteminde uygulanan CYM modelinin normal ve kalıntı çizim arasındaki korelasyon.	38
Şekil 4.3. UV/ H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem yönteminde uygulanan CYM modelinde Kalıntıların deneysel çalışmalara karşı grafiği.	39
Şekil 4.4. UV/ H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem yönteminde uygulanan CYM modelinde gerçek faktör kodlama ve referans sapma noktaları.	40
Şekil 4.5. UV/ H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon yönteminde uygulama süresi ve amplitüdün renk giderimi üzerindeki birleşik etkileri.	41
Şekil 4.6. UV/ H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem yönteminde H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> ve amplitüdün renk giderimi üzerindeki birleşik etkileri.	42
Şekil 4.7. UV/ H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem yönteminde uygulama süresi ve H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> renk giderimi üzerindeki birleşik etkileri.	43
Şekil 4.8. UV/ H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem modelinde uygulanan CCD modelinin küp grafiği.	44

## SİMGELER VE KISALTMALAR

Kısaltma/Simge	Tanım
UV	Ultraviyole
CCD	Merkezi Kompozit Tasarım
H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	Hidrojen Peroksit
CYM	Cevap Yüzey Metodolojisi
EF	Elektro Fenton
MHz	Megahertz
kHz	Kilohertz
TiO <sub>2</sub>	Titanyum oksit
LPME	Sıvı faz mikro ekstraksiyon
SPME	Katı faz mikro ekstraksiyon
CPE	Bulut ekstraksiyonu
WHO	Dünya sağlık örgütü
FDA	Gıda ve tarım örgütü
E	Avrupa
ADİ	Günlük tüketilebilir miktar
TOK	Toplam organik karbon

## 1. GİRİŞ

Renklendiriciler ve tatlandırıcılar, endüstriyel kullanım alanında önemli bir rol oynayan kimyasal sınıflardan biridir. Bu kimyasallar, çeşitli sektörlerde kullanılarak ürünlere çeşitli özellikler kazandırmakta ve müşterilerin ilgisini çekmeyi hedeflemektedir.

### *Renklendiriciler;*

- Gıda ve içecek sektörü: Renklendiriciler, gıda ve içecek ürünlerine çekici ve çeşitli renkler eklemek için kullanılır. Örneğin, meyve suyunda canlı bir renk elde etmek veya şekerlemelere çekici bir görünüm kazandırmak için renklendiriciler kullanılabilir.

- Kozmetik endüstrisi: Makyaj ürünleri, saç boyaları, tırnak cilaları gibi kozmetik ürünlerde renklendiriciler kullanılır. Bu, ürünlere istenilen renkleri vererek çekiciliklerini artırır.

- Tekstil endüstrisi: Kumaş boyama işlemlerinde renklendiriciler kullanılır. Bu, tekstil ürünlerine çeşitli renklerin uygulanabilmesini sağlar.

### *Tatlandırıcılar;*

- Gıda ve içecek sektörü: Tatlandırıcılar, gıda ve içecek ürünlerine tat vermek veya tatlılık düzeyini artırmak için kullanılır. Şeker yerine kullanılan yapay tatlandırıcılar, düşük kalorili veya kalorisiz ürünlerin üretiminde yaygın olarak kullanılır.

- İlaç endüstrisi: Birçok ilaç formülasyonunda tatlandırıcılar kullanılır. Özellikle pediatrik ilaçlarda çocukların ilaçları daha kolay alabilmesi ve tadın hoş olması için tatlandırıcılar tercih edilir.

Renklendiriciler ve tatlandırıcılar, ürünlere çekici özellikler kazandırmanın yanı sıra tüketici tercihlerini de etkileyebilir. Ancak, bazı kimyasalların insan sağlığına ve çevreye zarar verebileceği unutulmamalıdır. Bu nedenle, bu kimyasalların düzenlemeler altında üretilmesi ve kullanılması önemlidir. Ürünlerin etiketlerini kontrol etmek, doğal ve organik seçeneklere yönelmek ve güvenilir markaları tercih etmek, kimyasalların sağlık ve çevre üzerindeki etkilerini azaltmaya yardımcı olabilir. Bununla birlikte, bazı renklendiricilerin insan sağlığı ve doğal çevreye zarar verebileceği bilinmektedir. Zararlı maddeler içeren renklendiriciler, doğal kaynakların tükenmesine, su ve toprağın kirlenmesine ve biyolojik çeşitliliğin kaybına neden olabilir. Bazı renklendiricilerin de alerjik reaksiyonlara veya sağlık sorunlarına neden olabileceği bilinmektedir. Kimyasal ürünlerin ve süreçlerin çevre dostu ve insan sağlığına zarar vermeyen şekilde tasarlanması yeşil kimya olarak bilinir. Yeşil kimya, tehlikeli maddelerin azaltılması, geri dönüşümün teşvik edilmesi ve daha sürdürülebilir ürünlerin oluşturulması gibi temel ilkelere dayanmaktadır. Kimyasallar, hayatımızın vazgeçilmez bir parçası olduğundan, yeni ürünlerin ve endüstriyel gelişmelerin temelini oluşturur. Bununla birlikte, doğal çevreyi ve insan sağlığını korumak için bilinçli bir şekilde kullanılmalıdır. Bu hedefe ulaşmak için daha sürdürülebilir ve çevre dostu bir endüstriyel yaklaşım, yeşil kimya prensipleri tarafından desteklenir.

Gıda ürünlerinin çoğunluğunda renklendiriciler ve tatlandırıcılar kullanılmaktadır. Gıda katkı maddeleri uzun zamandır biliniyor. Tuz ve odun tütsüsünün bilinen en eski katkı maddeleri olduğu düşünülmektedir. Gıda boyaları ilk kez Mısırlılar tarafından MÖ 3500 yıllarında kullanıldı. Milattan önce 3000 yıllarında eti saklamak için yalnızca tuz kullanıldı. Milattan önce 900 yıllarında hem tuz hem de odun tütsüsü gıda saklamak için kullanıldı. Orta çağda ise gıdalara nitrat eklenerek botulizm önlenmiş ve etin rengi iyileşmiştir. Bugün, bu maddelerin birçoğu üç temel görevi yerine getirmektedir: kozmetik, koruyuculuk ve işleme. Zaman içinde bu katkı maddelerinin sayısı 4000'e ulaştı.

Her ülke, katkı kullanımını yöneten ulusal düzenlemeler ve resmi ulusal kuruluşlara sahiptir. Avrupa Birliği'nin ortak düzenlemeleri, gıda katkı maddelerini üç ana kategoriye ayırır: tatlandırıcılar, renklendiriciler ve diğer katkı maddeleri. Gıda katkı maddelerinin kullanımını düzenleyen yasalar vardır. Bu düzenlemeler, besinlerde kullanılan katkı maddesinin kötü kullanımını ve sağlık üzerindeki zararlı etkilerini önlemek için tasarlanmıştır. Birleşmiş Milletlere bağlı Gıda ve Tarım Örgütü (FAO) ile (WHO) Dünya Sağlık Örgütü'nün birlikte kurduğu ve Türkiye'nin de üyesi olduğu Uluslararası Gıda Kodeks Komisyonu (CAC), renklendiriciler, tatlandırıcılar ve diğer katkı maddeleri ile ilgili araştırmaları dünya çapında yürütmektedir. Uluslararası Gıda Kodeks Komisyonu tarafından kurulan Gıda Katkı Maddeleri Uzmanlar Komitesi (JECFA olarak da bilinir) her türlü gıda katkı maddesinin toksikolojik, karsinojenik, teratojenik ve mutajenik etkilerini belirlemek için deney hayvanları üzerinde uzun süreli araştırmalar yürütür. Farmakolojik deneylerin, katkı maddesinin yasallık kazanabilmesi için fare dışında iki değişik hayvanın üzerinde yapılmış olması gerekir. Hayvanlara hiçbir zarar vermeyen en yüksek dozun %1 veya %2 olması gerekir. Paracelsus, toksikoloji biliminin öncüsü olarak, "Her şey toksindir ve toksin ile toksin olmayanı ayıran dozdur" demiştir (Tülay, 2010).

Sağlığa zararlı olmadığına karar verilen katkı maddesi için "günlük tüketilebilir miktar- (kabul edilebilir günlük tüketim = ADI)" değerleri kullanılır. Elde edilen sonuçlar, gıdalarda kullanılmasında sakınca görülmeyen katkı maddeleri ve kullanım sınırlarını belirlemeye yardımcı olur. Her ülke, Dünya Sağlık Örgütü ve FAO ilgili kuruluşları tarafından kabul edilen standartlara uygun olarak sağlık kuruluşları katkı maddelerinin hangi gıdalara dahil edileceğini ve bu katkı maddelerinin miktarını kendi koşullarına göre belirler. Katkı maddeleri, gıda ürünlerinde çeşitli amaçlarla kullanılan maddelerdir. Bu maddeler, hazır gıda paketleri üzerinde özel adlar ve "E" (European) numarası ile belirtilir. Avrupa Birliği üyesi ülkelerde gıda katkı maddelerini kodlamak için "E" numaraları kullanılmıştır. İşte katkı maddelerinin kullanım amaçlarına göre sınıflandırılması ve "E" numaralarıyla belirtilen bazı örnekler:

1. Renklendiriciler E100-E199: Gıdaların renklerini iyileştirmek veya değiştirmek için kullanılır. Örnekler: E100 Kurkumin (sarı renk), E120 Karmin (kırmızı renk).

2. Koruyucular E200-E299: Gıdaların raf ömrünü uzatmak ve bakteri, küf gibi mikroorganizmaların oluşumunu engellemek için kullanılır. Örnekler: E200 Sorbik asit, E210 Benzoik asit.

3. Antioksidanlar E300-E399: Gıdaların oksidasyonunu önlemek ve bozulmasını engellemek için kullanılır. Örnekler: E300 Askorbik asit (C vitamini), E306 Tokoferol (E vitamini).

4. Tatlandırıcılar E900-E999: Gıdalara tat vermek veya tatlarını geliştirmek için kullanılır. Örnekler: E951 Aspartam, E951 Sakarin.

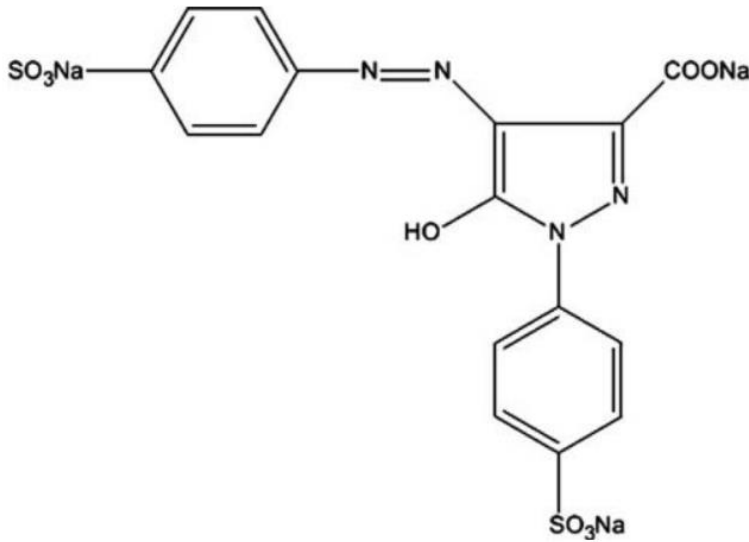
"E" kodunu taşıyan katkı maddeleri, toksikolojik açıdan güvenilir kabul edilir ve Avrupa Birliği tarafından onaylanmıştır (Tülay, 2010).

Bu renklendiricilerden biri de tartrazin E102 olarak bilinen kimyasaldır. Tartrazinin doğaya olan zararlarını ortadan kaldırmak için birçok çalışma yapılmıştır. Tartrazin, çeşitli yöntemler kullanılarak bozunabilen sentetik bir azo boyadır. Tartrazinin bozunması için bazı yöntemler oksidasyon, elektrokimyasal bozunma ve fotokatalitik bozunma olarak bilinir. Bu tez çalışmasında renklendirici olarak bilinen tartrazin maddesinin Ultrasonikasyon ve Ultraviyole fotokatalitik bozunma yöntemleriyle sulardan giderimi amaçlanmıştır.

## 2. KAYNAK ARAŞTIRMALARI

### 2.1. Tartrazin

Tartrazin, yiyecek ve içeceklere renk vermek için kullanılan kimyasal bir katkı maddesidir. Genelde suda çözülerek sarı rengi verir. Alkolsüz içkilerde, makarna, dondurma, tatlı şekerlerde, puding ve birçok daha ambalajlı ürünlerde kullanılır. Azo boya olarak bilinen tartrazin insanlarda astım, görme kaybı, cilt hastalığı alerjik reaksiyonlara sebep olabilirler. Tartrazin, E-102 olarak bilinen bir kimyasal olup pirozol halkası içeren monoazo yapıda sertifikalı sentetik bir boya maddesidir (Şekil 2.1). 1884 yılında Alman Kimyageri Johann Heinrich Ziegler tarafından ilk kez kömür katranından sentezlenmiştir (Gahramanlı, 2020).



Şekil 2.1. Tartrazin yapısı

**Ticari adı:** E102 veya FD&C Yellow 5 (Food Drug & Cosmetic Yellow 5).

**Kimyasal adı:** Trisodyum 5-hidroksi-1-(4-sülfanato-fenil)-4-(4-sülfanato-fenilazo)-H-pirazol-3-karboksilat (sodyum tuzu)

**Formülü:** C<sub>16</sub>H<sub>9</sub>N<sub>4</sub>Na<sub>3</sub>O<sub>9</sub>S<sub>2</sub>

**Mol kütlesi:** 534.3 g/mol

**Kaynama noktası:** 870 °C (1598 °F)

**Erime noktası:** 300 °C (572 °F) (Ameur vd., 2020).

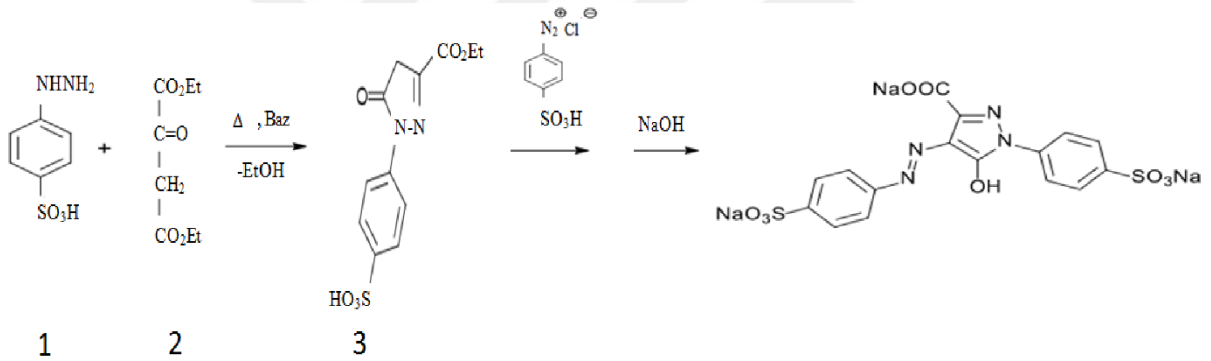
**Fiziksel ve Kimyasal Özellikleri:** Tartrazin bir azo boya maddesi olduğu için -N=N- grubu içermektedir. Tartrazin, turuncu-sarı renkli toz halinde bir boyadır ve azo boyaları için sıklıkla tercih edilen bir boyadır. Suda yüksek çözünürlüğe sahiptir ve çözüldüğünde altın sarısı çözeltiler oluşturur (Zhang vd., 2020).



Şekil 2.2. Tartrazinin toz hali ve sulu çözeltisi (Gahramanlı, 2020).

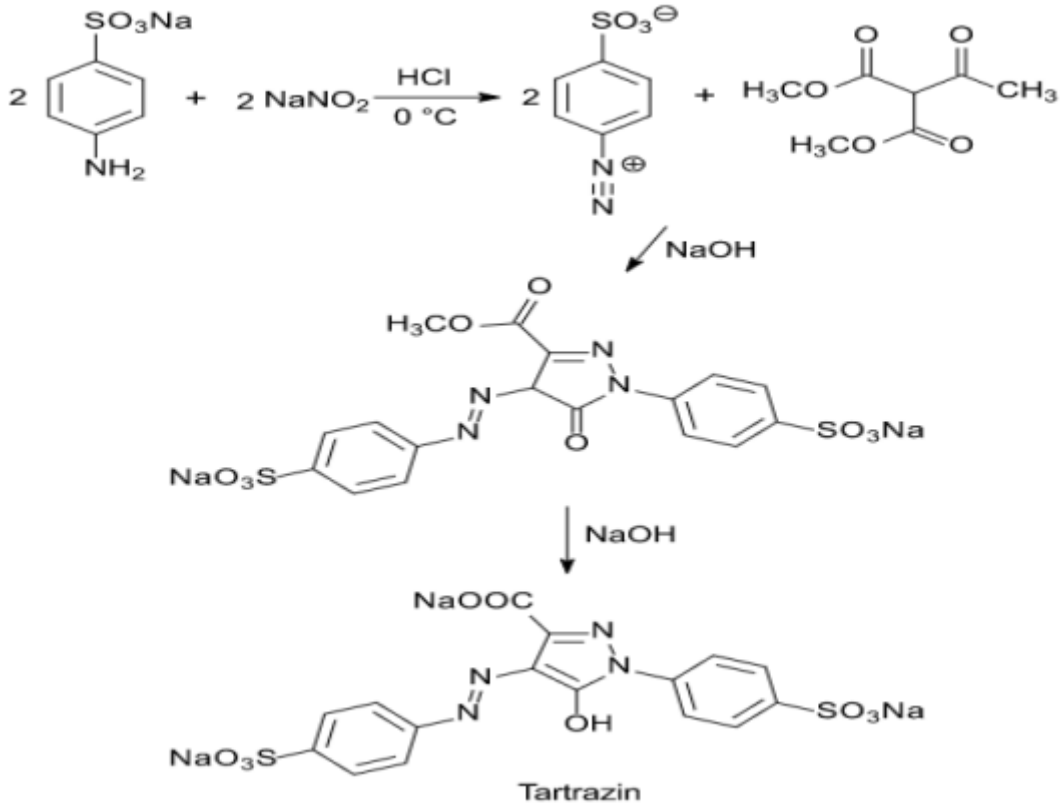
**Sentezi:** Tartrazin aşağıdaki tepkimelerle sentezlenebilir:

Şekil 2.3'te Fenilhidrazin-*p*-sülfonik asidin (1) oksaloasetik ester ile (2) kondenzasyonu, tartrazinin sentezi için gereklidir. Tepkime ürünü (3), diazot içeren sülfanilik asit ile karıştırıldıktan sonra sodyum hidroksit ile hidrolize edilerek Tartrazin elde edilir (Darwish vd., 2016).



Şekil 2.3. Tartrazinin Fenilhidrazin-*p*-sülfonik asit ve oksaloasetik ester ile kondenzasyonuna dayanan sentez tepkimesi

Şekil 2.4'te petrolün yan ürünü olan 4-amino benzen sülfonik asidin ve sodyum nitritin tepkimesi sonucunda tartrazin saflaştırılarak sodyum tuzu elde edilir (Gahramanlı, 2020).



**Şekil 2.4.** 4-amino benzen sülfonik asidin ve sodyum nitritin tartrazinin saflaştırılması ve sodyum tuzunun sentez tepkimesi

Azo boyaları, gıda ve tekstil endüstrisinde yaygın olarak kullanılan boyaların büyük bir bölümünü oluşturur. Tartrazin, bu azo boyalardan biridir. Tartrazin, gıdalara sarı renk vermek için kullanılır ve birçok gıda ürününde bulunabilir. Bunlar arasında şekerleme, alkolsüz içecekler, enerji içecekleri, pudingler, mısır cipsi, kahvaltılık tahıllar, kek karışımları, krema, çorbalar, soslar, toz içecek karışımları, spor içecekleri ve hazır gıdalar yer alır. Ayrıca, tartrazin bazı gıda dışı ürünlerde de bulunabilir, örneğin sabun, kozmetik ürünler, boya kalemleri ve ilaçlar. Tartrazinin sağlık üzerindeki etkileri hakkında ise bazı insanlarda intolerans veya alerjik reaksiyonlara neden olabilir. Dolayısıyla, tartrazinin kullanımıyla ilgili sağlık açısından dikkatli olunması önerilmektedir (Gahramanlı, 2020).

Tartrazinin aşırı tüketimi, deri döküntüleri, astım krizleri, kurdeşen, hiperaktivite, migren gibi sağlık sorunlarına yol açabilir. Norveç ve Avustralya gibi bazı ülkelerde kullanımı yasaklanmıştır. Ayrıca, tartrazin çevre üzerinde de olumsuz etkilere sahiptir. Gıda ve tekstil endüstrisinde kullanımının ardından oluşan atık sular, doğaya zarar verebilir. Bu nedenle, tartrazin içeren atık suların temizlenmesi önemlidir. Elektrokimyasal, adsorpsiyon, fotokatalitik bozunma ve filtrasyon gibi yöntemlerle tartrazin atıklarının temizlenmesi üzerine çalışmalar yapılmaktadır (Gahramanlı, 2020).

Tartrazin ile ilgili çalışmalarda su içerisinde bulunan renklendirici olarak kullanılan atıklardan sıvı-sıvı ekstraksiyon ve katı faz ekstraksiyon ve bulut nokta ekstraksiyonu (Cloud point extraction, BNE) yapılmıştır. En etkili ekstraksiyonlardan biri olarak BNE özellikle sulu çözeltilerden hidrofobik veya amfifilik bileşiklerin çıkarılması için yararlıdır. Hidrofobik analitler, yüzey aktif madde ile miseller veya diğer agregatların oluşumuyla bulut fazında çözünerek konsantre hale gelir. Yeşil kimya, çevresel olarak daha sürdürülebilir ve etkili kimyasal süreçlerin geliştirilmesini amaçlayan bir yaklaşımdır. Bu kapsamda, araştırmacılar minyatürleştirilmiş, etkili ve çevresel olarak ılımlı örnek ekstraksiyon tekniklerinin geliştirilmesine odaklanmaktadır. Bu tekniklerin amacı, kimyasalların çevreye ve insan sağlığına olan olumsuz etkilerini azaltmak ve daha sürdürülebilir bir şekilde kimyasal maddeleri elde etmektir. Tartrazinin giderimi/bozundurulmasına yönelik birçok farklı teknik uygulanagelmıştır. Bu yöntemlerden birkaçı aşağıdaki gibi verilebilir.

### ***Oksidasyon***

Oksidatif görünür ışık tartrazini parçalayabilir (Krishnaveni vd., 2017). Bir çalışmada, tartrazinin Oxone varlığında bozulmasını katalize etmek için kitosan türevi karbon ile simektit nanokompoziti üzerinde desteklenen kobalttan oluşan bir katalizör kullanılmıştır. Katalizör düşük sıcaklıklarda ve geniş bir pH aralığında mükemmel bir şekilde çalışmıştır. Katalizör, kitosan-smektitin kobalt emdirilmesi ile sentezlenmiş bir nanokompozit olarak kullanılmış. Katalizör, inert atmosferde 773 K'de daha fazla karbonize edilmiş. Katalizör, tartrazinin Oxone ile parçalanmasında test edilmiştir. Bozunmanın verimliliği tartrazin konsantrasyonundaki artışla azalmıştır. Oxone konsantrasyonundaki artış ve reaksiyon sıcaklığındaki artış bozunma hızını artırmıştır. Katalizör, pH aralığı 3.7'den 9'a kadar geniş bir pH aralığında etkili olmuş, ancak optimum pH 7 olarak bulunmuştur. Kinetik çalışmalar, tartrazin bozunmasının pseudo birinci dereceden kinetiği takip ettiğini göstermiştir. Aktivasyon enerjisi ( $E_a$ ) 79.23 kJ mol<sup>-1</sup> olarak belirlenmiştir. En düşük sıcaklıkta bile (298 K), katalizörün yüksek bozunma verimliliği gösterdiği görülmüştür (G. Stevanović vd., 2023).

### ***Elektrokimyasal bozunma***

PbO<sub>2</sub> katkılı karbon elektrotlar tartrazinin elektrokimyasal bozulması için kullanılabilir. Bu elektrotlar, on dakika içinde tartrazinin neredeyse tamamen ortadan kaldırılmasını sağlamıştır (Ghalwa vd., 2013). Voltammetrik deneyler, tartrazinin elektrokimyasal davranışını incelemek için kullanılabilir. Kıvılcımlı Mo-SPE'ler, pH 5'teki 0,1 M asetat tampon çözeltisinde, Ag/AgCl/3 M KCl referans elektroduna göre gün batımı sarısı (SY) için 0,730 V ve tartrazin (TAR) için 0,973 V'luk iyi tanımlanmış oksidasyon pikleri göstermiştir. Kıvılcımlı Mo-SPE'ler, düz veya elektrodepoze Mo<sub>x</sub>O<sub>y</sub> modifiye grafit SPE'lerden önemli ölçüde daha yüksek yanıtlar göstererek nano-molar aralıkta hedeflenen boyaların eşzamanlı tespitini mümkün kılmıştır. SY/TAR için 5 ila 250 nM konsantrasyon aralığında doğrusal bir kalibrasyon eğrisi oluşturulmuştur. Tespit edilebilirlik sınırları 2 nM (S/N 3) olarak belirlenmiştir. Kıvılcımlı Mo-

SPE'lerin diğer azo boyalara tepkisi de araştırılmıştır. Ayrıca, elektrotlar gerçek numunelerde SY ve TAR tayini için başarıyla kullanılmıştır. Yöntemin doğruluğu geri kazanım çalışmaları ile doğrulanmış ve geri kazanım oranı %94-109 arasında bulunmuştur (Diacu vd., 2012).

### ***Fotokatalitik bozunma***

Tartrazin fotokatalitik yöntemler kullanılarak parçalanabilir. Örneğin, yapılan bir çalışmada sentezlenen Ag/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> katalizörünün görünür ışık altında tartrazinin giderimini sağladığı belirlenmiştir. Tartrazin için Ag/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>'ün fotokatalitik etkinliği, bozulmamış g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> ile karşılaştırıldığında önemli ölçüde artmıştır (Wen, K vd., 2021).

Amerika Gıda ve İlaç Dairesi (FDA) ve Dünya Sağlık Örgütü (WHO) tarafından 2010 senesinde günlük alınabilecek tartrazin miktarı 0-10 mg/kg olarak belirlenmiştir. Günümüzde ise 0-7,5 mg/kg olarak yeniden düzenlenmiştir. Azo boya maddelerinin insan sağlığına ve çevreye olan zararlarını azaltmak için her geçen gün tartrazin üzerine daha fazla çalışma yapılmaktadır (Jadhav vd., 2020).

## **2.2. Ultraviyole**

UV radyasyon dalga boylarına göre farklı alt kategorilere ayrılır:

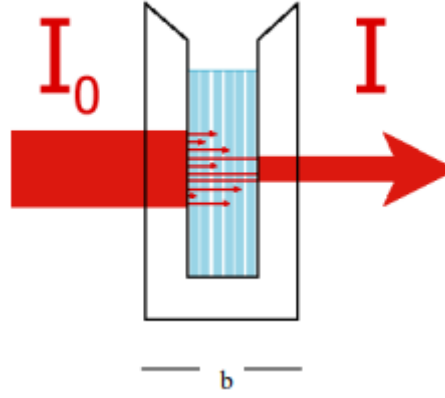
1. UVA (uzun UV, longwave UV, siyah ışık): 315-400 nm arasındaki dalga boyuna sahiptir. Bu tür UV radyasyonu, en derin cilt tabakalarına nüfuz edebilir ve yaşlanma sürecine katkıda bulunabilir. Ayrıca bazı cilt kanserlerinin oluşumuna da katkıda bulunabilir.

2. UVB (orta UV, medium wave UV): 280-315 nm arasındaki dalga boyuna sahiptir. UVB radyasyonu, cildin üst tabakalarına nüfuz eder ve güneş yanığına, cilt kanserine ve göz hasarına neden olabilir. Ayrıca D vitamini üretimine de katkıda bulunur.

3. UVC (kısa UV, shortwave UV, germicidal UV): 200-280 nm arasındaki dalga boyuna sahiptir. UVC radyasyonu, atmosfer tarafından emilir ve yeryüzüne ulaşmadan önce filtrelenir. Bu nedenle, güneş ışığından gelen UVC radyasyonu doğal olarak çok azdır. Ancak, yapay UVC ışığı özellikle sterilizasyon ve dezenfeksiyon amaçlarıyla kullanılır (Özkütük, 2007).

Bir maddenin ışın absorpsiyonu, uyarılmış hal ile temel hal arasındaki enerji farkının eşit veya daha az olması gerektiği anlamına gelir. Elektromanyetik radyasyon, UV görünür bölgesi (100-400 nm) veya görünür bölgesi (400-800 nm) tarafından absorbe edildiğinde, molekülün bağ elektronları uyarılır. Uyarılmış tanecikler, düşük enerjili temel hal yerine daha yüksek enerjili uyarılmış hale geçerler. Uyarılan taneciklerin ömrü çok kısa olduğundan, enerjilerini kaybederek tekrar temel hale dönerler ( $10^{-8}$  -  $10^{-9}$  s). Lambert-Beer kanunu, UV-görünür bölge absorpsiyon spektroskopisinin temelini oluşturur. Şekil 2.5'te gösterildiği gibi, bir maddeye  $I_0$  enerjili bir ışın gönderildiğinde, ışının enerjisinin bir kısmı

moleküldeki elektronik geçişlere harcanır ve ardından ışın maddeyi terk eder. Absorplanan ışın, maddeye giren ışın ile maddeden ayrılan ışın arasındaki farklılıktan kaynaklanır (Sezen, 2013).



Şekil 2.5 Bir madde tarafından ışının absorplanması (Sezen, 2013).

Lambert-Beer kanununa göre:

Lambert-Beer kanunu, bir maddenin çözeltisindeki absorbans miktarı ile madde konsantrasyonu arasındaki ilişkiyi ifade eder. Kanunun matematiksel formülü (Eş 1):

$$A = \epsilon bc \quad (1)$$

burada:

- A, absorbansı temsil eder.

-  $\epsilon$ , molar absorptivite (molar absorbans katsayısı) olarak adlandırılan bir parametredir. Her molekül için özel bir değerdir ve madde tarafından absorbe edilen ışığın miktarını belirler.

- b, ışın yolunun uzunluğunu temsil eder. Genellikle santimetre cinsinden ifade edilir.

- c, madde konsantrasyonunu ifade eder. Genellikle gram/litre (g/L) cinsinden ifade edilir.

Bu kanun, bir maddenin absorbe ettiği ışığın miktarını belirlemek için kullanılır. Özellikle spektrofotometri gibi analitik tekniklerde sıklıkla kullanılır.  $H_2O_2$  fotolizi ise  $H_2O_2$  moleküllerinin ultraviyole (UV) radyasyonu ile aydınlatıldığında meydana gelen bir reaksiyondur (Sezen, 2013).

$H_2O_2$  eklenen bir çözelti, UV radyasyonu altında ışınlandığında  $H_2O_2$  homolitik olarak parçalanır ve  $HO\cdot$  (hidroksil) radikalleri oluşur. Bu reaksiyon, kirletici maddelerin oksidasyonunda kullanılabilir, çünkü  $OH\cdot$  radikalleri oldukça reaktiftir ve birçok organik bileşiği okside edebilir. Bu süreçte, kullanılan UV ışığının dalga boyunun 280 nm'den daha kısa olması gerekmektedir. Çünkü  $H_2O_2$ , bu dalga boyunda daha fazla absorbe eder ve homolitik parçalanma reaksiyonu gerçekleşir (Eş. 2). Sonuç olarak,  $H_2O_2$

fotolizi yöntemi, kirleticilerin giderilmesi veya organik bileşiklerin oksidasyonu gibi uygulamalarda kullanılan etkili bir yöntemdir (Arslan vd., 2000).



UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> prosesinin dezavantajları şunlardır: reaksiyonun UV-C radyasyonu ( $\lambda \leq 300$  nm) altında gerçekleşmesi nedeniyle reaktörün yapısı kısıtlıdır, maliyeti yüksektir, organik moleküllerin perdeleme yapması ve H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>'nin molar absorptivitesinin düşük olması nedeniyle ışığın az bir kısmı kullanılır. Sulu ortamlarda kafes etkisi nedeniyle kuantum verimi de yarıya düşer (Andreozzi vd., 1999)

### 2.2.1. UV fotokatalitik boya degradasyonları

UV fotokatalitik boya bozunması, bir çözeltilerden boyaları parçalamak ve uzaklaştırmak için UV ışığı ve bir fotokatalizör kullanma sürecini ifade eder. Fotokatalitik boya degradasyonları, tekstil atıksularından boyaların giderilmesi için çeşitli kimyasal ve fiziksel işlemler kullanılarak gerçekleştirilen ileri oksidasyon sürecidir. Bu işlemler, fotokatalizörleri kullanarak boyaların kimyasal ve renk öğelerini değiştirmek için kullanılır. Fotokatalitik boyanın bozulmasıyla ilgili birkaç araştırmanın özetleri aşağıdadır:

Bir çalışmada, doğrudan güneş ışığı ışınlanması altında metilen mavisi boyasının fotokatalitik bozunması için Sn katkılı CdS nanopartikülleri kullanılmıştır. Sn katkılı CdS nanopartikülleri, elektron deliği çiftlerinin rekombinasyonunu azaltan Sn ve CdS arasındaki arayüzey eylemleri nedeniyle gelişmiş fotokatalitik aktivite göstermiştir (Venkatesh vd., 2020).

Bir başka çalışma ZnO nanoyapıları ile doldurulmuş selüloz asetat membranlar kullanılarak metilen mavisi boyasının bozunmasına odaklanmıştır. Membranlar UV ışığı altında önemli fotokatalitik oksidasyon sergilemiş ve bu da etkili boya bozunması ile sonuçlanmıştır (Asiri vd., 2022).

MnFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> ferritlerin Zn<sup>2+</sup>/La<sup>3+</sup> iyonları ile katılanmasının boya bozunması için fotokatalitik verimliliği arttırdığı bulunmuştur. Çalışma, katkılı fotokatalizörler kullanılarak boya bozunması için sözde birinci dereceden kinetiği göstermiştir (Kour vd., 2023).

Çalılık tekstil atık suyundan reaktif bir boya olan Everzol Black B'nin fotokatalitik oksidasyonunda renk giderimi ve kimyasal oksijen ihtiyacı (KOİ) parametrelerini incelemiştir. Deneylerde UV-A ışığı kullanılmış ve TiO<sub>2</sub> katalizörü ile farklı katalizörlerin etkisi karşılaştırılmıştır. Optimum koşullar altında kırmızı çamur hariç neredeyse tüm katalizörlerin tam renk giderimi sağladığı gözlemlenmiştir. KOİ giderimi açısından TAC/TiO<sub>2</sub> en yüksek giderim oranına (%91,11) sahipken, bunu B<sub>1</sub>/TiO<sub>2</sub> (%88,09), TiO<sub>2</sub> (%82,456), CAC/TiO<sub>2</sub> (%65,96) ve B<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> (%49) izlemiştir. Kırmızı çamurun

kullanıldığı sistemde KOİ'de %20,5 artış gözlenirken, renk giderimi ihmal edilebilir düzeyde (%0,39) kalmıştır (Çalik, 2008).

Dwiasi ve Setyaningtyas fotokatalitik TiO<sub>2</sub> kullanılarak tartrazinin Mie endüstrisi atık suyundan giderimi araştırmışlar. Deneylerde UV-A ışığı ve güneş ışığı kullanılmış, pH ve zaman gibi faktörlerin etkisi değerlendirilmiştir. Sonuçlar fotokatalitik TiO<sub>2</sub> kullanımının tartrazin gideriminde etkili olduğunu göstermiştir (Dwiasi, D.W., ve Setyaningtyas, T. 2014).

Firmansyah ve diğer çalışma arkadaşları TiO<sub>2</sub>-Zeolit fotokatalizörünün tartrazin giderimi üzerindeki etkisini araştırmışlar. Deneylerde farklı tartrazin konsantrasyonları kullanılmış ve farklı fotokatalizör dozları ve süreleri test edilmiştir. Sonuçlar, 100 mg TiO<sub>2</sub>-Zeolit kullanımının ve 200 dakika boyunca UV-A ışığına maruz bırakmanın tartrazin gideriminde en etkili olduğunu göstermiştir (Firmansyah vd., 2015).

Bu çalışmalar UV fotokatalitik yöntemlerin tartrazin gibi organik bileşiklerin gideriminde etkili bir yöntem olduğunu göstermektedir. Fotokatalizörlerin türü, çalışma parametreleri ve kullanılan boyaların özellikleri gibi faktörlerin de giderim verimi üzerinde etkili olduğu görülmektedir.

## **2.3. Ultrasonikasyon**

### **2.3.1. Ses Dalgaları**

Ses, insan kulağının duyabileceği frekans aralığında (16-20 kHz) ölçülmektedir. Bununla birlikte, ses dalgaları çeşitli frekanslarda olabilir ve farklı adlarla tanımlanabilir.

- İnfra-sound: 20 Hz'den daha düşük frekanslı ses dalgalarıdır. İnsan kulağı tarafından genellikle algılanamazlar. Örneğin, deprem dalgaları ve bazı hayvanların iletişimde kullanılan düşük frekanslı sesler infra-sound olarak adlandırılır.

- Ultrasound: 20 kHz'den daha yüksek frekanslı ses dalgalarıdır. İnsan kulağı tarafından algılanamazlar. Ultrasound genellikle bilim, tıp ve endüstriyel uygulamalarda kullanılır. Örneğin, ultrasonografi (ultrason) tıbbi görüntüleme tekniğinde ultrasound kullanılır.

- Enerji üretimi: Saniyede 20.000 veya daha fazla ses dalgasının üretilmesi enerji üretimidir. Bu, bir sesin yüksek frekanslarda titreşmesi veya bir hoparlörden çıkan yüksek ses seviyesi anlamına gelebilir.

- Ultrasound geçirgenliği: Ultrasound, katı, sıvı veya gazlardan geçebilen ve insan kulağı tarafından algılanamayan ses dalgalarıdır. Ultrasound, malzeme testi, tıbbi teşhis, temizlik, haberleşme ve diğer birçok uygulamada kullanılan bir araştırma ve inceleme aracıdır.

Özetlemek gerekirse, sesin frekans aralığına bağlı olarak farklı adlar ve özellikler kullanılır. İnfrasound düşük frekanslı ses dalgalarını, ultrasound ise yüksek frekanslı ses dalgalarını ifade eder. Ultrasound, insan kulağı tarafından algılanamaz ve çeşitli alanlarda kullanılan bir araştırma aracıdır. (Carovac vd., 2011).

Pierre ve Curie'nin 1880'de piezoelektrik etkiyi keşfetmesi, ses dalgası teknolojisinin gelişmesine yol açtı. Bu keşif, sonraki yıllarda çeşitli alanda kullanılan sesli cihazların ortaya çıkmasını sağladı. 1942 yılında Avusturyalı Theodore Dussik, tıbbi ultrasonografiyi tanımladı. Bu yöntem, ultrasound kullanarak vücut içindeki dokuları görüntülemeyi mümkün kıldı. Tıbbi alanda tanı ve teşhis amaçlı kullanılan ultrasonografi, bugün hala yaygın bir şekilde kullanılan bir teknolojidir. İkinci Dünya Savaşı'nın ardından, ses dalgası teknolojisinde modern gelişmeler yaşandı. Bu dönemde daha gelişmiş sesli cihazlar ve sistemler geliştirildi. Günaydın (2011) ve Mason (1999) tarafından belirtilen bilgilere göre, Ludwig ve Struthers ses dalgalarını kullanarak pankreastaki taşları ilk kez gösterdi. Bu, ses dalgalarının tıbbi alanda tedavi amaçlı kullanımına bir örnektir. 1960'larda, denizaltılardan yayılan ses dalgalarının balıkları öldürdüğü keşfedildi. Bu keşif, mikropları yok etmek için ultrasound teknolojisinin kullanılmasını teşvik etti (Piyasena vd., 2003). Ultrasound, temizlik, dezenfeksiyon ve mikrobiyal kontrol gibi birçok alanda kullanılan etkili bir teknolojidir.

Bu gelişmeler, ses dalgası teknolojisinin tıp, iletişim, endüstri ve diğer birçok alanda kullanımının yaygınlaşmasına ve ilerlemesine katkıda bulunmuştur. Katılarda boyuna veya enine dalgalar, sıvılarda ve gazlarda boyuna dalgalar olarak yayılan titreşim enerjisi, ses dalgaları olarak bilinir (Mason, 1999). Ses dalgaları bilimi, bilindiği gibi çok çeşitli alanlardan (yaşam ve yer bilimleri, mühendislik ve mühendislik gibi) gelir. İnfrasound, sound ve ultrasound, frekans spektrumuna göre üç ana kategoriye ayrılabilir. (20 Hz–20 kHz) sound duyarlılığı olarak bilinir. İnfrasound, insanın işitme aralığının altındaki frekanslarla ilgilenen bir daldır. 20 kHz üzeri, ultrasound moleküller arası daha geniş elastik dalgalar kapsar.

Sıcaklık, basınç veya her ikisinin kombinasyonu, ultrasound işleminin etkisini artırabilir. Sıcaklık ve basıncın bir ultrason işlemini sıcaklıkla birleştirmesi termosonikasyon olarak bilinir; basınçla birleştirilmesi manosonikasyon olarak bilinir, her ikisinin uygulaması da fotosonikasyon olarak bilinir (Chemat vd., 2011; Şengül vd., 2011).

### **2.3.2. Ses dalgasının özellikleri**

Ultrasound, insan kulağının duyamayacağı yüksek frekanslara (>20 kHz) sahip olan ses dalgalarıdır. Ultrasound uygulamalarında, ses dalgalarının frekans aralığı belirli bir sınırlama olmamakla birlikte, genellikle gazlarda 5 MHz ve sıvılarda 500 MHz kullanılır.

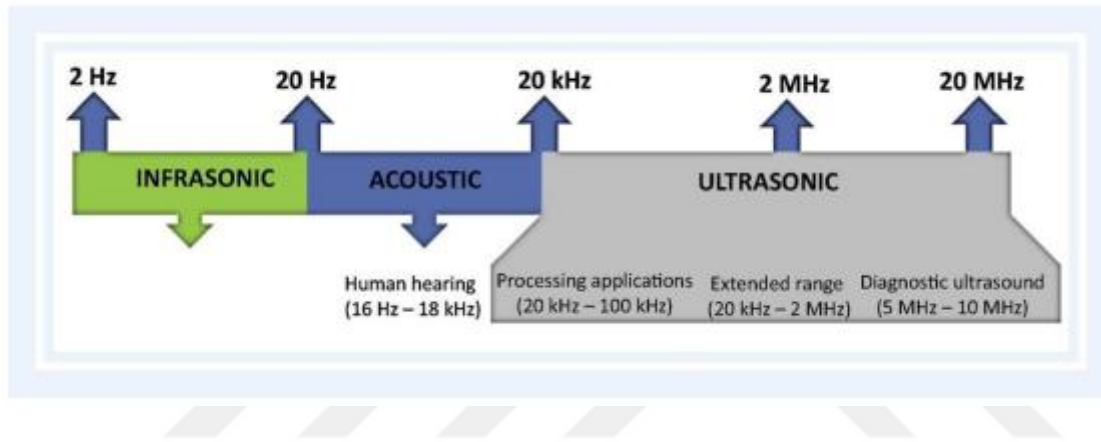
- Ses dalgalarının frekansına bağlı olarak, üç kategoriye ayrılabilirler:

1. Güç ultrasonu: 20 kHz ile 100 kHz arasındaki frekans aralığıdır. Bu frekans aralığı genellikle endüstriyel ve temizlik uygulamalarında kullanılır.

2. Yüksek frekans veya genişlemiş aralık: 20 kHz ile 2 MHz arasındaki frekans aralığıdır. Bu frekans aralığı, tıbbi ve endüstriyel uygulamalarda kullanılır.

3. Diagnostik ultrasound: 1 MHz'den daha yüksek frekanslardaki ses dalgalarıdır. Bu frekans aralığı, tıbbi teşhis amaçlı kullanılan ultrason cihazlarında yaygın olarak kullanılır.

Şekil 2.6, ses dalgalarını frekans aralığına göre üç kategoriye ayırarak gösterir. Bu bilgiler ışığında, ultrasound 'un yüksek frekanslı ses dalgalarını ifade ettiğini ve farklı uygulamalarda kullanıldığını söyleyebiliriz (Tiwari vd., 2008).



Şekil 2.6. Ultrasound frekans aralığı (Seydi, 2018)

Ultrasonik dalga genlik amplitüde (A) ve frekans (f) ile tanımlanır. Ses dalgalarında ise dalga boyu ( $\lambda$ ) iki tepe arasındaki mesafeyi ifade eder. Frekans (f) ise bir saniyede meydana gelen ses titreşim sayısı veya bir noktadan geçen salınımdır. Genlik (A) ise ses dalgalarının gücünü gösterir (Tiwari vd., 2008).

Ultrasound yoğunluğunu ölçmek için aşağıdaki formül kullanılır (Eş. 3):

$$UI = 4P / \pi D^2 \quad (3)$$

Burada,

UI: Ultrason yoğunluğu

P: Birim zamandaki güç

D: Ultrason sistemindeki probun çapı (cm)

Ses alanında oluşan enerji miktarı, ultrasound uygulamalarının sınıflandırılmasında kullanılır. Farklı enerji yoğunluklarına sahip ses dalgaları, farklı uygulama alanları için kullanılabilir. Bu sınıflandırmada kullanılan bazı terimler şunlardır:

- Ses kuvveti (W): Sesin gücünü ifade eder.
- Ses şiddeti ( $W/m^2$ ): Birim alan başına düşen ses gücünü ifade eder.
- Ses enerji yoğunluğu ( $W/m^3$ ): Birim hacim başına düşen ses enerjisini ifade eder.

Ultrason, çeşitli alanlarda kullanılmaktadır. Bunlar arasında şunlar bulunur:

- Kimyasal: Malzemelerin karıştırılması, reaksiyon hızının artırılması, emülsiyon oluşturma gibi uygulamalar.

- Biyolojik: Hücre lizisi, DNA parçalanması, hücre zarı geçirgenliğinin artırılması gibi biyolojik çalışmalarda kullanılır.

- Gıda işleme: Gıdaların sterilizasyonu, enzim aktivitesinin değiştirilmesi, özütlenme gibi uygulamalar.

- İlaç: İlaçların mikropartiküllerine yönelik formülasyon geliştirme, yüksek basınçlı homojenizasyon gibi uygulamalar.

- Tıbbi: Görüntüleme (ultrasonografi), taş kırma, doku kesme gibi tıbbi uygulamalarda kullanılır.

- Savunma: Akustik tespit, su altı keşif ve konumlandırma gibi askeri amaçlarla kullanılır.

Düşük ve yüksek enerjili ultrasound uygulamalarının sınıflandırılması aşağıda verilmiştir:

Düşük Enerjili Ultrason Kullanım Alanları:

- Yüzey temizleme
- Emülsiyon oluşturma
- Reaksiyon hızının artırılması
- Gıda işleme
- İlaç formülasyonu

Yüksek Enerjili Ultrason Kullanım Alanları:

- Taş kırma
- Dokuların kesilmesi
- Hücre lizisi
- DNA parçalanması

- Görüntüleme (ultrasonografi) (Awad vd., 2012; Mar vd., 2017; Muthukumarappan vd., 2010; Ojha vd., 2017; Paniwnyk, 2017).

### 2.3.3. Ultrasound sistem mekanizması

Ultrasonik sistemin temel bileşenleri şunlardır:

1. Dönüştürücü: Yüksek frekanslı elektrik akımını mekanik titreşimlere dönüştürür. Ultrasonik sistemlerde genellikle piezoelektrik malzemeler kullanılır. Mekanik bir basınç uygulandığında, bu malzemelerde elektriksel gerilim oluşur.
2. Jeneratör: Alternatif akımı, dönüştürücünün kullanabileceği yüksek frekanslı alternatif akıma dönüştürür. Jeneratör, ultrasonik sistem için gerekli olan enerjiyi sağlar.
3. İletici: Mekanik titreşimleri ultrasonik işlemin uygulanacağı ortama ileten bir yapıdır. İletici genellikle bir çubuk veya plakadan oluşur ve dönüştürücü tarafından üretilen titreşimleri iletmek için kullanılır.

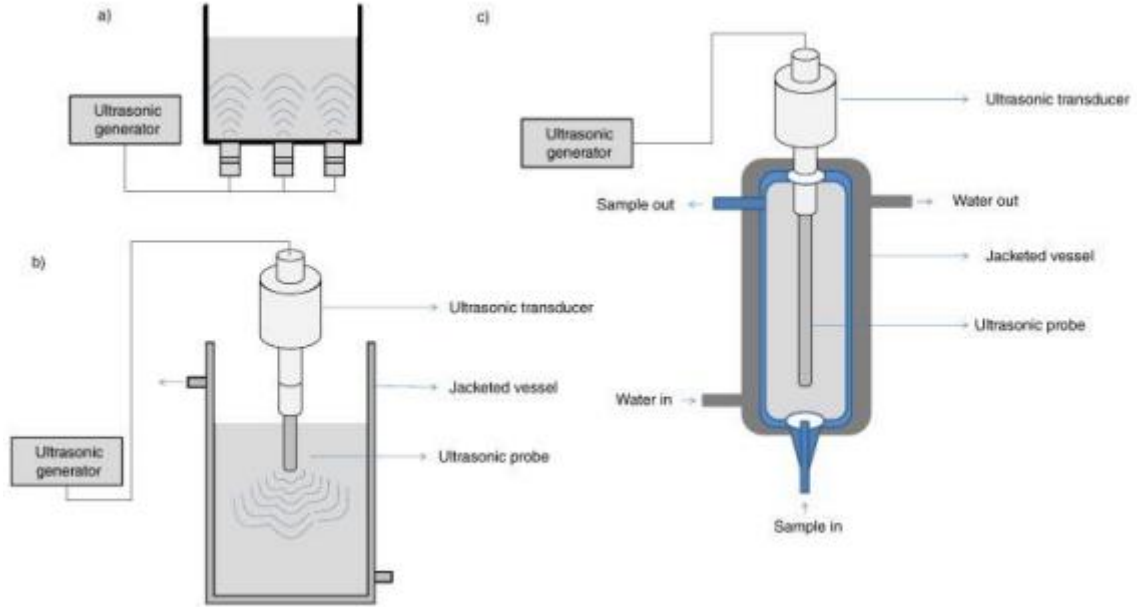
Ultrasonik sistemlerde kullanılan dönüştürücülerin üç ana türü vardır:

1. Gaz zorlamalı dönüştürücüler: Sirenler veya ısıklar gibi gaz basıncı kullanarak mekanik titreşimler üretir.
2. Sıvı zorlamalı dönüştürücüler: Basit ve dayanıklı olan bu dönüştürücüler, sıvı basıncı kullanarak mekanik titreşimler üretir.
3. Elektromekanik dönüştürücüler: Manyetostriktif dönüştürücüler ve piezoelektrik dönüştürücüler gibi farklı tipleri vardır. Piezoelektrik dönüştürücüler, mekanik bir basınç uygulandığında bazı seramik ve kristal malzemelerde elektriksel gerilim oluşmasını kullanır (De Castro ve Capote, 2006; Mason, 1998).

Bu bilgilere dayanarak, sıvı gıda işleme için kullanılan yaygın ultrasonik sistemler aşağıdakileri içerebilir:

- Ultrasonik banyo: Sıvı gıdaların ultrasonik titreşimlere maruz bırakıldığı bir banyo sistemi.
- Ultrasonik homojenizatör: Sıvı gıdaları homojenleştirmek veya karıştırmak için kullanılan bir sistem.
- Ultrasonik dispersiyon sistemi: Partikülleri dağıtmak veya emülsiyon oluşturmak için kullanılan bir sistem.
- Ultrasonik temizleme sistemi: Sıvı gıda işleme ekipmanlarını temizlemek için ultrasonik titreşimlerin kullanıldığı bir sistem.

Bu sistemler, sıvı gıdaların işlenmesi ve işlenmiş gıdalarda kalite iyileştirmesi için kullanılan ultrasonik teknolojinin birkaç örneği şekil 2.7’de verilmiştir (Zinoviadou vd., 2015).



**Şekil 2.7.** Çeşitli ultrasonik sistemler: a) ultrasonik banyo b) sıvı gıda işleme için kullanılan batch tipi prob sistemi ve c) sürekli prob sistemi (De Castro ve Capote, 2006; Mason, 1998).

Prob sistemleri, ultrasound cihazlarında kullanılan dönüştürücüye bağlı olarak farklı çaplarda proplar kullanır. Bu proplar, sistem tarafından uygulanan gücün yoğunluğunu ve sıvı hacmini belirleyen önemli bileşenlerdir.

- Proplar, dönüştürücüye takılan başlıklar olarak kullanılır ve ultrasonik titreşimleri sıvıya aktarır. Probun çapı, uygulanan gücün yoğunluğunu ve ses dalgalarının dağılımını etkiler.
- Genellikle prob doğrudan işlenecek materyale daldırılır ve güç ayarlaması yapılabilir. Bu sayede belirli bir ultrasonik yoğunluk ( $W/cm^2$ ) üretilir.
- Propların yapısı, mekanik aşınma dayanıklılığı için titanyum ve alüminyum alaşımlarından yapılmıştır. Bu malzemeler, titreşimin en iyi şekilde probdan sıvıya iletilmesini sağlar.
- Propların çapları, uygulanacak işleme göre değişebilir. Daha küçük çaplara sahip prob başlıkları, daha yoğun ve odaklı bir ultrasonik enerji sağlarken, daha büyük çaplara sahip prob başlıkları daha geniş bir alana yayılan bir enerji sağlar.
- Propların tasarımı ve özellikleri, uygulanacak işleme ve kullanılacak sıvıya bağlı olarak değişebilir. Örneğin, gıda işleme veya tıbbi uygulamalar için farklı prob tipleri ve çapları kullanılabilir.

Ultrasonik prob sistemleri, çeşitli endüstrilerde sıvıların işlenmesi, karıştırılması, temizlenmesi ve analiz edilmesi gibi birçok uygulamada kullanılır. Proben doğru seçimi, işlem verimliliği ve sonuçların kalitesi için önemlidir (De Castro ve Capote, 2006; Mason, 1998).

#### 2.3.4. Kirleticilerin gideriminde Ultrasonikasyonun kullanımı

Çeşitli kirleticilerin sulardan giderilmesine dair literatürde birçok farklı yaklaşım bildirilmiştir. Örneğin, nanoselüloz bazlı adsorbanlar, atık sulardaki boya için kullanılabilir (Arslan, R. vd., 2021). Yer fıstığı kabuğu gibi biyosorbentler de tekstil boyalarının temizlenmesine yardımcı olabilir (Gül vd., 2020). Ek olarak, istilacı bitkilerin kullanılması, atık sulardaki boya için giderilmesine yardımcı olabilir (Saleh vd., 2019). Atık su arıtma çamurları da enerji üretebilir (Ersoy vd., 2023). Tarımsal amaçlı atık su arıtma çamurlarının kullanımı, *Clarkia amoena* bitkisi tarafından incelenmiştir (Demirkan vd., 2014)

Atık sulardaki boya ve kirliliği gidermek için ultrasonikasyon son yıllarda oldukça fazla ilgi görmüştür. Ultrasonikasyon, boyalar gibi sudaki inatçı organik maddelerin bozunması için umut verici bir tekniktir. Proses, kirleticileri parçalayabilen yüksek sıcaklıklar ve basınçlar üreten akustik kaviteasyon oluşturmak için yüksek frekanslı ses dalgalarının kullanılmasını içerir. Çeşitli çalışmalar, genellikle fotokataliz veya ileri oksidasyon gibi diğer tekniklerle birlikte boya bozunması için ultrasonikasyon kullanımını araştırmıştır.

Bir çalışmada, aktif karbon katkılı manyetik nanokompozitler ile atık sulardaki toksik boya için ultrason destekli remediasyonu araştırılmıştır (Gautam vd., 2021). Çalışmada, tartrazin için maksimum giderim yüzdesinin ultrasonikasyon altında 60 dakikada %86 olduğunu bulunmuştur. Ultrason destekli adsorpsiyon ve bozunma, ultrasonik dalgalar altında sıcak noktaların oluşumu ile su moleküllerinin ayrışması yoluyla sıvı içinde oldukça aktif -H ve -OH radikallerinin oluşumu nedeniyle iyi sonuçlar ortaya koymuştur. Çalışmada ayrıca ultrasonik dalgalar, pH, temas süresi, yüzey aktif maddeler, sıcaklık ve gerçek atık su sistemlerinin analizinin etkisi araştırılmıştır. Renk giderimi en iyi Langmuir modeline uymuştur ( $R^2 < 0.988$ ) ve Langmuir doruk renk giderim verimliliği ( $Q_0$ ) değeri RhB ve tartrazin için sırasıyla 142,68 ve 435,72 mg/g olarak bulunmuştur. Boya yüklü  $AC@CoFe_2O_4$  nanokompozitler 0.1 M HCl veya NaOH ile geri dönüştürülmüş ve rejenere  $AC@CoFe_2O_4$  nanokompozitler daha iyi adsorpsiyon verimliliği ile beş tura kadar kullanılmıştır.

Diğer bir çalışmada,  $CuO-Fe_3O_4/SiO_2$  kompoziti kullanılarak tartrazinin geniş bir pH aralığında Fenton benzeri katalitik bozunması incelenmiştir (Ngoc vd., 2022). Çalışma,  $CuO-Fe_3O_4/SiO_2$  kompozitinin 3-7 gibi geniş bir pH aralığında etkili bir şekilde çalışabildiğini ortaya koymuştur. Tartrazinin degradasyonu için optimum koşullar 50 mg/L konsantrasyon, 0,5 g/L dozaj katalizör, 120 mM  $H_2O_2$  konsantrasyonu ve pH 5'tir.  $CuO-Fe_3O_4/SiO_2$  kompoziti pH 5'te en yüksek aktiviteye ulaşarak

%93,3 degradasyon verimliliği ve  $0,061 \text{ dk}^{-1}$  reaksiyon hızı göstermiştir. Katalizörün yeniden kullanılabilirliği döngüsel deneylerle araştırılmış ve üçüncü yeniden kullanımın bozunma verimliliği %55,1'de kalarak ilk kullanımın %93,5'ine eşdeğer olmuştur.

Diğer bir çalışmada, ultrason destekli oksidasyon (UAO) ve subkritik su oksidasyonu (SWO) yöntemleri, yaygın olarak kullanılan ticari reaktif azo boya Procion Crimson H-EXL'yi  $\text{H}_2\text{O}_2$  varlığında mineralize etmek için uygulanmıştır. UAO ve SWO yöntemlerinde sırasıyla %72,20 ve %72,86 toplam organik karbon giderimi elde edilmiştir. Deneysel süreçleri tasarlamak ve her iki yöntemi optimize etmek için Box-Behnken tasarımı (BBD) uygulanmıştır. Kullanılan modelleri değerlendirmek için ANOVA ve doğrulama testleri yapılmıştır. BBD ve YSA modellerinin tahmin performansı  $R^2$ , kök ortalama kare hata ve mutlak ortalama sapma değerleri üzerinden değerlendirilmiş ve birbirleriyle karşılaştırılmıştır. UAO (3,51) hem de SWO (0,55) yöntemleri için YSA modellerinin AAD değerleri, BBD modellerinin hem UAO (3,73) hem de SWO (0,58) yöntemleri için AAD değerleriyle karşılaştırıldığında, YSA'nın tahmin kabiliyetinde BBD'den daha üstün olduğunu ortaya koymaktadır (Erdal vd., 2020).

Özet olarak, tartrazin bozunması için ultrasonik yöntemler literatürde araştırılmış ve sonuçlar ultrasonik destekli giderimin tartrazin atık sudan uzaklaştırılmasında etkili olabileceğini göstermiştir. Bununla birlikte, ultrasonik tartrazin bozunması için en uygun koşulları belirlemek ve ultrasonik yöntemlerin etkinliğini diğer bozunma yöntemleriyle karşılaştırmak için daha fazla araştırmaya ihtiyaç vardır.

## 2.4. Hidrojen peroksit

Hidrojen peroksit ( $\text{H}_2\text{O}_2$ ), çeşitli amaçlarla hem evlerde hem de endüstriyel alanlarda yaygın olarak kullanılan bir bileşiktir. Hidrojen peroksit, yükseltgen, dezenfektan ve beyazlatıcı olarak kullanılır. Evlerde temizlik ürünlerinde, saç ve diş beyazlatma ürünlerinde, çamaşır suyu ve çamaşır deterjanlarında sıkça kullanılır. Endüstriyel alanda ise kâğıt ve tekstil endüstrisinde, yüzey temizlik ürünlerinde, su ve atık su arıtma işlemlerinde kullanılır.

Hidroksil radikali ( $\text{OH}\cdot$ ),  $\text{H}_2\text{O}_2$ 'nin yapısında bulunan iki oksijen atomu arasındaki bağın kopmasıyla oluşan bir serbest radikaldir. Bu radikal, yüksek oksidasyon potansiyeli nedeniyle su ve atmosfer kimyasında önemli bir rol oynar. Hidrojen peroksitin doğru ve güvenilir bir şekilde belirlenmesi, farmasötik, klinik, endüstriyel ve çevre analizlerinde büyük önem taşır. Bu nedenle, çeşitli analiz yöntemleri kullanılır. Bunlar arasında elektrokimya, titrimetri, floresans, kemilüminesans, spektrofotometri ve yüksek performanslı sıvı kromatografisi bulunur (Fang ve Wang, 2013). Elektrokimya,  $\text{H}_2\text{O}_2$  belirleme yöntemleri arasında dikkat çeken bir tekniktir. Bu teknik, enstrümental basitlik, kısa analiz süresi, düşük maliyet, düşük alt tayin sınırı, yüksek duyarlık ve hassasiyet gibi avantajlara sahiptir. Bu nedenle, elektrokimyasal teknikler  $\text{H}_2\text{O}_2$  biyosensörlerinin yapımında yaygın olarak kullanılır (Dilek, 2017).

Hidrojen peroksit ( $H_2O_2$ ) sudaki kirleticilerin bozunması ve giderilmesi için kullanılabilir.  $H_2O_2$  kirletici bozunmasının giderilmesine ilişkin son çalışmalardan elde edilen bazı bulgular aşağıda verilmiştir:

Su dağıtım şebekelerinden elde edilen demir cevheri, kirletici giderimi için çift oksidanlı  $H_2O_2/Na_2S_2O_8$  sistemini aktive etmek üzere katalizör olarak kullanılabilir (Zhong, D. vd., 2022).  $H_2O_2/Na_2S_2O_8$  sistemi ile perkloretilenin bozunma verimliliği 8 saat içinde % 92,05 olmuştur.

Model kirletici olarak metil portakal kullanılarak, geleneksel havalandırma yöntemi yerine oksijen sağlamak için çift döner grafit keçe diskler kullanılarak yeni bir elektro-Fenton süreci gösterilmiştir (Yu vd., 2014). Disk katotların rotasyonu, oksijen havalandırması olmadan  $H_2O_2$ 'nin verimli bir şekilde üretilmesiyle sonuçlanmış ve organik kirleticilerin parçalanması için potansiyel olarak uygun maliyetli bir EF yöntemi sunmuştur.

$H_2O_2$ 'yi aktive etmek için bol miktarda Co-Nx aktif bölgelerine sahip grafen destekli yüksek oranda dağılmış bir kobalt katalizörü sentezlenmiştir (Yu vd., 2022). Co-N-grafen katalizli  $H_2O_2$  reaksiyon sistemi, kritik ara ürün olarak süperoksit radikali ( $O_2^{\cdot-}$ ) ile ilişkili tekli oksijen ( $^1O_2$ ) üretimini seçici olarak katalize ederek model organik kirletici metilen mavisine karşı mükemmel bozunma verimliliği sağlamıştır.

Elektro-Fenton prosesi, model kirletici olarak asit kırmızısı G'nin giderimi için kullanılmıştır (Sun vd., 2021). Gerekli reaktifler ( $Fe^{2+}$  ve  $H_2O_2$ ) elektrot reaksiyonu ile üretilirken, -OH,  $H_2O_2$  ve  $Fe^{2+}$ 'nin optimum üretim koşulları ve mekanizması araştırılmıştır. Başlangıç konsantrasyonu  $300 \text{ mg L}^{-1}$  olan asit kırmızısı G'nin giderim oranı 80 dakikalık elektrolizden sonra %94,05'e ulaşabilmiştir.

Çöp depolama sahalarında atılan organik atıklar sızıntı suyunun kirletici degradasyonu için foto-Fenton oksidasyon sürecini değerlendirmek üzere üç farklı foto-destekli kaynak kullanılmıştır (Arulmathi, 2022). Bu Fenton prosesinde güneş, UV ve LED görünür ışık foto kaynakları kullanılmıştır. UV ve LED görünür ışık foto Fenton prosesleri ile karşılaştırıldığında Solar Foto Fenton yönteminde en yüksek kirletici bozunma seviyeleri tespit edilmiştir.

Genel olarak,  $H_2O_2$  sudaki kirleticilerin bozunması ve giderilmesi için etkili bir araç olabilir ve elektro-Fenton veya foto-Fenton prosesleri gibi diğer tekniklerle birleştirilerek etkinliği artırılabilir.

## 2.5. Cevap Yüzey Metodolojisi

Cevap Yüzey Metodolojisi (CYM) (Response Surface Methodology), bir sistemin girdi değişkenlerindeki değişikliklere tepkisini tahmin etmek için matematiksel modellerin kullanıldığı ve optimizasyon için kullanılan istatistiksel bir araçtır. CYM'nin kullanıldığı bazı alanlar aşağıdaki gibi sıralanabilir.

- Analitik Kimya: CYM, analitik yöntemlerin optimizasyonunda kullanılmıştır. Bu yöntem, analitik kimyasal yöntemlerin parametrelerini optimize etmek için kullanılır.
- Malzeme Bilimi: CYM, malzeme özelliklerini optimize etmek için kullanılan bir araçtır. Örneğin, doğal elyaf takviyeli kompozitlerin mekanik özelliklerini optimize etmek için CYM kullanılabilir.
- İlaç Geliştirme: CYM, ilaç formülasyonlarının optimizasyonunda da kullanılır. İlaçların bileşenleri, optimize edilmiş bir yanıt elde etmek için CYM kullanılarak ayarlanabilir.
- Gıda Teknolojisi: CYM, gıda işleme ve üretiminde de kullanılır. Örneğin, gıda üretimindeki parametrelerin optimize edilmesi için CYM kullanılabilir.
- Kimyasal Mühendislik: CYM, kimyasal reaksiyonların optimizasyonunda ve proses parametrelerinin ayarlanmasında kullanılır.

CYM'nin avantajları şunlardır:

- İyi bir yanıt yüzeyi modeli oluşturarak sistemin tepkisini tahmin edebilir.
- Girdi değişkenlerinin optimum değerlerini bulmak için kullanılabilir.
- İstatistiksel analizlerle önemli faktörleri ve etkileşimleri belirleyebilir.
- Deneysel verilerin analizini kolaylaştırır ve hızlı bir şekilde sonuçlar elde etmenizi sağlar.

Ancak, CYM'nin bazı sınırlamaları da vardır:

- Modelleme süreci, deney tasarımının doğru bir şekilde yapılmaması veya yanıt yüzeyi modelinin yanlış seçilmesi gibi hatalara duyarlı olabilir.
- Girdi değişkenlerinin optimum değerlerini bulmak için bazı deneysel çalışmalar gerekebilir.
- CYM, cevap yüzeyindeki optimum noktaları bulmak için genellikle bir dizi deneysel çalışma gerektirebilir.

Merkezi kompozit tasarım (MKT) yöntemi, bir deneyin optimize edilmesi ve değişkenlerin etkilerinin belirlenmesi için kullanılan bir istatistiksel tasarım yöntemidir. MKT'nin bazı önemli özellikleri şunlardır:

1. Değişkenlerin ve yanıtların optimizasyonu: MKT, deneylerin sayısını belirlemek için kullanılan bir yöntemdir. Bu sayede, değişkenlerin etkileri ve yanıtların optimum değerleri belirlenebilir.
2. Değişkenlerin kodlanması: MKT'de kullanılan değişkenler, minimum, ara ve maksimum değerlere sahip olabilir. Bu değerler sırasıyla -1, 0 ve +1 olarak kodlanır. Bu kodlama, analizin daha kolay yapılmasını sağlar.

3. Faktöriyel noktalar: MKT'de faktör seviyelerinin -1 ve +1 olarak kodlandığı bir faktöriyel tasarım kullanılır. Bu tasarım, n boyutlu bir küpün tepe noktalarını oluşturur. Bu noktalar, değişkenlerin etkilerini belirlemek için kullanılır.

4. Merkezi nokta: MKT'de tasarım alanının merkezinde bir nokta bulunur. Bu nokta, deneyin orta noktasını temsil eder. Merkezi nokta, etkilerin doğrusal olup olmadığını ve etkilerin ortalamasını belirlemek için kullanılır.

5. Eksenel noktalar: MKT'de eksenel noktalar, merkezi noktadan belirli bir mesafede bulunan noktalardır. Bu noktalar, etkilerin doğrusal olmayan bileşenlerini belirlemek için kullanılır. Eksenel noktalar, tasarım merkezine göre koordinat sisteminin eksenlerinde simetrik olarak bulunur.

6. Yanıt yüzeyi modelleme: MKT, yanıt ile değişken proses parametreleri arasındaki matematiksel ilişkiyi oluşturmak için kullanılır. Bu sayede, değişkenlerin etkileri ve yanıtlar arasındaki ilişkiler daha iyi anlaşılabilir ve optimize edilebilir.

MKT yöntemi, endüstride ve araştırmalarda yaygın olarak kullanılan bir tasarım yöntemidir. Değişkenlerin ve yanıtların optimizasyonu için etkili ve verimli bir yöntem sağlar (Montgomery, 2008; Myers vd., 2016; Box vd., 2005).

Sonuç olarak, CYM, optimizasyon için kullanılan etkili bir istatistiksel araçtır ve analitik kimya, malzeme bilimi ve diğer birçok alanda kullanılabilir. CYM'nin etkinliği, diğer istatistiksel tekniklerle birleştirilerek artırılabilir (Boumaaza vd., 2021).

Yabalak ve Yılmaz yapmış oldukları çalışmada çevre dostu kritik altı su oksidasyon yöntemi ve etkili oksitleyici ajan  $H_2O_2$  kullanılarak 2-nitroanilin mineralizasyonunu incelemiştir. Sıcaklık, oksidan konsantrasyonu ve uygulama süresinin 2-nitroanilin mineralizasyonu üzerindeki etkisini incelemek, deneysel süreci optimize etmek ve kimyasal oksijen ihtiyacı giderim yüzdesi için teorik bir denklem önermek için MKT kullanılmıştır. Sürecin güvenilirliğini değerlendirmek için ANOVA testi uygulanmıştır. F ve p değerleri sırasıyla 23.03 ve  $<0.0001$  olarak elde etmişlerdir.  $R^2$  ve düzeltilmiş  $R^2$  sırasıyla 0,9540 ve 0,9126 olarak elde edilmiştir. Tahmin edilen değerleri belirlemek için yapay sinir ağı modellemesi kullanmışlar ve merkezi kompozit tasarım ile yapay sinir ağının etkinliği istatistiksel olarak ve tahmin edilen değerlerin deneysel değerlere yakınlığı ile karşılaştırılmışlardır (Yabalak ve Yılmaz, 2019).

### 3.MATERYAL VE YÖNTEM

#### 3.1 Materyal

##### 3.1.1. Çalışmada Kullanılan Cihaz ve Kimyasallar

*Tartrazin:* Aldrich-Sigma marka analitik saflıkta temin edilip,  $C_{16}H_9N_4Na_3O_9S_2$ -534,36 g/mol.

*Hidrojen peroksit:* Merck firmasından temin edilmiştir (%30).

##### 3.1.2. Ultrasound sistemi

**Tablo 3.1.** Çalışmada kullanılan ultrasound sistemin özellikleri.

Sistemin Türü	Sistemin Özellikleri
Cihaz	Ultrasonik Homojenizatör
Marka	Bandelin Sono Plus
Cihaz Kodu	GM 3200
Çalışma Frekansı	20kHz
Çalışma gücü	200 W
Prob Kodu	KE 76



**Şekil 3.1.** Çalışmada kullanılan ultrasonik homojenizatör (Saçlı, 2019).

### 3.1.3 Ultraviyole Lambası

Tartrazinin parçalanma deneylerinde kullanılan UV lambanın özellikleri aşağıda verilmiştir.

**Tablo 3.2.** Ultraviyole lambanın özellikleri

Sistem Türü	Sistemin Özellikleri
Cihaz	UV lambası
Marka	Benda
Cihaz Kodu	NU-8 KL
Cihaz Seri Numarası	1790304
Çalışma gücü	220 W
Watt	2x8
Amp	0,18



**Şekil 3.2.** Çalışmada kullanılan Ultraviyole Lamba (Labrehberi & Pluslab.)

### 3.1.4 UV Spektroskopisi

**Tablo 3.3.** Çalışmada kullanılan UV cihaz türü ve özellikleri

Sistemin Türü	Sistemin Özellikleri
Dalga boyu aralığı	190-1100 nm
Hareketlilik	Sabit
Marka	Shimadzu
Cihaz Kodu	1601
Dedektör	Silikon Fotodiyot
Lamba Tipi	Halojen Lamba
Görüntüleme	LCD
Materyal	ABS Plastik



Şekil 3.3. Çalışmada kullanılan UV spektroskopisi (İndiamart. 2011)

### 3.1.5. Su banyosu

Su Banyosu (JSWB-T Serisi Dijital) yardımıyla istenilen sıcaklık ortamı sağlanmıştır.

Tablo 3.4. Çalışmada kullanılan Su banyosu özellikleri

Sistemin Türü	Sistemin Özellikleri
Isıtma	Doğrudan Daldırma Kılıf Isıtıcı
Sıcaklık. Aralık	ortam + 5 °C ~ 120 °C
Doğruluk	37,0 °C'de ± 0,2 °C (JSWB-11T)
Tekdüzelik	37,0 °C'de ± 0,8 °C (JSWB-11T)
Kontrol	Dijital Mikroişlemci PID Sıcaklık Kontrol Cihazı
Sensör	Sınıf A Pt-100 Ω Sensör
Güvenlik	Aşırı Sıcaklık Kesme
Malzeme	Gövde- Epoksi Toz Boyalı Çelik
Elektrik	220±10% VAC 50/60Hz 1-Fazlı
Fiş yapılandırması	CEE 7/7 Schuko veya BS 1363

Model

JSWB-22T



Şekil 3.4. Çalışmada kullanılan Su banyosu özellikleri (JSR, 2016)

### 3.2. Yöntem

### 3.3. UV spektrofotometresi ile yapılan kantitatif analiz yöntemi

Stok ve analiz numuneleri, 0,45 µm şırınga filtrelerden süzildükten sonra absorbans değerleri, bir UV-VİS spektrometresi ile 429 nm’de okutulmuştur. Her bir numunenin tartrazin konsantrasyonu bir seri tartrazin çözeltisi ile oluşturulan kalibrasyon grafiği yardımıyla hesaplanmıştır. Numunelerin tartrazin giderim verimi Eş. 4 ile hesaplanmıştır.

$$\text{Giderim verimi, \%} = \frac{C_{stok} - C_{numune}}{C_{stok}} \times 100 \quad (4)$$

Burada  $C_{stok}$  ve  $C_{numune}$ , sırasıyla mg/L cinsinden stok ve işlem görmüş numunelerin konsantrasyonudur.

### **3.3.1. UV fotolitik Degradasyon Yöntemi**

UV ile fotolitik degradasyonu yöntemi ile 10 ppm'lik tartrazin çözeltisinden 50 mL alarak 50 mL'lik beherlerde yapılmıştır. Sıcaklık 25 °C'de sabit tutularak UV ışını altında ( $\lambda=254$  nm) 30 dk, 60 dk, 90 dk ve 120 dk sürelerince ışınlanmıştır. Belirlenen sürelerin sonunda numuneler alınarak UV spektroskopik analiz ile kantitatif analiz yapılmıştır.

### **3.3.2. Ultrasonik Destekli Degradasyon Yöntemi**

Ultrasonik degradasyonu yöntemi ile yapılan çalışmalarda 10 ppm'lik tartrazin çözeltisinden 50 mL cam beher içine alınarak ve ultrasonikatörde %50 amplitüd altında KE 76 probunun çözelti içerisine daldırılması ile degrade edilmiştir. Sıcaklık su banyosu içinde sabit 25 °C'de sabitlenmiştir. Deney süreleri 30 dk, 60 dk, 90 dk, 120 dk olarak belirlenmiştir. Belirlenen sürelerin sonunda numuneler alınarak UV spektroskopik analiz ile kantitatif analiz yapılmıştır.

### **3.3.3. Kombine UV fotolitik- Ultrasonik destekli Degradasyon Yöntemi**

UV-lamba ve Ultrasonik cihazlarının kombinasyonu yöntemi ile yapılan deneylerde su banyosu ile sağlanan 25 °C sabit sıcaklıkta gerçekleştirilmiştir. 10 ppm tartrazin çözeltisinden 50 mL içeren cam beher su banyosuna konulmuştur. Çözeltinin üst kısmına hem ultrasonik probu daldırılmıştır (amplitüd = 50%) hem de çözelti UV lamba ile 254 nm dalga boyunda ışınlanmıştır. Numune çözeltilerinden 30 dk, 60 dk, 90 dk, 120 dk'lık periyotlarla numuneler alınmıştır ve her bir numunede kalan tartrazin derişimi spektrofotometrik olarak hesaplanmıştır.

### **3.3.4. UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> Degradasyon Yöntemi**

Bu yöntemde 10 ppm'lik tartrazin çözeltisinden 50 mL alarak 50 mL'lik beherlerde yapılmıştır. Sıcaklığın 25 °C'de sabit tutulduğu şartlarda numune çözeltisine H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> eklenerek (H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> derişimi mM düzeyindedir) UV ışığı altında ( $\lambda=254$  nm) 30 dk, 60 dk, 90 dk ve 120 dk sürelerince ışınlanmıştır. Belirlenen sürelerin sonunda numuneler alınarak UV spektroskopik analiz ile kantitatif analiz yapılmıştır.

### 3.3.5. H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik Destekli Degradasyon Yöntemi

Bu yöntem ile yapılan çalışmalarda 10 ppm'lik tartrazin çözeltisinden 50 mL konulan cam behere H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> oksidandı eklendikten sonra ultrasonikatörde %50 amplitüd altında KE 76 probunun çözelti içerisine daldırılması ile degrade edilmiştir. Numune çözeltilerinden 30 dk, 60 dk, 90 dk, 120 dk'lık periyotlarla numuneler alınmıştır ve her bir numunede kalan tartrazin derişimi spektrofotometrik olarak hesaplanmıştır

### 3.3.6. UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine Degradasyon Yöntemi

UV-lamba ve Ultrasonik cihazlarının kombinasyonu yöntemi ile yapılan deneylerde su banyosu ile sağlanan 25 °C sabit sıcaklıkta gerçekleştirilmiştir. 10 ppm tartrazin çözeltisinden 50 mL içeren çözeltilere farklı derişimlerde H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> eklenmiştir. Çözeltinin üst kısmına hem ultrasonik probu daldırılmıştır (amplitüd = 50%) hem de çözelti UV lamba ile 254 nm dalga boyunda ışınlanmıştır. Numune çözeltilerinden 30 dk, 60 dk, 90 dk, 120 dk'lık periyotlarla numuneler alınmıştır ve her bir numunede kalan tartrazin derişimi spektrofotometrik olarak hesaplanmıştır.

### 3.4. CYM metodu

Elde edilen UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon yöntemi ile sulardan tartrazin giderim deneyleri Cevap Yüzey Yöntemi (CYY) merkezi kompozit tasarım modeline göre tasarlanmıştır. Deneyler için, x bağımsız değişken ile (x<sub>1</sub>; Amplitüd, x<sub>2</sub>; Uygulama süresi, dk ve x<sub>3</sub>; Hidrojen peroksit konsantrasyonu, mM) 5 farklı seviyede oluşturulmuştur. Cevap olarak %90,96 giderimi belirlenmiştir.

**Tablo 3.5.** Merkezi Kompozit Tasarımdaki (MKT) bağımsız parametrelerin seviyeleri ve kodları.

Bağımsız Değişkenler	Kodlanmış değişkenler				
Amplitüd %, x <sub>1</sub>	13,07	25	42,5	60	71,93
Uygulama süresi (dk), x <sub>2</sub>	39,55	60	90	120	140,45
Hidrojen peroksit Konsantrasyonu, (mM), x <sub>3</sub>	1,59	5	10	15	18,41

### 3.5. Toplam organik karbon (TOK) metodu

TOK metodu, bir örnekte bulunan organik karbon miktarını ölçmek için kullanılan bir tekniktir. Bu yöntem, özellikle su kalitesi testleri ve çevresel testlerde organik kirleticilerin seviyesini belirlemek için kullanılır. Örnekteki organik karbon, karbon analizörü kullanılarak CO<sub>2</sub>'te oksitlenir ve ölçülür.

TOK yöntemi, örneğin organik karbon içeriğini hızlı ve güvenilir bir şekilde ölçmek için yaygın olarak kullanılan bir yöntemdir. Bu yöntem, ilaç, gıda ve içecek ve çevresel testler de dahil olmak üzere birçok endüstri dalında yaygın olarak kullanılmaktadır (Mulashani, A.K. vd., 2021).

10 ppm TOK standart çözeltisi ile bir dizi standart çözelti hazırlanmış ve bu çözeltilerin TOK değerleri TOC-L analizörü kullanılarak analiz edilmiştir. Stok ve işlem görmüş numunelerinin TOK değerlerini hesaplamak için bir seri stok tartrazin çözeltisinin konsantrasyon değerlerine karşı TOK değerlerinin çizilmesiyle oluşturulan 5 noktalı bir kalibrasyon eğrisi kullanılmıştır. TOK ve renk giderme verimleri eşitlik 5'te kullanılarak elde edilmiştir.

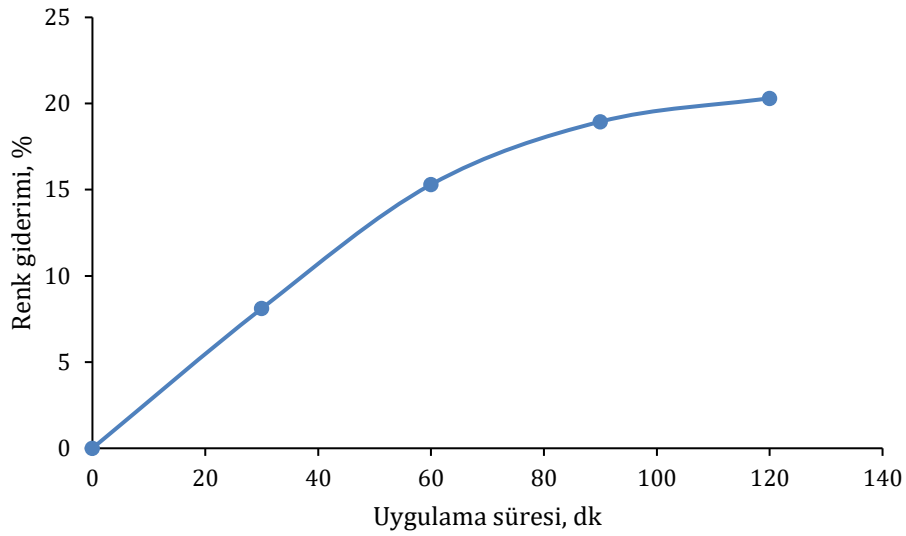
$$\text{Giderim verimi, \%} = \frac{C_{stok} - C_{numune}}{C_{stok}} \times 100 \quad (5)$$

Burada  $C_{stok}$  ve  $C_{numune}$ , sırasıyla mg/L cinsinden stok ve işlenmiş numunelerin konsantrasyonudur (Elnaccar, 2021).

## 4. BULGULAR ve TARTIŞMA

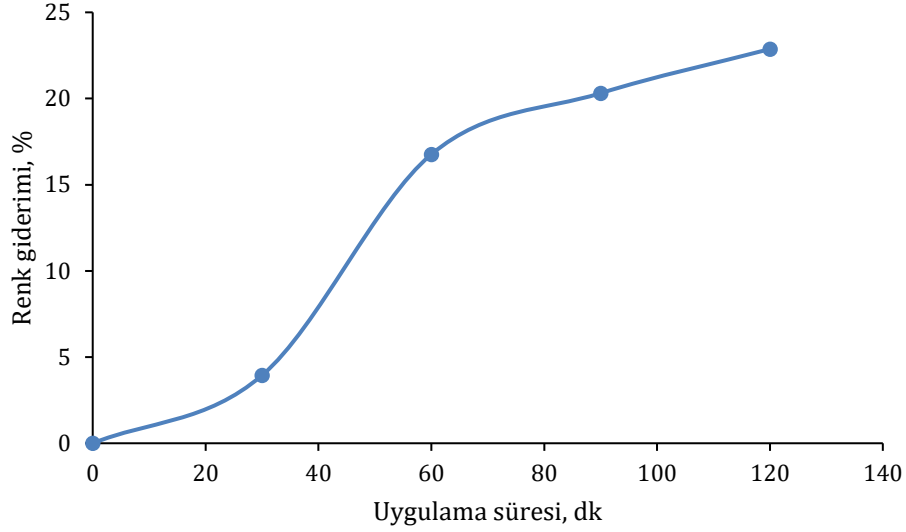
### 4.1. Ön denemeler

CYM uygulanacak parametrelerin her birinin düzeyinin belirlenmesi için 3.3.1., 3.3.2., 3.3.3., 3.3.4., 3.3.5. ve 3.3.6 metotlarının her biri uygulanarak elde edilen ön denemelerin sonuçları değerlendirilmiştir. Böylelikle hem çalışma aralığı belirlenmiştir hem de uygulanan metotların her birinin etkinliği ve üstünlüğü değerlendirilmiştir. Burada sözü edilen her bir yöntemde elde edilen sonuçlar aşağıdaki grafiklerle gösterilmiştir.



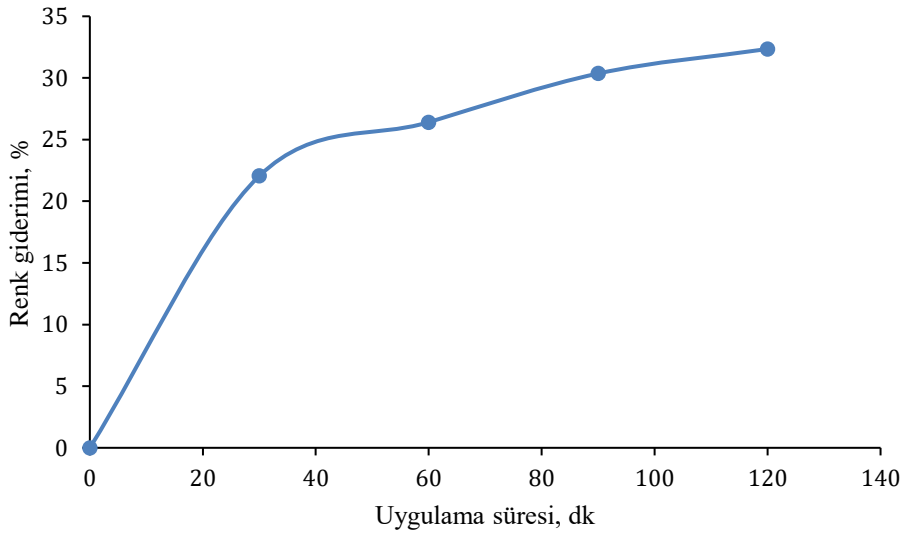
**Şekil 4.1.** UV fotolitik degradasyon yöntemi

Ultraviyole katalitik çalışmalarında şekil 4.1’de görüldüğü gibi 254 nm dalga boyunda tartrazin çözeltisi UV ışınıyla deney sürecince uygulanmıştır ve en yüksek giderim değeri 120. dk sonra %20,31 olarak ölçülmüştür.



**Şekil 4.2.** Ultrasonik destekli degradasyon yöntemi

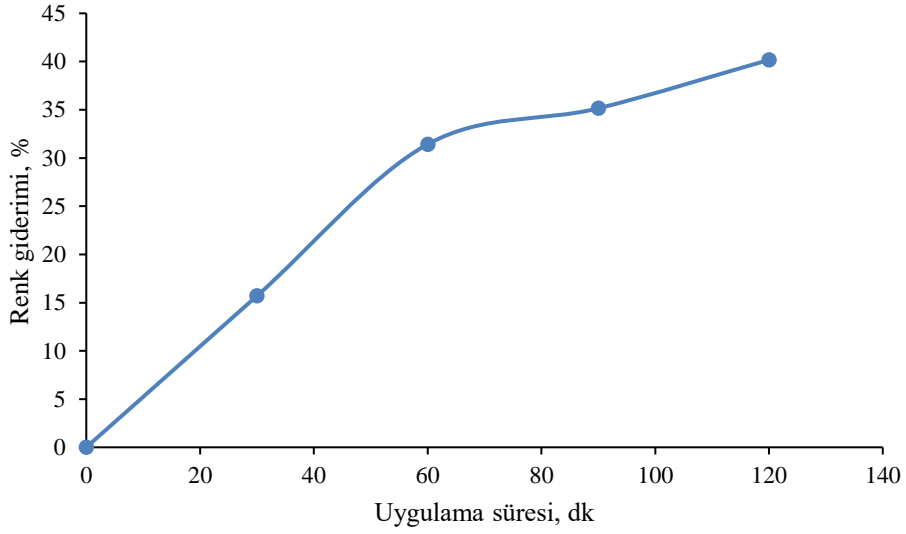
Şekil 4.2’de Ultrasonik destekli degradasyon yöntemi ile yapılan ön denemeler sonucu. Bu çalışmada ultrasonik cihaz ayarlarının amplitüd %50 sabit tutularak tartrazinin sudan gideriminin analizi yapılmıştır. Grafikte görüldüğü gibi en yüksek giderim değeri 120. dk sonra %22,87 olarak ölçülmüştür.



**Şekil 4.3.** Kombine UV fotolitik- Ultrasonik destekli degradasyon yöntemi

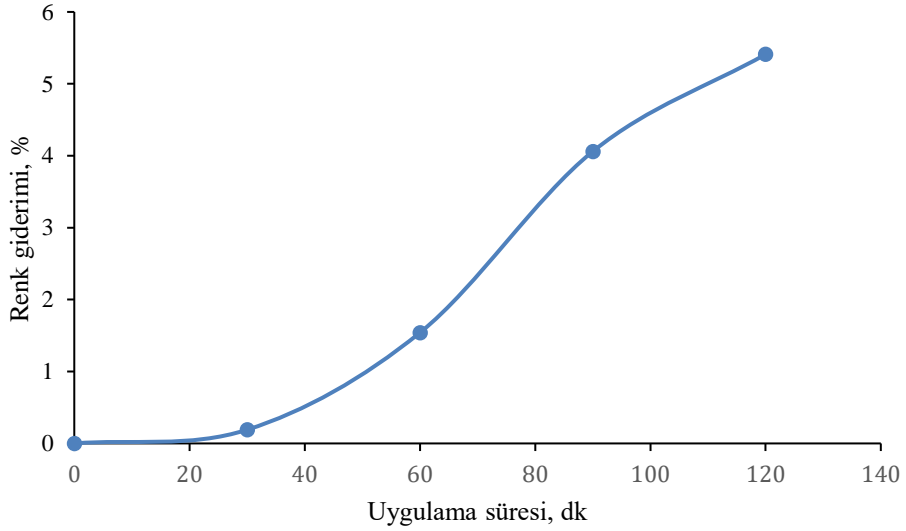
Şekil 4.3’te Kombine UV fotolitik – Ultrasonik destekli degradasyon yöntemi ile yapılan ön denemeler sonucu ölçülen değerlerden en iyi elde edilen giderim %32,35 olarak ölçülmüştür. Bu çalışmada uygulanan parametrelerden 90 dk ile 120 dk aralıkta çözelti gideriminde önemli bir artış

olmamıştır. Elde edilen sınırlı tartrazin giderim veriminden dolayı takip eden deneylerde degradasyonun  $H_2O_2$  eklenmesi ile artırılması hedeflenmiştir.



Şekil 4.4. UV/  $H_2O_2$  degradasyon yöntemi

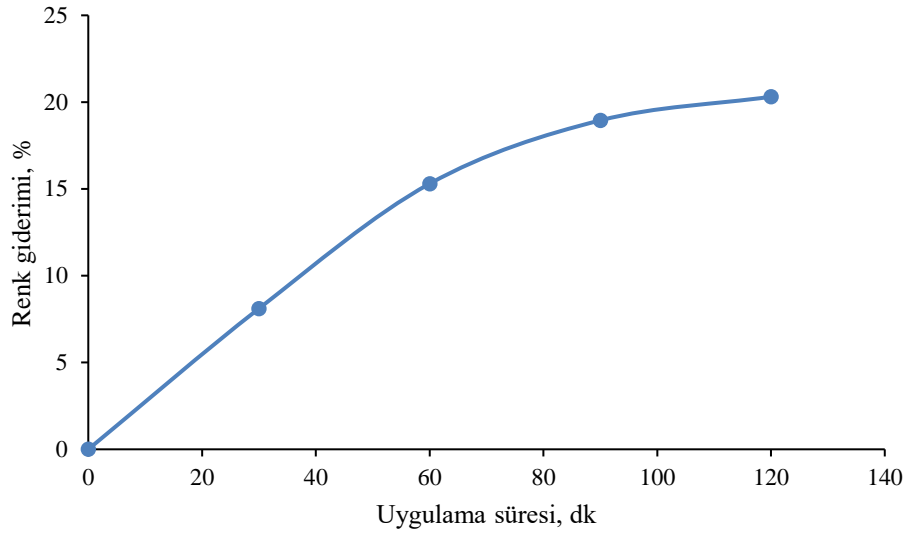
Şekil 4.4'te uygulanan UV/  $H_2O_2$  degradasyon metoduyla elde edilen sonuçlar 120 dk sonunda analiz sonuçları %40,17 renk giderimi olarak ölçülmüştür. Çalışmada 40. dakikadan sonra  $H_2O_2$  tartrazin maddesini parçalamaya başlamıştır ve 120 dk bitimde iyi sonuç elde edilmiştir.



Şekil 4.5.  $H_2O_2$ / Ultrasonik Destekli Degradasyon Yöntemi

Şekil 4.5'te  $H_2O_2$  ve Ultrasonik destekli degradasyon çalışmasında 60. dakikadan sonra hidrojen peroksit Ultrasonikasyon cihazının verdiği ses titreşiminden sonra reaksiyona girmiştir ancak

degradasyon işlevi görmemiştir ve 120 dk tamamlandığında elde edilen sonuç %5,41 olarak ölçülmüştür.



**Şekil 4.6.** UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon grafiği

Şekil 4.6'da ultrasonikasyon ve ultraviyole destekli sistem içerisine kirletici maddelerin parçalanmasında kullanılan H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 10 mM katılarak %50 amplitüd deney süresi boyunca uygulanmıştır. En yüksek giderim değeri 120. dk'da %61,70 olarak hesaplanmıştır.

Her bir yöntem uygulandığında elde edilen giderim verimleri maksimum süre olan 120 dk sonunda bile oldukça sınırlı kalmıştır. Dolayısıyla giderimin verimini çok daha arttırmak için H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>/UV/Ultrasonik kombine metodunun uygulanması gerektiği sonucuna varılmıştır.

Ön deneylerde elde ettiğimiz veriler ışığında en uygun yöntem UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon yöntemi olarak belirlenmiştir ve bu yöntemin parametreleri olan konsantrasyon, amplitüd ve uygulama süresi için en uygun aralık belirlenmiştir. CYM'de yapılan 20 deneyin her biri için uygulanacak seviyeler Tablo 4.1'de verilmiştir.

#### **4.2. UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine Degradasyon Yönteminde Uygulanan CYM Modelinin Değerlendirilmesi**

Tablo 4.1'de, 20 deneyin bağımsız değişkenlerin değerleri ve bunlar arasındaki kalıntı değerleri ile deneysel sonuçlar ve tahminler göstermektedir. Deney 3'te en yüksek renk giderim verimi %90,75 ve tahmini değeri %94,22 olarak elde edilmiştir. En düşük deneysel değer %16,26 ve en düşük tahmin edilen değer %19,16 olmuştur. Sonuçlar, kalıntı değerlerine göre deneysel ve tahmin edilen sonuçlar arasında anlamlı bir uyum olduğunu göstermektedir. Kalıntı 4,88 olduğundan en yüksek fark 10.

deneyde gözlenmiştir. Kalıntı 0,1068 olduğu için en yakın deneysel ve tahmin edilen değerler deney 14'te elde edilmiştir.

**Tablo 4.1.** UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon yönteminde metodunda elde edilen deneysel ve hesaplanan renk giderim yanıtları ve kalıntı değerleri.

Çalışma Düzeni	$x_1$ (%)	$x_2$ (dk)	$x_3$ (mM)	Gerçek Değer	Tahmini Değer	Kalıntı
1	25	60	5	38,07	35,32	2,75
2	42,5	90	10	88,80	87,91	0,8873
3	60	120	15	90,75	94,22	-3,47
4	42,5	90	10	86,50	87,91	-1,41
5	42,5	90	18,41	84,67	80,74	3,93
6	42,5	140,5	10	89,80	88,44	1,36
7	42,5	90	1,59	16,26	19,16	-2,90
8	42,5	90	10	89,35	87,91	1,44
9	13,0686	90	10	88,75	84,86	3,89
10	60	120	5	83,54	78,66	4,88
11	42,5	90	10	87,40	87,91	-0,5127
12	60	60	15	79,72	77,00	2,72
13	71,9314	90	10	90,96	93,82	-2,86
14	60	60	5	41,45	41,34	0,1068
15	42,5	39,5	10	59,60	59,93	-0,3320
16	42,5	90	10	86,90	87,91	-1,01
17	25	60	15	87,40	93,00	-5,60
18	25	120	15	88,75	89,58	-0,8334
19	42,5	90	10	88,35	87,91	0,4373
20	25	120	5	48,56	52,00	-3,44

Sıralı model kareler toplamı Tip I kısmında renk giderimini ölçer ve F ve P değerlerini önerir bu uygunluk testlerinin sonucu tablo 4.2’de gösterilmektedir.

**Tablo 4.2.** Sıralı Model Kareler Toplamı renk giderimi

Kaynak	Kareler Toplamı	sd	Kare Ortalaması	F-değeri	p-değeri	
Ortalama- Toplam	$1,148 \times 10^5$	1	$1,148 \times 10^5$			
Doğrusal- Ortalama	5656,39	3	1885,46	8,26	0,0015	
2FI- Doğrusal	657,45	3	219,15	0,9513	0,4445	
Kuadratik- 2FI	2844,54	3	948,18	63,14	< 0.0001	Önerilen
Kübik- Kuadratik	141,19	4	35,30	23,62	0,0008	
Kalıntı	8,97	6	1,49			
Toplam	$1,242 \times 10^5$	20	6207,88			

Tablo 4.3’te uygulanan CYM yönteminin kesinliğini değerlendirmek için ANOVA sonuçlarını içerir. ANOVA ayrıca modelin istatistiksel önemini ve uygunluğunu göstermektedir. Bu nedenle regresyon katsayısı, p testi, uyumsuzluk testi ve F testi çok önemlidir. Bir model için yüksek bir F değeri istenir, çünkü F, modelin ortalama değerinin oranıdır ve kalan ortalama karedir. Ek olarak, düşük bir p değeri (<0,05), ilgili model terimlerinin yanıt üzerindeki etkisinin daha büyük olduğunu göstermektedir. Bu örnekte, modelin F değeri 67,77 ve p değeri <0,0001’dir. Ek olarak, uyum eksikliğinin F değeri 22,75 ve p değeri 0,0019 olarak bulunmuştur. Sonuç olarak, uygulanan CYM modelinin anlamlı olduğunu, F, p ve uyumsuzluk değerlerini içerdiğini ve bağımsız değişkenleri belirlemek için kullanılabileceğini göstermektedir.

**Tablo 4.3.** UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem yönteminde uygulanan CYM modelinin ANOVA sonuçları

Kaynak	Kareler Toplamı	sd	Ortalama Kare	F-değeri	p-değeri	
<b>Model</b>	9158,39	9	1017,60	67,77	< 0.0001	Önemli
$x_1$	97,00	1	97,00	6,46	0,0293	
$x_2$	981,05	1	981,05	65,33	< 0.0001	
$x_3$	4578,34	1	4578,34	304,90	< 0.0001	
$x_1x_2$	213,00	1	213,00	14,19	0,0037	
$x_1x_3$	242,44	1	242,44	16,15	0,0024	
$x_2x_3$	202,01	1	202,01	13,45	0,0043	
$x_1^2$	3,68	1	3,68	0,2448	0,6314	
$x_2^2$	339,42	1	339,42	22,60	0,0008	
$x_3^2$	2595,97	1	2595,97	172,88	< 0.0001	

<b>Kalıntı</b>	150,16	10	15,02			
Uyum Eksikliği	143,84	5	28,77	22,75	0,0019	Önemli
Saf Hata	6,32	5	1,26			
<b>Cor Toplam</b>	9308,54	19				

Sd: Serbestlik derecesi

Bir CYM modelinin doğruluğunu ve güvenilirliğini değerlendirmek için regresyon ve korelasyon katsayıları kullanılabilir. UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem yönteminin CYM tasarımının regresyon katsayıları Tablo 4.4'te gösterilmektedir. Tahmini Kalan Kareler Toplamı, tasarımdaki her noktanın uygulanan modele uygunluğunu hesaplamak için kullanılabilir. Ayrıca, belirleme katsayısı (R<sup>2</sup>) kullanılarak modelin varyansı ve deneysel değişkenler arasındaki ilişki belirlenir. Bu çalışmada kullanılan CYM modelinin R<sup>2</sup> değeri (0,9839), yakın bir modelin R<sup>2</sup> değerinin beklendiğini göstermektedir. Ayrıca, uygulanan CYM modelinin yüksek performans ile tahmin edici sonuçlar üretmeye uygun olduğu söylenebilir çünkü R<sup>2</sup><sub>adj</sub> ve R<sup>2</sup><sub>pre</sub> değerleri 1'e oldukça yakın ve aralarındaki fark 0,2'nin altında.

Model F-değerinin 67,77 olması modelin anlamlı olduğunu göstermektedir. Bu kadar büyük bir F değerinin gürültü nedeniyle oluşma ihtimali yalnızca %0,01'dir. P-değerlerinin 0,0500'den küçük olması model terimlerinin anlamlı olduğunu gösterir. Bu durumda  $x_1$ ,  $x_2$ ,  $x_3$ ,  $x_1x_2$ ,  $x_1x_3$ ,  $x_2x_3$ ,  $x_2^2$ ,  $x_3^2$  önemli model terimleridir. 0,1000'den büyük değerler model terimlerinin anlamlı olmadığını gösterir. Çok sayıda önemsiz model terimi varsa (hierarchyi desteklemek için gerekenleri saymazsak), model indirgeme modelimizi iyileştirebilir.

Uyum Eksikliği F-değerinin 22,75 olması Uyum Eksikliğinin anlamlı olduğu anlamına gelir. Bu kadar büyük bir Uyum Eksikliği F-değerinin gürültü nedeniyle ortaya çıkma olasılığı yalnızca %0,19'dur. Önemli uyum eksikliği kötüdür- modelin uymasını isteriz.

**Tablo 4.4.** UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem yönteminde uygulanan CYM modelinin regresyon katsayıları

<b>Standard sapma</b>	3,88	<b>R<sup>2</sup></b>	0,9839
<b>Ortalama</b>	75,78	<b>Düzeltilmiş R<sup>2</sup></b>	0,9694
<b>Varyasyon katsayısı, C.V., %</b>	5,11	<b>Hesaplanan R<sup>2</sup></b>	0,8715
		<b>Yeterli kesinlik</b>	27,3954

Tahmin edilen 0,8715 R<sup>2</sup> değeri, 0,9694 Düzeltilmiş R<sup>2</sup> değeri ile makul bir uyum içindedir; yani fark 0,2'den azdır.

Yeterli kesinlik sinyal/gürültü oranını ölçer. Oranın 4'ten büyük olması arzu edilir. 27,395'lik oranımız yeterli bir sinyale işaret etmektedir. Bu model tasarım alanında seçim yapmak için kullanılabilir.

**Tablo 4.5.** Kodlanmış Faktörler Açısından Katsayılar

Faktör	Katsayı Tahmini	df	Standart Hata	95% CI düşük	95% CI yüksek
$x_1$	2,67	1	1,05	0,3287	5,00
$x_2$	8,48	1	1,05	6,14	10,81
$x_3$	18,31	1	1,05	15,97	20,65
$x_1x_2$	5,16	1	1,37	2,11	8,21
$x_1x_3$	-5,50	1	1,37	-8,56	-2,45
$x_2x_3$	-5,03	1	1,37	-8,08	-1,97
$x_1^2$	0,5051	1	1,02	-1,77	2,78
$x_2^2$	-4,85	1	1,02	-7,13	-2,58
$x_3^2$	-13,42	1	1,02	-15,70	-11,15

Tablo 4.5'te gösterilmiş üzere katsayı tahmini, kalan tüm faktörler sabit tutulduğunda faktör değerindeki birim değişiklik başına yanıtta beklenen değişikliği temsil eder. Ortogonal bir tasarımdaki kesişim noktası, tüm çalışmaların genel ortalama yanıtıdır. Katsayılar, faktör ayarlarına bağlı olarak bu ortalama etrafında yapılan ayarlamalardır.

Çalışma sonucunda tahmin edilen değerler, regresyon denklemleri kullanılarak elde edilebilir. Bu nedenle, deneysel parametreler arzu edilen yanıt düzeyine göre değiştirilebilir. CYM modelinin ikinci dereceden bir polinom denklemi, Eşitlik 6'da kodlanmış faktörlerle sarı rengi uzaklaştırmasını göstermektedir.  $Y_1$  modeli yanıt verir, burada  $x_1$ ,  $x_2$  ve  $x_3$  bireysel etkilerdir,  $x_1^2$ ,  $x_2^2$  ve  $x_3^2$  kuadratik etkilerdir ve  $x_1x_2$ ,  $x_1x_3$  ve  $x_2x_3$  etkileşim etkileridir. Ek olarak, her bir faktörün katsayısı, ilgili faktörün yanıt üzerindeki göreceli etkisini gösterir. Dolayısıyla 18,31 katsayılı  $x_3$  yanıt üzerinde en etkili faktördür ve bunu 8,48 katsayılı  $x_2$  ve 2,67 katsayılı  $x_1$  takip etmektedir.

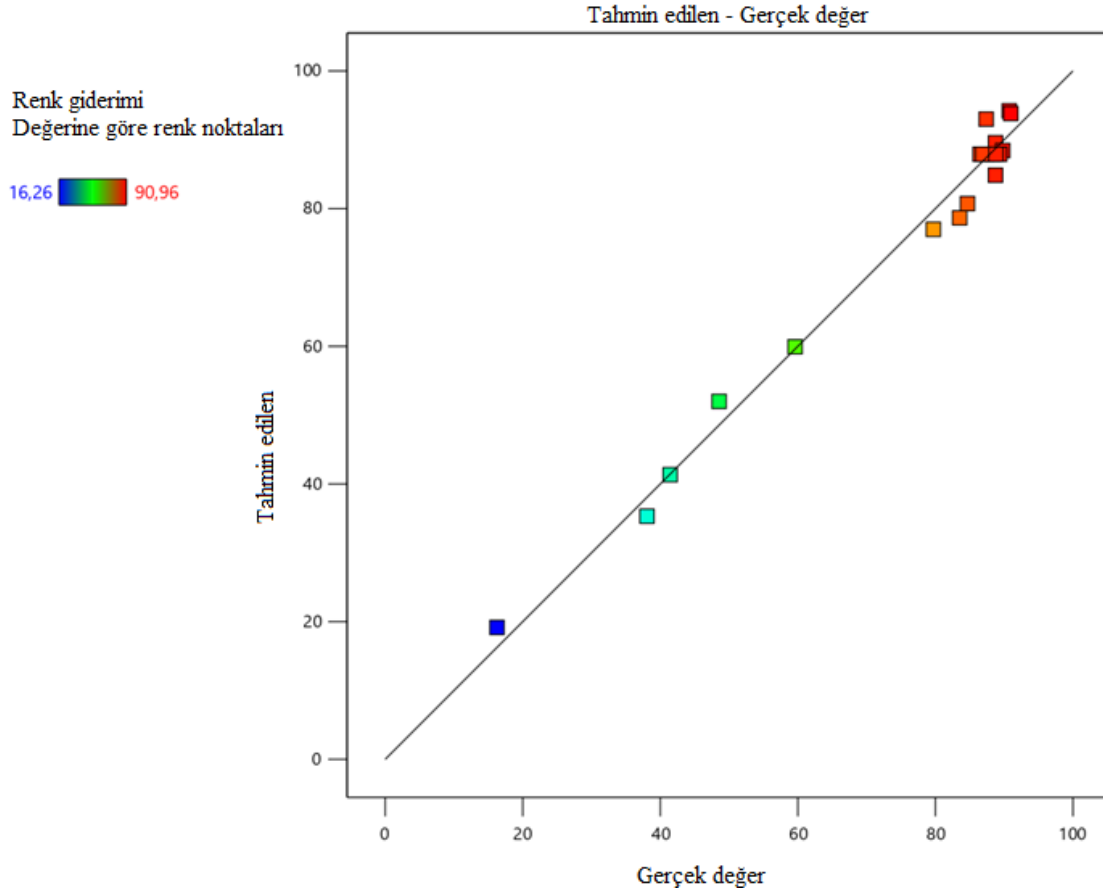
$$Y_1 = +2,67x_1 + 8,48x_2 + 18,31x_3 + 5,16x_1x_2 - 5,50x_1x_3 - 5,03x_2x_3 + 0,5051x_1^2 - 4,85x_2^2 - 13,42x_3^2 + 87,91 \quad (6)$$

Kodlanmış faktörler açısından denklem, her bir faktörün belirli seviyeleri için yanıt hakkında tahminler yapmak için kullanılabilir. Varsayılan olarak, faktörlerin yüksek seviyeleri +1 ve düşük seviyeleri -1 olarak kodlanır. Kodlanmış denklem, faktör katsayılarını karşılaştırarak faktörlerin göreceli etkisini belirlemek için kullanışlıdır.

$$Y_1 = -0,243x_1 + 1,170x_2 + 20,087x_3 + 0,0098x_1x_2 - 0,0629x_1x_3 - 0,0335x_2x_3 + 0,0016x_1^2 - 0,0053x_2^2 - 0,5368x_3^2 - 94,284 \quad (7)$$

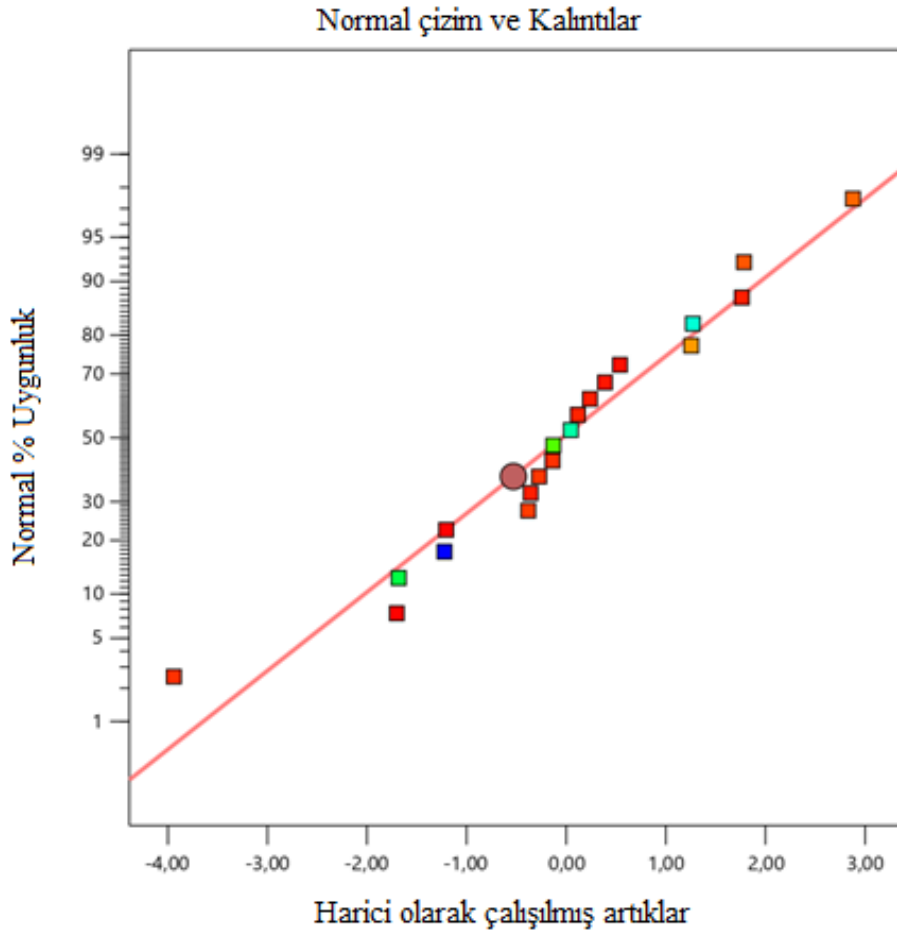
Eş. 7'de gerçek faktörler açısından denklem, her bir faktörün verilen seviyeleri için yanıt hakkında tahminlerde bulunmak için kullanılabilir. Burada, seviyeler her bir faktör için orijinal

birimlerde belirtilmelidir. Bu denklem her bir faktörün göreceli etkisini belirlemek için kullanılmamalıdır çünkü katsayılar her bir faktörün birimlerine göre ölçeklendirilmiştir ve kesişim noktası tasarım alanının merkezinde değildir.



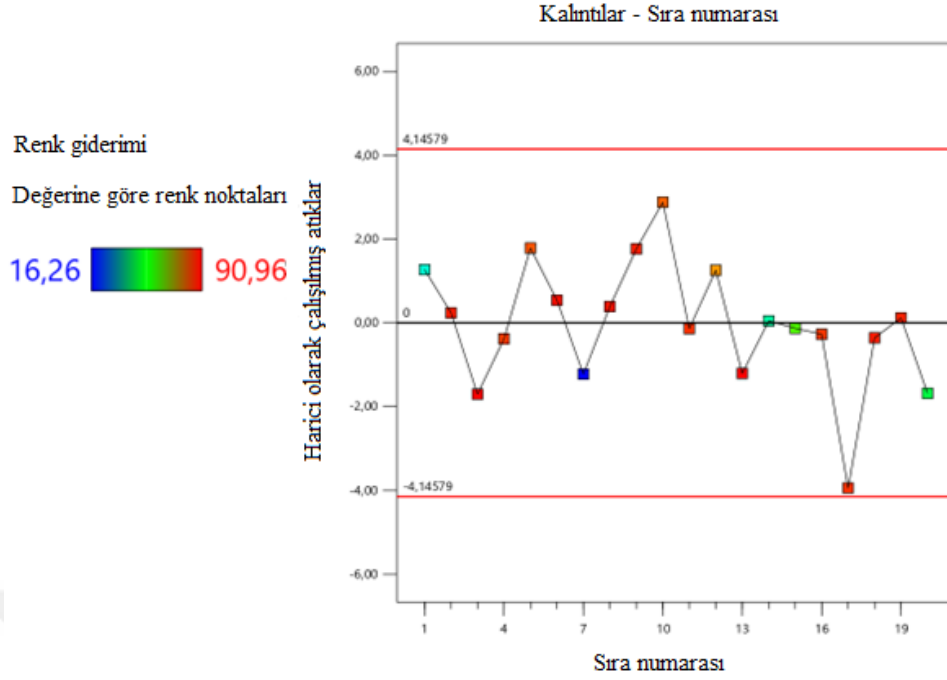
**Şekil 4.1.** UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem yönteminde uygulanan CYM modelinin gerçek ve tahmin edilen değerleri arasındaki korelasyon.

Şekil 4.1’de,  $R^2_{adj}$  ve  $R^2_{pre}$  değerleri arasındaki matematiksel uyumu göstermektedir. 45 derecelik doğru boyunca dağıtılan yanıtlar noktalarla gösterilir. Deneysel noktalar doğrusal çizgiye ne kadar yakınsa CYM modeline daha iyi uyar. Bu nedenle, doğru hizalanmış ve düzgün noktalar,  $R^2_{adj}$  ve  $R^2_{pre}$  değerleri arasındaki uyuşmayı göstermiştir.



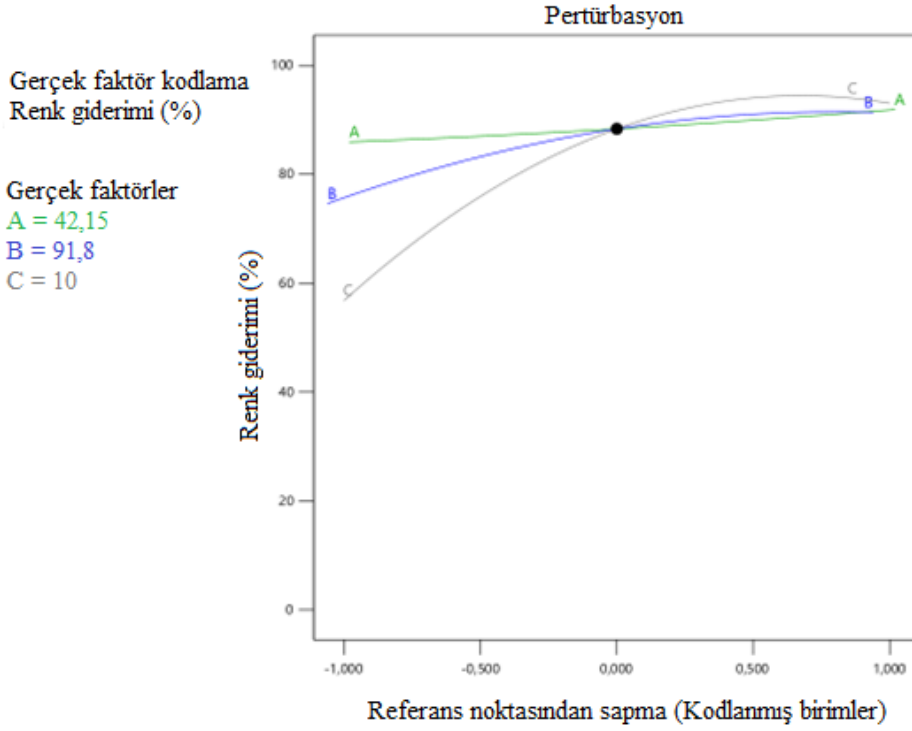
**Şekil 4.2.** UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem yönteminde uygulanan CYM modelinin normal ve kalıntı çizim arasındaki korelasyon.

Şekil 4.2’de gösterilmek üzere CYM modeli, normal ve kalıntı çizim arasındaki korelasyonu analiz etmek için kullanılır. Bu, sistemdeki kirleticilerin ne kadar etkili bir şekilde parçalandığını ve geriye kalan kalıntıların miktarını belirlemek için önemlidir. CYM modeli, sistemdeki parametrelerin ayarlanması ve optimize edilmesi için kullanılabilir. Bu sayede, sistemdeki korelasyonun maksimize edilerek daha etkili bir kirleticilerin giderimi sağlanabilir.



**Şekil 4.3.** UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem yönteminde uygulanan CYM modelinde Kalıntıların deneysel çalışmalara karşı grafiği.

Şekil 4.3'te çeşitli işlemlere karşı kalıntı gösteren bir çizim içerir. Bu gösterimin değerlendirilmesi, deneylerde yanıtı etkileyebilecek gizli değişkenleri kontrol edebilir. Şekil 4.3'te, rastgele saçılma ve üst ve alt kontrol sınırlarını gösteren CYM veri sonuçlarını göstermektedir. Ek olarak, deneysel noktalarının çoğu 0 çizgisine yakın dağılmıştır. Bu, -4 ve +4 sınırları arasında kalan 10 ve 17 nolu deneyleri gösteren noktaları içermektedir.

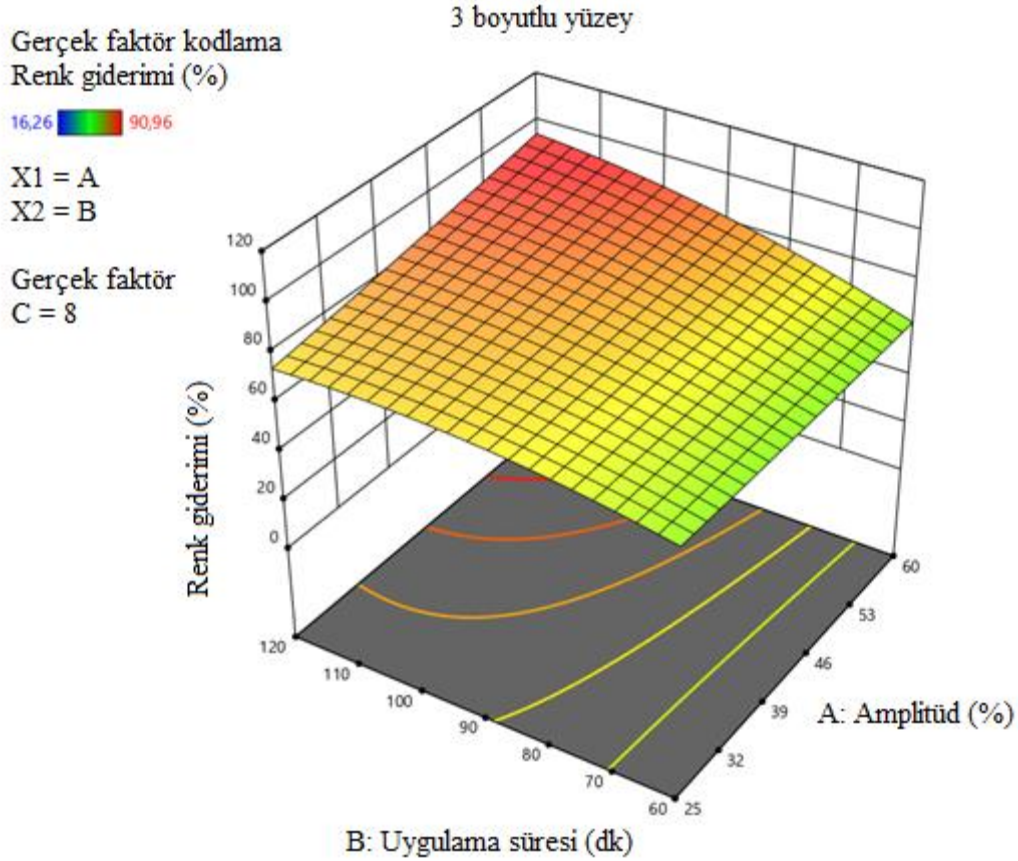


**Şekil 4.4.** UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem yönteminde uygulanan CYM modelinde gerçek faktör kodlama ve referans sapma noktaları.

Şekil 4.4'te görüldüğü üzere gerçek değerlerle hesaplanmış ve çizilmiş bir grafikte amplitüd 42.15% ve süreç 91.8 dk ve hidrojen peroksit 10 mM bazında konularak tepkime sonucu elde edeceğimiz bu üçlü kombinasyonun kesiştiği nokta mükemmel uyumluluk ve 0 noktası olarak belirlenmiştir. Renk giderimi son derece iyi ve kalıntı az olduğu için kesişmiş bir uyumlu değer noktasıdır.

Uygulama süresi, amplitüd ve H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonu gibi değişkenler, yanıt üzerinde önemli bir etkiye sahiptir ve aralarındaki etkileşimler yanıtı yönlendirir. Bu nedenle, bu değişkenlerin hem bireysel hem de birleşik etkilerini göstermek, uygulanan işlemin optimum koşullarını ve fizibilitesini belirlemek için gereklidir. Şekil 4.5, renk giderme verimliliği üzerindeki genel etkilerini göstermektedir.

Şekil 4.5'te, 8 mM'lık sabit H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonunda renk giderme oranları üzerindeki uygulama süresi ve sıcaklığın birleşik etkilerini göstermektedir. Bu hem işlem süresinin hem de amplitüdün giderme oranları üzerinde önemli bir etkiye sahip olduğunu göstermektedir. Kırmızı alan, orta-yüksek sıcaklıkta ve uzun uygulama süresinde yüksek verimlilik alanıdır. Örneğin, 8 mM'lık sabit bir H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonunda, 90 dakikalık uygulama süresinde (amplitüd %48) %80'lik renk giderimi elde edilebilir. Verim, amplitüd 53 %'ye ve işlem süresini 100 dakikaya yükselterek %85,5 yükseltilebilir. Aynı H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonunda uygulama süresi 120 dakikaya ve amplitüd 60%'ye çıkarıldığında verim %94,6'ya ulaşır. Bu bulgular, reaksiyon ortamında yeterli miktarda H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> bulunmasına rağmen, sarı rengin bozulmasından sorumlu olan OH· radikallerinin oluşumunda uygulama süresi ve amplitüdün ana faktörler olduğunu göstermektedir. Aşağıdaki denklemler OH· radikalının oluşumunu veya tüketimini göstermektedir. (Eş. 7-10) (Elnaccar, 2021)



**Şekil 4.5.** UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon yönteminde uygulama süresi ve amplitüdün renk giderimi üzerindeki birleşik etkileri.

Şekil 4.6'da konsantrasyon ve amplitüd üzerine bir üç boyutlu grafikte uygulama süresi 75dk olarak ayarlanmış ve konsantrasyon 9 mM H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> ve amplitüd 39% ile alınan en düşük giderim %77,54'lük renk giderimi olmuştur. Konsantrasyon 10 mM H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> ve amplitüd 53% ile alınan giderim %82,51 olarak tespit edilmiştir. Amplitüd değerini düşürerek konsantrasyonu yükseltirirse 11 mM H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> ve 25% amplitüd ile alınan en yüksek verim %82,88 olarak tespit edilmiştir.

Gerçek faktör kodlama  
Renk giderimi (%)

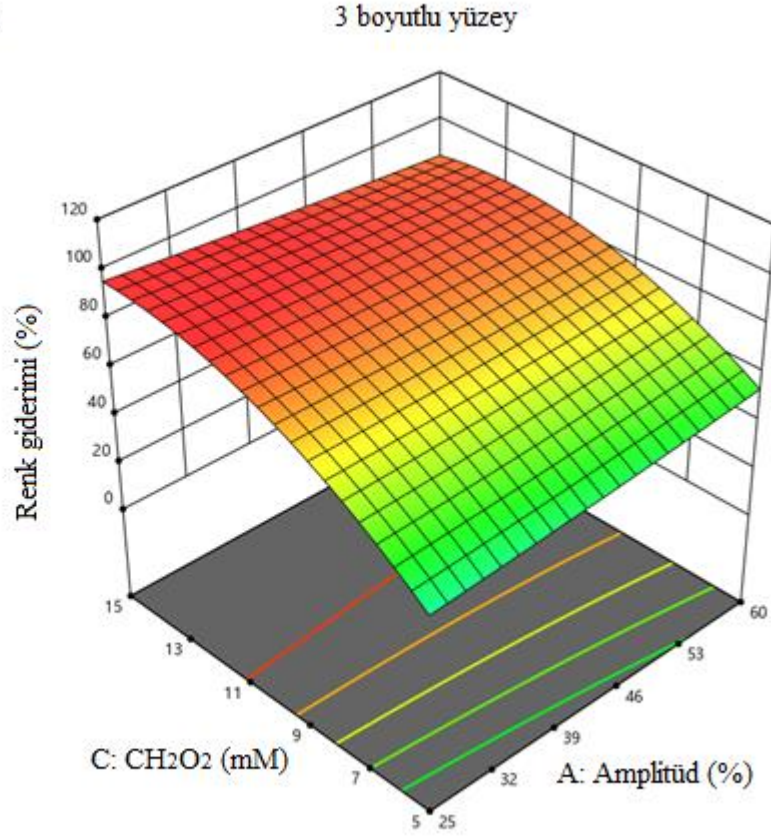
16,26  90,96

X1 = A

X2 = C

Gerçek faktör

B = 75



Şekil 4.6. UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem yönteminde H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> ve amplitüdün renk giderimi üzerindeki birleşik etkileri.

Şekil 4.7'de görüldüğü üzere Amplitüd %40 olarak sabitlenmiştir. 3 boyutlu modelde CH<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonu yükselttikçe verim de doğru orantılı yükseliyor. Uygulama süresini 80-100 dk aralığında tutulursa H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonu da 10-12 mM olarak ayarlanırsa %90 üstü verim alınabilir. Konsantrasyonu ne kadar düşerse verimde düşer. 3 boyutlu grafiklerin her birinde H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonunun önemini görmekteyiz.

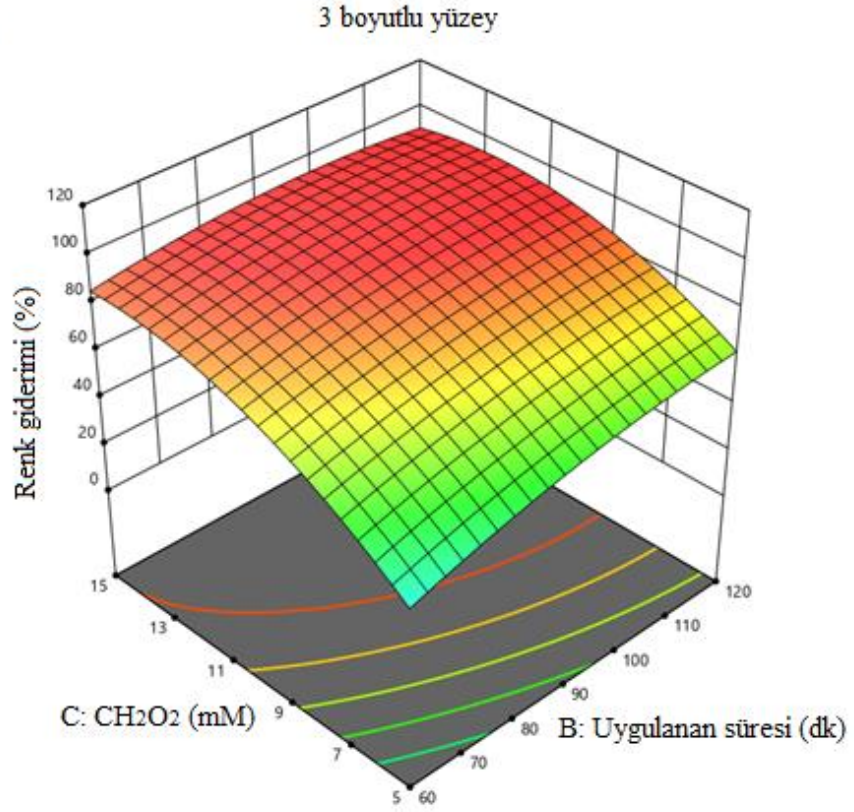
Gerçek faktör kodlama  
Renk giderimi (%)

16,26  90,96

X1 = B  
X2 = C

Gerçek faktör

A = 40



Şekil 4.7. UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem yönteminde uygulama süresi ve H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> renk giderimi üzerindeki birleşik etkileri.

Hidroksil radikali oluşuktan sonra aşağıdaki (10-13) eşitlikler gibi X ile simgelenen organik türler ile tepkimeye şu şekilde girerler (Külekçi, 2017).

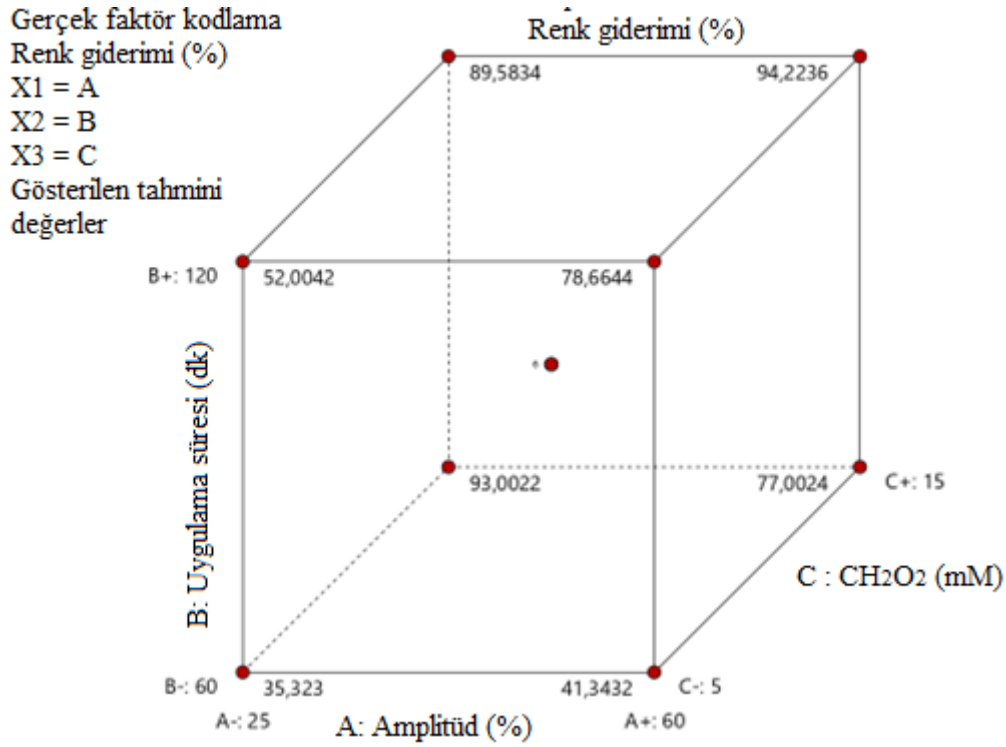


Ultrasonikasyon aşağıdaki tepkimelerin oluşumuna yol açarak ortamda bulunan hidroksil derişimini arttırır. Oluşan radikallik türler hedef kirleticiye saldırarak onların parçalanmasını sağlar. Radikal türlerinin (H<sup>•</sup>, HO<sup>•</sup>, HOO<sup>•</sup> ve HO<sub>2</sub><sup>•</sup>) oluşumu, nihayetinde kirleticinin mineralizasyonuna neden olan radikal zincir reaksiyonunu başlatır (eş. 14-20).





Amplitüd değeri daha da artırıldığında hidroksil radikali oluşur ve parçalanma süresi başlatılır (Yabalak vd., 2019).



**Şekil 4.8.** UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sistem modelinde uygulanan CCD modelinin küp grafiği.

Küp grafikleri, CCD modelinin tahmin edilen yanıtlarına dayalı olarak tasarlanmıştır. Her bir değişken için küp grafiğinde olduğu gibi belirli alanlarda verir. Bu, her bir değişken için yanıtın belirli bir düzeyi için ideal koşulların belirlenmesine olanak tanır (Yabalak, E. 2021). Şekil 4.8'te UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sisteminin CCD grafiğinin küp çizimini göstermektedir. Tüm değişkenlerde en düşük verim ve renk giderimi %35,32 olmaktadır. Sadece amplitüdü en yüksek seviyeye çıkartmak %41,34 oranında verim ve renk giderimi sağlamıştır. Amplitüd ve uygulama süresi yüksek tutularak H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonu düşürüldüğü zaman %78,66'lık bir renk giderimi elde edilebilir.

Tüm değişkenleri en üst seviyelerine (15 mM H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> ve amplitüd %60 uygulama süresi 120 dk) çıkartıldığı zaman en yüksek verime olan % 94,22 renk giderimi elde edilebilmektedir.

#### 4.3 Toplam organik karbon (TOK) giderimi

UV / H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon yöntemi ile parçalanmış tartrazin numunelerinin TOK (Toplam Organik Karbon) giderim değerleri önem arz etmektedir. Öyle ki TOK giderim analizi tam mineralizasyonun bir indikatörü olarak gösterilmektedir (Elnaccar, 2021).

Tablo 4.6'da 1, 13 ve 18 numaralı deneylerin renk giderim değerlerine karşı TOK giderim değerleri gösterilmiştir. En düşük TOK giderimi değeri %29,74 (deney 1) iken, yüksek renk giderim verimlerinden diğeri TOK giderimi değeri %57,46 (deney 18) olarak ölçülmüştür. Renk giderimi verimleri ile karşılaştırıldığında, TOK giderimi verimleri daha düşük bulunmuştur. Bu durum, UV / H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon yönteminde uygulanan deneysel koşullar altında, tartrazinin molekül yapısındaki kısmi parçalanmanın renk giderimi için yeterli olmasına rağmen, tüm bağların kırılması için daha zorlu koşulların gerektiğini göstermektedir. Sonuç olarak, 13. deneyde (10 mM H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, 71,93%, 90 dk) uygulanan koşulların, tartrazinin su ortamından etkili bir şekilde uzaklaştırılması için yüksek renk giderimi ve makul TOK giderimi sağladığı söylenebilir. Bu çalışmalar, UV / H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon yönteminin tartrazinin sudan giderilmesinde yüksek verimlilik sağladığını göstermektedir.

**Tablo 4.6 Tartrazin UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Ultrasonik destekli kombine degradasyon yönteminde elde edilen renk giderim ve TOK giderim değerleri**

Çalışma düzeni	Renk giderimi (%)	Tok giderimi (%)
1	30,07	29,74
13	90,96	63,34
18	88,75	57,46

## 5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

Bu tez çalışmasında; sentetik bir renklendirici olan tartrazinin sulardan giderimi incelenmiştir. Tartrazin günümüzde en çok kullanılan renklendiricilerden biridir. Ambalajlı ürünler, alkolsüz içecekler, puding, şekerlemeler ve kurabiye kek gibi birçok ürün içerisinde sarı renk verme amaçlı kullanılan tartrazin boya maddesinin insan sağlığına ve çevreye zarar vermektedir. İnsanlarda astım hastalığı alerjik hastalıklara neden olabildiği WHO ve FDA tarafından açıklanmıştır.

Bu çalışmanın amacı çevre dostu yöntemlerle tartrazin maddesinin sulardan giderilmesi ve kullanımının azaltılmasıdır. Bu kapsamda ultraviyole ve ultrasonik yöntemler ile ön çalışmalar yapılmış olup elde edilen veriler neticesinde ultraviyole ışınlama yöntemi ve ultrasonik destekli kombine yönteminin sulardan renkli bir kirletici olan tartrazinin etkin biçimde giderilebilmesi için kapsamlı bir araştırma yürütülmüştür. Ön çalışmalarda ultrasonik yöntemde güç ve zaman olarak belirlenen parametreler ile en yüksek giderim %22,87 olarak ölçülmüştür ve bu parametreler oksidant eklendiğinde en yüksek giderim %5,41 ölçülmüştür. Ultrasonik sistemde oksidant eklenmesi ters tepki yaratmıştır ve parçalama etkin olmamıştır. Ultrasonik sistemde gücün artırılması durumunda oksidantın etkili olabileceği görülmüştür. Ultraviyole fotokatalitik degradasyon sisteminde ışınlama gücü ve zaman olarak belirlenen parametreler ile alınan en iyi giderim verimi %8,11 ve oksidant ekleyerek aynı parametreler uygulandığında %85,34 olarak ölçülmüştür. Ultraviyole fotolitik degradasyon sisteminde hidrojen peroksit ( $H_2O_2$ ) parçalanma için gerekli olan hidroksil radikali elde ederek fotokatalitik aktiviteyi arttırmak için kullanılır.  $H_2O_2$ 'nin bu süreçte ikili bir rolü vardır. Bir yandan, yüksek reaktif hidroksil radikalleri üretir ve bu da fotokatalitik aktiviteyi geliştirir. Öte yandan, yüksek  $H_2O_2$  derişimi, serbest radikallerin etkilerini temizleyerek fotokatalitik aktiviteyi düşürebilir.  $H_2O_2$ 'nin tartrazinin fotokatalitik bozunması üzerindeki etkisi  $H_2O_2$  konsantrasyonuna ve zamana bağlı olduğu tespit edilmiştir. UV/  $H_2O_2$  / Ultrasonik destekli kombine degradasyon yönteminde 10 mM  $H_2O_2$ , 71,93% amplitüd ve 90 dakikalık uygualam süresinde renk ve TOK giderimi sırasıyla %90,96 ve %63,34 olarak elde edilmiştir.

UV/  $H_2O_2$  / Ultrasonik destekli kombine degradasyon sisteminin optimizasyonu için CYM'nin MKT modeli uygulanmıştır. Elde edilen veriler bu 3'lü kombine sistemin tartrazinin 90,96'ya varan bir verimle sulardan giderilebilmesi sağlayan çevre dostu bir yöntem olduğunu göstermiştir. MKT modeline göre tartrazin gideriminde en etkili parametreler sırasıyla  $x_3$ ,  $x_1$  ve  $x_2$  olarak elde edilmiştir.

## KAYNAKLAR

Ameur, F. Z., Mehedi, N., Rivas, C. S., Gonzalez, A., Kheroua, O., and Saidi, D. (2020). Effect of tartrazine on digestive enzymatic activities: in vivo and in vitro studies. *Toxicological Research*, vol. 36 No. 2, pp. 159-166.

Andreozzi, R., Caprio, V., Insola, A. ve Marotta, R., (1999). “Advanced oxidation processes (AOP) for water purification and recovery”, *Catalysis Today*, No. 53 pp. 51–59.

Arslan, İ., Akmehmet-Balcioğlu, I. ve Bahnemann, D.W., (2000). “Advanced chemical oxidation of reactive dyes in simulated dyehouse effluents by ferrioxalate-Fenton/UV-A and TiO<sub>2</sub>/UV-A processes”, *Dyes and Pigments*, No. 47 pp. 207-218.

Arslan, R., Tozluoğlu, A., Sertkaya, S., Fidan, H., & Küçük, S. (2021). Atık Sularda Boya Giderimi İçin Fonsiyonellenmiş Nanoselüloz Esaslı Adsorbanlar.

Arulmathi, P. (2022). Optimization Approach to Evaluate the Solar, UV and LED Visible Light Fenton Processes for Pollutant Degradation in Landfill Leachate. *Global NEST: the international Journal*.

Asiri, A. M., Pugliese, V., Petrosino, F., Khan, S.B., Alamry, K.A., Alfifi, S.Y., Marwani, H. M., Alotaibi, M. M., Mukherjee, D., & Chakraborty, S. (2022). Photocatalytic Degradation of Textile Dye on Blended Cellulose Acetate Membranes. *Polymers*, Vol.14, No.3, 636.doi.org/10.3390/polym14030636

Awad, T. S., Moharram, H. A., Shaltout, O. E., Asker, D. ve Youssef, M. M. (2012). Applications of ultrasound in analysis, processing and quality control of food: A review. *Food Research International*, Vol. 48 No. 2, pp. 410–427. doi: 10.1016/J.FOODRES.2012.05.004

Bahadori, E., Vaiano, V., Esposito, S., Armandi, M., Sannino, D., and Bonelli, B. (2018). Photo-activated degradation of tartrazine by H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> as catalyzed by both bare and Fe-doped methyl-imogolite nanotubes. *Catalysis Today*, No. 304, pp. 199-207.

Boumaaza, M., Belaadi, A., & Bouchak, M. (2021). The Effect of Alkaline Treatment on Mechanical Performance of Natural Fibers-Reinforced Plaster: Part II Optimization Comparison between ANN and RSM Statistics. *Journal of Natural Fibers*, No. 19, pp. 8367- 8382.

Box, G. E., Hunter, W. G., & Hunter, J. S. (2005). *Statistics for Experimenters: Design, Innovation, and Discovery*. John Wiley & Sons.

Carovac, A., Smajlovic, F. ve Junuzovic, D. (2011). Application of ultrasound in medicine. *Acta informatica medica: AIM: journal of the Society for Medical Informatics of Bosnia & Herzegovina: casopis Drustva za medicinsku informatiku BiH*, Vol. 19 No. 3, pp. 168–71. doi:10.5455/aim.2011.19.168-171

Chemat, F., Zill-e-Huma ve Khan, M. K. (2011). Applications of ultrasound in food technology: Processing, preservation and extraction. *Ultrasonics Sonochemistry*, Vol. 18 No. 4, pp. 813–835. doi: 10.1016/j.ultsonch.2010.11.023

Çalik, D. (2008). Tekstil atıksularında bulunan reaktif bir boyanın fotokatalitik oksidasyonu.

Darwish, M., Mohammadi, A., and Assi, N. (2016). Microwave-assisted polyol synthesis and characterization of pvp-capped cds nanoparticles for the photocatalytic degradation of tartrazine. *Materials Research Bulletin*, No. 74, pp. 387-396.

De Castro, M. D. L. ve Capote, F. P. (2006). Chapter 1 Introduction: Fundamentals of ultrasound and basis of its analytical uses. M. D. L. De Castro ve F. P. Capote (Ed.), *Analytical Applications of Ultrasound içinde* (1st Edition., C. 26, ss. 1–34). UK: Elsevier. doi:10.1016/S0167- 9244(07)80017-5

Demirkan, G.Ç., Akat, H., & Yokaş, I. (2014). Atık Su Arıtma Çamurunun *Clarkia amoena* (Yer Açelyası) Türünde Bitki Gelişimi ve Çiçeklenme Üzerine Etkisi.

Demirkol O, Zhang X, Ercal N. Oxidative effects of Tartrazine (CAS No. 1934-21-0) and New Coccin (CAS No. 2611-82-7) azo dyes on CHO cells. *J Verbrauch Lebensm.* 2012; No. 7 pp. 229–236.

Diacu, E., Ungureanu, E.M., Jurcovan, M.M., Ene, C.P., & Ivanov, A.A. (2012). Voltammetric Studies for Detection and Degradation Assessment of some Synthetic Food Dyestuffs II. Sunset Yellow- E-110.

Dwiasi, D.W., & Setyaningtyas, T. (2014). Fotodegradasi Zat Warna Tartrazin Limbah Cair Industri Mie Menggunakan Fotokatalis TiO<sub>2</sub>- Sinar Matahari.

Elneccar, F. (2021). Malahit Yeşili'nin İleri Oksidasyon Teknikleri ile Parçalanmasının Cevap Yüzeysel Metoduyla Optimizasyonu ve Subkritik Su Ortamında Üretilen Hidrokömürlerin Oksidasyondaki Katalitik Etkilerinin İncelenmesi, Mersin Üniversitesi, Mersin, Türkiye.

Ersoy, Ö.F., & Özbay, M. (2023). Marmara Bölgesinde Bulunan Organize Sanayi Bölgelerinin Atık Su Arıtma Tesislerinde Oluşan Arıtma Çamurlarının Enerji Kaynağı Olarak Kullanımının Değerlendirilmesi. *Bilim Armonisi*.

Fang, Y. ve Wang, E., 2013, Electrochemical biosensors on platforms of graphene, *Chemical Communications*, Vol. 49 No. 83, pp. 9526-9539.

G. Stevanović, N. Jović-Jovičić, A. Popović, B. Dojčinović, A. MilutinovićNikolić, P. Banković, and M. Ajduković (2023). ‘‘ Cobalt supported chitosan-derived carbon-smectite catalyst in Oxone induced dye degradation’’ doi: 10.2298/sos23047037s.

Gahramanlı, S. (2020). Tartrazinin Sulu Çözeltilerden Uzaklaştırılması: Yeşil Membran ve Yeşil Proses, Yüksek lisans tezi, Gazi Üniversitesi, Ankara, Türkiye.

Gautam, R. K., Jaiswal, N., Singh, A. K., & Tiwari, I. (2021). Ultrasound-enhanced remediation of toxic dyes from wastewater by activated carbon-doped magnetic nanocomposites: analysis of real wastewater

samples and surfactant effect. *Environmental science and pollution research international*, Vol. 28 No. 27, pp. 36680–36694. doi.org/10.1007/s11356-021-13256-3.

Ghalwa, N.A., Abu-Shawish, H.M., Tamous, H.M., & Harazeen, H.A. (2013). Determination of Electrochemical Degradation of E102 Dye at Lead Dioxide-Doped Carbon Electrodes Using Some Potentiometric and Spectrophotometric Methods.

Gül, Ü.D., & Yıldız, Y. (2020). Yüzey Aktif Madde ile Modifiye Edilmiş Atık Yer Fıstığı Kabuğunun Tekstil Boyası Biyosorpsiyonu Kapasitesinin Belirlenmesi.

Günaydın, M. (2011). Ultrasonik radyasyon ile sulardan doğal organik maddenin gideriminin araştırılması. Süleyman Demirel Üniversitesi. Fen Bilimleri Enstitüsü. Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı.

İndiamart. (2011). İnternette kalitenin değerlendirilmesi. Temmuz 31 2023 tarihinde <https://www.indiamart.com/proddetail/uv-vis-spectrophotometers-10784702912.html> adresinden alındı.

Jadhav, S., and Jaspal, D. (2020). Adsorptive eradication of tartrazine from aqueous solutions onto doped polyaniline. *Journal of the Serbian Chemical Society*, Vol. 85No.2, pp. 251- 263.

Jose V. Garcia-Perez. (2017). Characterization of Pork Meat Products using Ultrasound. V. Mar, Jose V. Garcia-Perez, M. Antonia, A. C. Juan ve B. Jose (Ed.), *Ultrasound in Food Processing: Recent Advances içinde* (First Edit., ss. 3–24). United Kingdom: John Wiley & Sons Ltd.

JSR. (2016). İnternette kalitenin değerlendirilmesi. Temmuz 31 2023 tarihinde <http://www.jsr.kr/eng/heated-digital-water-bath> adresinden alındı.

Knorr, D., Zenker, M., Heinz, V. ve Lee, D.-U. (2004). Applications and potential of ultrasonics in food processing. *Trends in Food Science & Technology*, Vol. 15 No. 5, pp. 261–266. doi: 10.1016/J.TIFS.2003.12.001

Kour, S., Jasrotia, R., Puri, P., Verma, A., Sharma, B., Singh, V. P., Kumar, R., & Kalia, S. (2023). Improving photocatalytic efficiency of MnFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> ferrites via doping with Zn<sup>2+</sup>/La<sup>3+</sup> ions: photocatalytic dye degradation for water remediation. *Environmental science and pollution research international*, Vol. 30 No. 28, pp. 71527–71542. doi.org/10.1007/s11356-021-13147-7

Krışnaveni, N., Karthik, Y., Mathivathanı, S., Gowramma, B. (2017). ‘‘ Stability Evaluation Of Tartrazine By Liquid Chromatography-Diode Array Detector And High-Resolution Electron Spray Ionization Quadrupole Time-Of-Flight Mass Spectrometry/Mass Spectrometry Analysis’’ *Asian Journal of Pharmaceutical Research*, Vol. 10, No. 7, pp. 295-299.

Külekeçi, B. (2017). Ultrasonik ve Subkritik Su Oksidasyonu Yöntemi ile Procion Crimson H-Ex1 Boyasının Degradasyonunun İncelenmesi, Mersin Üniversitesi, Mersin, Türkiye.

Labrehberi & Pluslab. İnternette kalitenin değerlendirilmesi. Temmuz 31 2023 tarihinde <https://www.labrehberi.com/uv-lamba-312-nm.-8-watt> adresinden alındı.

Mar, V., Jose V. Garcia-Perez, Antonia, M., Juan, A. C. ve Jose, B. (2017). *Ultrasound in Food Processing: Recent Advances*. (V. Mar, Jose V. Garcia-Perez, M. Antonia, A. C. Juan ve B. Jose, Ed.) (Firs Etidi.). United Kingdom: John Wiley & Sons Ltd. <https://www.wiley.com/enus/Ultrasound+in+Food+Processing%3A+Recent+Advances-p-9781118964187> adresinden erişildi.

Mason, T. J. (1998). *Power Ultrasound in Food Processing- the Way Forward*. M. J. Povey ve T. J. Mason (Ed.), *Ultrasound in Food Processing içinde* (ss. 105–127). London: Blackie Academic& Professional.

Mason, T. J. (1999). Sonochemistry: current uses and future prospects in the chemical and processing industries. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A*, No. 357, pp. 355–369. <http://rsta.royalsocietypublishing.org/content/roypta/357/1751/355.full.pdf> adresinden erişildi.

McCausland, L. J. ve Cains, P. W. (2004). Power ultrasound-a means to promote and control crystallization in biotechnology. *Biotechnology & genetic engineering reviews*, No. 21, pp. 3–10. <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/17017026> adresinden erişildi.

Montgomery, D. C. (2008). *Design and Analysis of Experiments*. John Wiley & Sons.

Mulashani, A.K., Shen, C., Asante-Okyere, S., Kerttu, P.N., & Abelly, E.N. (2021). Group Method of Data Handling (GMDH) Neural Network for Estimating Total Organic Carbon (TOC) and Hydrocarbon Potential Distribution (S1, S2) Using Well Logs. *Natural Resources Research*, 30, 3605-3622.

Muthukumarappan, K., Tiwari, B. K., O'Donnell, C. P. ve Cullen, P. J. (2010). Ultrasound processing: rheological and functional properties of food. J. Ahmed, S. Ramaswamy, H. S. Kasapis ve J. I. Boye (Ed.), in *Novel Food Processing, Effects on Rheological and Functional Properties içinde* (ss. 85–102). USA: CRC Press.

Myers, R. H., Montgomery, D. C., & Anderson-Cook, C. M. (2016). *Response Surface Methodology: Process and Product Optimisation Using Designed Experiments*. John Wiley & Sons.

Ojha, K., Mason, T. J., O'Donnell, C. P., Kerry, J. P. ve Tiwari, B. K. (2017). Ultrasound technology for food fermentation applications. *Ultrasonics Sonochemistry*, No.34, pp. 410–417. doi: 10.1016/J.ULTSONCH.2016.06.001

Özkütük, N. “Ultraviyole Lambalarının Kullanımı” Ulusal Sterilizasyon Dezenfeksiyon Kongresi-2007, Mikrobiyoloji ve Klinik Mikrobiyoloji, Celal Bayar Üniversitesi MANİSA,

Paniwnyk, L. (2017). Applications of ultrasound in processing of liquid foods: A review. *Ultrasonics Sonochemistry*, No. 38, pp. 794–806. doi: 10.1016/J.ULTSONCH.2016.12.025

Piyasena, P., Mohareb, E. ve McKellar, R. (2003). Inactivation of microbes using ultrasound: a review. *International Journal of Food Microbiology*, Vol. 87 No. 3, pp.207–216. doi:10.1016/S0168-1605(03)00075-8

Saçlı, B. (2019). Lazer Destekli Ultrasonik Yöntem ile Fenol, Pirokatekol ve Pirogallol Bileşiklerinin Degradasyonlarının İncelenmesi, Mersin Üniversitesi, Mersin, Türkiye.

Salazar, J., Turó, A., Chávez, J. A. ve García-Hernández, M. J. (2012). Process Design Involving Ultrasound. A. Jasim ve R. Mohammad Shafiur (Ed.), *Handbook of Food Process Design içinde* (ss. 1107–1165). Oxford, UK: Wiley-Blackwell. doi:10.1002/9781444398274.ch38

Saleh, M., Yalvaç, M., Arslan, H., & Gün, M. (2019). İstilacı *Centaurea Solstitialis* Bitkisi Kullanılarak Sulu Çözeltilerden Malahit Yeşil Boya Giderimi ve Tepki Yüzey Yöntemi ile Optimizasyon: Kinetik, İzoterm ve Termodinamik Çalışma.

Seydi Yıkılmış ‘’ Üzüm Suyunda Patojen *Botrytis Cinerea*'nın Ultrasonikasyon ve Natamisin Kombinasyonu ile Yok Edilmesi ve Bazı Kalite Parametrelerindeki Değişim Üzerine Araştırmalar’’ 2018 İstanbul Üniversitesi Sağlık Bilimleri Enstitüsü.

SEZEN, Ö. (2013). Reaktif Azo Boyarmaddenin  $TiO_2$  Nanopartikülleri ile Fotokatalitik Degradasyon Kinetiğinin İncelenmesi, Yüksek Lisans Tezi, Yıldız Teknik Üniversitesi, İstanbul, Türkiye.

Söğüt, D. (2017), Hidrojen Peroksit Tayini İçin Amperometrik Elektrot Hazırlanması, Yüksek Lisans Tezi, Selçuk Üniversitesi, Konya, Türkiye.

Sun, H., Yao, Y., Wei, F., Zhao, Q., Liu, B., & Zhang, L. (2021). Process optimization and mechanism study of acid red G degradation by electro-Fenton-Feox process as an in situ generation of  $H_2O_2$ . *Turkish journal of chemistry*, Vol. 45 No. 1, pp. 5–16. doi.org/10.3906/kim-2002-10

Şengül, M., Erkaya, T., Başlar, M. ve Ertugay, M. F. Effect of photosonation treatment on inactivation of total and coliform bacteria in milk. *Food Control* 1803–1806 (2011). Elsevier. <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0956713511001423> adresinden erişildi.

Tiwari, B. K., Muthukumarappan, K., O'Donnell, C. P. ve Cullen, P. J. (2008). Effects of Sonication on the Kinetics of Orange Juice Quality Parameters. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, Vol. 56, No. 7, pp.2423–2428. doi:10.1021/jf073503y

Tülay, E. (2010) ‘’ Gıdalardaki katkı maddeleri’’ *Turkish Archives of pediatrics* Vol. 45 pp. 315-318

Venkatesh, N., Sabarish, K., Murugadoss, G., Thangamuthu, R., & Sakthivel, P. (2020). Visible light-driven photocatalytic dye degradation under natural sunlight using Sn-doped CdS

nanoparticles. *Environmental science and pollution research international*, Vol. 27, No. 34, 43212–43222. doi.org/10.1007/s11356-020-10268-3

Wen, K., Wei, L., Ren, Z., Wang, B., & Lu, J. (2021). Enhanced photocatalytic degradation of cationic and anionic dyes by Ag-modified g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> composite: Insights on different mechanisms under visible light. *Journal of Materials Research*, No. 36, pp. 1549-1560.

Yabalak, E. (2021). Treatment of agrochemical wastewater by thermally activated persulfate oxidation method: Evaluation of energy and reagent consumption. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, Vol. 9 No. 3, 105201. doi: 10.1016/j.jece.2021.105201

Yabalak, E. A, Murat, Gizir. (2020) Treatment of agrochemical wastewater by subcritical water oxidation method: chemical composition and ion analysis of treated and untreated samples. *Journal of Environmental Science and Health, Part A* 55:12, pp. 1424-1435.

Yabalak, E., Yilmaz, Ö. Eco-friendly approach to mineralise 2-nitroaniline using subcritical water oxidation method: use of ANN and RSM in the optimisation and modeling of the process. *J IRAN CHEM SOC* 16, 117–126 (2019). <https://doi.org/10.1007/s13738-018-1487-8>

Yabalak, E., Külekçi, B., Gizir, A, M., (2019) Application of ultrasound-assisted and subcritical water oxidation methods in the mineralisation of Procion Crimson H-EXL using response surface methodology and artificial neural network, *Journal of Environmental Science and Health, Part A*, 54:14, 1412-1422, DOI: [10.1080/10934529.2019.1647749](https://doi.org/10.1080/10934529.2019.1647749)

Yu, F., Zhou, M., Zhou, L., & Peng, R. (2014). A Novel Electro-Fenton Process with H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> Generation in a Rotating Disk Reactor for Organic Pollutant Degradation. *Environmental Science and Technology Letters*, No. 1, pp. 320-324.

Yu, Y. Y., Quan, W. Z., Cao, Y., Niu, Q., Lu, Y., Xiao, X., & Cheng, L. (2022). Boosting the singlet oxygen production from H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> activation with highly dispersed Co-N-graphene for pollutant removal. *RSC advances*, Vol. 12 No. 28, pp. 17864–17872. doi.org/10.1039/d2ra02491h

Zhang, C., Ren, G., Wang, W., Yu, X., Yu, F., Zhang, Q., and Zhou, M. (2019). A new type of continuous-flow heterogeneous electro-Fenton reactor for Tartrazine degradation. *Separation and Purification Technology*, No. 208, pp. 76-82.

Zhang, L., Sellaoui, L., Franco, D., Dotto, G. L., Bajahzar, A., Belmabrouk, H., and Li, Z. (2020). Adsorption of dyes brilliant blue, sunset yellow and tartrazine from aqueous solution on chitosan: Analytical interpretation via multilayer statistical physics model. *Chemical Engineering Journal*, No. 382, 122952.

Zhong, D., He, F., Ma, W., Wu, Y., & Dong, J. (2022). Heterogeneous activation of H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>/Na<sub>2</sub>S<sub>2</sub>O<sub>8</sub> with iron ore from water distribution networks for pollutant removal. *Water science and technology: a journal*

of the International Association on Water Pollution Research, Vol. 85 No. 6, pp. 1813–1823. doi.org/10.2166/wst.2022.073.

Zinoviadou, K. G., Galanakis, C. M., Brnčić, M., Grimi, N., Boussetta, N., Mota, M. J., Barba, F. J. (2015). Fruit juice sonication: Implications on food safety and physicochemical and nutritional properties. Food Research International, No. 77, pp. 743–752. doi: 10.1016/J.FOODRES.2015.05.032



