



T.C.
KAHRAMANMARAŞ SÜTÇÜ İMAM ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**PEKTİN-NANOKOMPOZİT İLE İÇME
SULARINDAN AMOKSİSİLİNİN GİDERİMİN
ARAŞTIRILMASI**

ESİN KAYAN

**YÜKSEK LİSANS TEZİ
ÇEVRE MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI**

KAHRAMANMARAŞ 2018

T.C.
KAHRAMANMARAŞ SÜTÇÜ İMAM ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

PEKTİN-NANOKOMPOZİT İLE İÇME
SULARINDAN AMOKSİSİLİNİN GİDERİMİN
ARAŞTIRILMASI

ESİN KAYAN

Bu tez,
Çevre Mühendisliği Anabilim Dalında
YÜKSEK LİSANS
derecesi için hazırlanmıştır.

KAHRAMANMARAŞ 2018

Kahramanmaraş Sütçü İmam Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü öğrencisi Esin KAYAN tarafından hazırlanan “Pektin-Nanokompozit İle İçme Sularından Amoksisilin Gideriminin Araştırılması ” adlı bu tez, jürimiz tarafından 15/05/2018 tarihinde oy birliği ile Çevre Mühendisliği Anabilim Dalında Yüksek Lisans tezi olarak kabul edilmiştir.

Doç. Dr. Yağmur UYSAL (DANIŞMAN)

Çevre Mühendisliği, Çevre Teknolojileri Anabilim Dalı
Kahramanmaraş Sütçü İmam Üniversitesi

Doç. Dr. Yavuz DEMİRCİ(ÜYE)

Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı,
Adıyaman Üniversitesi

Dr.Öğr. Üyesi Hakan MORCALI (ÜYE)

Çevre Mühendisliği, Çevre Teknolojileri Anabilim Dalı
Kahramanmaraş Sütçü İmam Üniversitesi

Yukarıdaki imzaların adı geçen öğretim üyelerine ait olduğunu onaylıyorum.

Doç. Dr. Mustafa ŞEKKELİ

Fen Bilimleri Enstitüsü Müdürü

TEZ BİLDİRİMİ

Tez içindeki bütün bilgilerin etik davranış ve akademik kurallar çerçevesinde elde edilerek sunulduğunu, ayrıca tez yazım kurallarına uygun olarak hazırlanan bu çalışmada, alıntı yapılan her türlü kaynağa eksiksiz atıf yapıldığını bildiririm.

Esin KAYAN



Bu çalışma Kahramanmaraş Sütçü İmam Üniversitesi, Bilimsel Araştırma Projeleri Koordinasyon Birimi tarafından desteklenmiştir.

Proje No:2017/1-36 YLS

Not: Bu tezde kullanılan özgün ve başka kaynaktan yapılan bildirişlerin, çizelge, şekil ve fotoğrafların kaynak gösterilmeden kullanımı, 5846 sayılı Fikir ve Sanat Eserleri Kanunundaki hükümlere tabidir.

**PEKTİN-NANOKOMPOZİT İLE İÇME SULARINDAN AMOKSİSİLİN
GİDERİMİN ARAŞTIRILMASI
(YÜKSEK LİSANS TEZİ)**

ESİN KAYAN

ÖZET

Günümüzde geniş bir kullanım alanına sahip olan antibiyotikler, insan ve hayvan tıbbında tedavi edici amaçlar için sıklıkla kullanılırlar. Antibiyotiklerin bir kısmı metabolizma tarafından kullanılırken, kullanılmayan kısımlar idrar ve dışkı yoluyla kanalizasyon ve oradan da arıtma tesisine ulaşır. Antibiyotik alıcı ortama verilmeden önce fiziksel, kimyasal ve biyolojik yöntemlerle arıtılmalıdır. Bu nedenle antibiyotiklerin tespit edilmesi ve arıtılması önemlidir.

Bu çalışmada pektin kaplanmış demir oksit nanokompozit (Pektin-Fe₃O₄) adsorbent madde olarak sentezlenmiş ve Amoksisilin (AMX) adsorpsiyonundaki etkinliği araştırılmıştır. Pektin-Fe₃O₄ karakterizasyonu için FTIR, SEM ve XDR analizleri yapılmıştır. Adsorpsiyon deneylerinde pH (4-10), temas süresi (15-120), adsorbent dozu (0.5-7.0 g/L) ve AMX başlangıç konsantrasyonunun (25-125 ppm) etkileri incelenmiştir.

Yapılan çalışmalar sonucunda pektin-Fe₃O₄ ile AMX adsorbsiyonunun Freundlich, Langmuir, Tempkin, Harkins-Jura ve D-R İzoterm modellerine uygunluğu araştırılmış olup, adsorpsiyona en iyi uyum sağlayan izotermin Langmuir İzotermi olduğu tespit edilmiştir. Kinetik olarak hız belirleyici basamak, yalancı 2. mertebeden denkleme ait basamaktır. Optimum koşullarda (pH 8, 5 g/L adsorbent dozu ve 50 ppm AMX başlangıç konsantrasyonu) Pektin-Fe₃O₄ adsorbenti kullanılarak AMX gideriminde % 70,4 oranında verim elde edilmiştir. Adsorpsiyon dengesine 120. dakikada ulaşılmıştır. Sonuç olarak elde edilen veriler sentezlenen bu yeni ekotoksik olmayan kompozitin sulu çözeltilerden amoksisilin gideriminde oldukça etkili bir adsorbent olduğunu göstermektedir.

Anahtar Kelimeler: Amoksisilin(AMX),arıtma, ilaç, adsorpsiyon, nanokompozit, pektin,

Kahramanmaraş Sütçü İmam Üniversitesi

Fen Bilimleri Enstitüsü

Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı,

Kahramanmaraş Sütçü İmam Üniversitesi, Mayıs / 2018

Danışman: Doç. Dr. Yağmur UYSAL

Sayfa sayısı: 74

**THE INVESTIGATION OF AMOXICILLIN BY PECTİN NANOCOMPOSITE
FROM DRINKING WATER
(M.SC. THESIS)**

ESİN KAYAN

ABSTRACT

Today, antibiotics which have wide usage area are frequently used for the therapeutic purposes in human and animal medicine. While some of the parts of the antibiotics are used by metabolism, the unused parts reach to the sewage via urine and excreta, and then reach to the wastewater treatment plants. The antibiotics should be treated by physical, chemical and biological methods before discharging to the receiving environments. Therefore, antibiotic detection and treatment of these chemicals from wastewater are so important.

In this study, pectin coated iron oxide nano-composite was synthesized as an adsorbent, and its effectiveness for Amoxicillin (AMX) removal by adsorption process was investigated. FTIR, SEM and XRD analysis was made to characterize pectin-Fe₃O₄ nano-composite. Several batch experiments were tried in the different experimental conditions to find out optimal antibiotic removal such as different pH (4-10), contact time (15-120 min), adsorbent dosage (0.5-7.0 g/L) and initial AMX concentrations (25-125 ppm).

The obtained adsorption data from each concentrations were fitted to Freundlich, Langmuir, Tempkin, Harkins-Jura ve D-R isotherms, and their coefficients were calculated. It was found that AMX removal with pectin- Fe₃O₄ fitted well to Langmuir isotherm, and second order kinetics mechanism. The maximum removal efficiency for AMX of 50 ppm by Pectin-Fe₃O₄ (70,4 %) obtained at pH 8, adsorbent dose of 5 g/L and 120 min. These results show that pectin-Fe₃O₄ composite could be used as non ecotoxicological and effective adsorbent for the removal of amoxicillin from aqueous solutions.

Key words: Amoxicillin (AMX), treatment, pharmaceutical adsorption, nanocomposites, pectin

University of Kahramanmaraş Sütçü İmam

Graduate School of Natural and Applied Sciences

Department of Environmental Engineering, May/2018

Supervisor: Doç. Dr. Yağmur UYSAL

Page Numbers: 74

TEŐEKKÜR

Çalıőmamın her aőamasında bana destek olan bilgi ve deneyimleri ile yol gosteren, bilgi ve tecrübeleri ile lisanüstü öğrenim hayatımın zorlu aőamalarında her yönden yardımcı olan, tecrübeleri ile beni aydınlatan ve desteęini hiç eksik etmeyen , kendisini tanımaktan büyük onur duyduęum danıőman hocam Sayın Doç. Dr. Yaęmur UYSAL'a sonsuz teőekkür ve saygılarımı sunarım.

Tezime katkılarda bulunarak, savunma jürime teőrif eden; Dr. Öğr. Üyesi Hakan MORCALI ve Doç. Dr. Yavuz DEMİRCİ'ye, finansal olarak bu tezin tamamlanmasında desteęi bulunan KSÜ Bilimsel Araőtırma Projeleri Yönetim Birimi Baőkanlıęına(BAP), tez çalıőmamın araőtırma ve laboratuvar çalıőmalarım sırasında yardımlarından dolayı Çevre Mühendislięi bölümü yüksek lisans öğrencileri Ertuęrul ATICI, Ahmet CANBAKIŐ'a, deneysel çalıőmalarım önemli bir bölümünün gerçekleştirilmesinde destek ve yardımlarını gördüęüm Üniversite Sanayi Kamu İőbirlięi Geliőtirme Uygulama ve Araőtırma Merkez'in(ÜSKİM) , personeli Mahmut ÇAYLAR ve Feridun KOÇER'e, dostluęu ve manevi desteęiyle de her zaman yanımda olan sevgili Pınar BELİBAęLI, Kevser CİNKARA , Burcu MUT 'a teőekkürlerimi sunarım.

Ayrıca tüm yaőamım boyunca maddi ve manevi desteklerini esirgemeyen, hiçbir konuda fedakârlıktan kaçınmayan ve hayatımın her anında sevgilerini yüreęimde hissettięim canım babam Kerim KAYAN'a, canım annem Hatun KAYAN'a ve kardeőim Ali KAYAN' a çalıőmam boyunca yardım ve desteęini benden esirgemeyen sevgili niőanlım Sezai MENENDİZ'e sonsuz teőekkürlerimi sunarım.

Esin KAYAN

İÇİNDEKİLER

	<u>Sayfa No</u>
ÖZET	i
ABSTRACT	ii
TEŞEKKÜR	iii
ŞEKİLLER DİZİNİ	vi
ÇİZELGELER DİZİNİ	viii
SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ	ix
1.GİRİŞ	1
1.1.Tıbbi İlaçların Gruplandırılması	2
1.2.Antibiyotiklerin Çevresel Önemi	3
1.3.Antibiyotikler	6
1.4.Amoksisilin Fiziksel ve Kimyasal Özellikleri	8
1.5.Antibiyotik İçeren Atıksuların Arıtılması	10
1.6.Adsorpsiyon	13
1.6.1.Adsorpsiyon türleri	13
1.6.2.Adsorpsiyona etki eden faktörler	14
1.6.3.Adsorpsiyon izotermi	16
1.6.4.Adsorpsiyon kinetiği	19
1.7.Nanoteknoloji ve Nanopartiküller	20
1.7.1.Nano-adsorbentler	21
1.7.2.Demir bazlı nano parçacıklar	22
1.7.3.Manyetit (Fe ₃ O ₄)	22
2.ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR	24
3.MATERYAL VE METOT	27
3.1. Materyal	27
3.1.1. Nano-kompozit madde (Pektin-Fe ₃ O ₄)	27
3.1.2. Diğer kimyasallar	27
3.1.4. Pektin-Fe ₃ O ₄ sentezi	27
3.2. Kullanılan Cihazlar	30
3.4. Metot	32
3.4.1. Analitik metotlar	32
3.4.1.1.Adsorpsiyon Çalışmaları	32

4.BULGULAR VE TARTIŞMA.....	37
4.1.1.AMX gideriminde pH'ın etkisi.....	37
4.1.3. AMX gideriminde nanokompozit dozunun etkisi	39
4.1.2. AMX gideriminde konsantrasyon etkisi	40
4.2.Adsorpsiyon İzotermi.....	42
4.3.Adsorpsiyon Kinetiği.....	47
4.4.AMX 'in Karakterizasyonu	51
4.4.1.SEM analizi	51
4.4.2.FTIR analizi.....	52
4.4.3. X-Işını kırınımı (XRD)	54
5.SONUÇLAR VE ÖNERİLER.....	58
KAYNAKLAR.....	60
ÖZGEÇMİŞ.....	74

ŞEKİLLER DİZİNİ

	Sayfa No
Şekil 1.1 Türkiye’ de Tedavi Gruplarına İlaç Kullanımları.....	3
Şekil 1.2. Tıbbi ilaçların kaynakları ve çevresel etkileri.....	5
Şekil 1.3. Amoksisilin Yapısal Formülü.....	9
Şekil 1.4. Bazı Farmasötik İlaçların Hidrofilik Ve Hidrofobik Sınıflandırması.....	9
Şekil 1.5. Adsorpsiyon Oluşum Aşamaları.....	13
Şekil 1.6. Antibiyotik Kaynakları ve Kullanılan Nano-magnetitler.....	23
Şekil 3.1. Pektin-Fe ₃ O ₄ sentezinde kullanılan kimyasallar.....	27
Şekil 3.2. Pektin-Fe ₃ O ₄ Şematik Sentezi.....	28
Şekil.3.3. Pektin- Fe ₃ O ₄ nanopartiküllerinin sentezleme aşamaları.....	29
Şekil.3.4. .Manyetik özellik kazanmış Pektin- Fe ₃ O ₄ nanopartikülü.....	29
Şekil.3.5. Isıtımlı manyetik karıştırıcı.....	30
Şekil.3.6. pH Metre.....	30
Şekil.3.7. Hassas Terazî.....	31
Şekil.3.8. HPLC cihazı.....	31
Şekil.3.9. SEM cihazı.....	31
Şekil.3.10.SEM Cihazın Şematik Görünüşü.....	33
Şekil 3.11.XRD Cihazının Şematik Gösterimi.....	35
Şekil.3.12. Amoksisilin Kalibrasyon Grafiği.....	36
Şekil.4.1. Pektin-Fe ₃ O ₄ ile AMX Adsorpsiyon Prosesine pH ‘ın Etkisi.....	37
Şekil.4.2. AMX’in Zamana Bağlı Giderim Verimi.....	38
Şekil.4.3. Pektin-Fe ₃ O ₄ ile AMX Adsorpsiyon Prosesine Nanokompozit Dozunun Etkisi	39
Şekil 4.4. Adsorplanan Amoksisilin Miktarı ve Adsorpsiyon Yüzdesinin Adsorbent Dozuyla Değişimi.....	40
Şekil.4.5. Pektin-Fe ₃ O ₄ ile AMX Adsorpsiyon Prosesine Konsantrasyon Etkisi.....	41
Şekil.4.6. AMX’in Zamana Bağlı Giderim Verimi.....	42
Şekil 4.7. Pektin-Fe ₃ O ₄ AMX Adsorpsiyonunun Freundlich İzoterm Grafiği.....	43
Şekil 4.8. Pektin-Fe ₃ O ₄ AMX Adsorpsiyonunun Langmuir İzoterm Grafiği.....	44
Şekil 4.9. Pektin-Fe ₃ O ₄ AMX Adsorpsiyonunun Tempkin İzoterm Grafiği.....	45
Şekil 4.10. Pektin-Fe ₃ O ₄ AMX Adsorpsiyonunun D-R İzoterm Grafiği.....	45
Şekil 4.11. Pektin-Fe ₃ O ₄ AMX Adsorpsiyonunun Harkins-Jura İzoterm Grafiği.....	46

Şekil 4.12. Pektin-Fe ₃ O ₄ Magnetit İle Amoksisilin Adsorpsiyonunun Pseudo Birinci Dereceden Kinetik Grafiği.....	48
Şekil 4.13. Pektin-Fe ₃ O ₄ Magnetit İle Amoksisilin Adsorpsiyonunun Pseudo İkinci Dereceden Kinetik ile İfadesi.....	48
Şekil 4.14. Pektin-Fe ₃ O ₄ Magnetit İle Amoksisilin Adsorpsiyonunun Partikül İçi Difüzyon Modeli.....	49
Şekil 4.15. Pektin-Fe ₃ O ₄ SEM görüntüleri. (a) ve (b) adsorpsiyon öncesi pektin-Fe ₃ O ₄ 51 partikülleri, (c) ve (d) adsorpsiyon sonrası pektin-Fe ₃ O ₄ partikülleri.....	51
Şekil 4.16. Pektin-Fe ₃ O ₄ ile AMX' in Adsorpsiyon Öncesi ve Sonrası SEM Görüntüleri	52
Şekil.4.17. Pektin-Fe ₃ O ₄ partiküllerinin FTIR spektrumu	53
Şekil 4.18. Katkısız Pektin-Fe ₃ O ₄ ait XRD grafiği.....	55
Şekil 4.19. AMX Katkılı Pektin-Fe ₃ O ₄ ait XRD Grafiği.....	56

ÇİZELGELER DİZİNİ

	<u>Sayfa No</u>
Çizelge:1.1.Antibiyotik Çeşitleri ve Aktif Kullanımı	7
Çizelge 1.2.Amoksisilinin Yapısal Ve Kimyasal Özellikleri.....	9
Çizelge 1.3. Başlıca Antibiyotik Türlerinin Atıksu Arıtma Tesislerinde Bulunma Miktarları	12
Çizelge 1.4.Fiziksel ve Kimyasal Adsorpsiyonun Karşılaştırılması	14
Çizelge 1.5 R_L degerleri ile izoterm tipi arasındaki ilişki	17
Çizelge 2.1. Antibiyotik Çeşitleri Üzerine Yapılan Adsorpsiyon Çalışmaları.....	26
Çizelge 3.1. IR Spektra İlişki Çizelgesi	34
Çizelge 3.2. Amoksisilinin Kromatografik Koşulları	35
Çizelge.4.1. Freundlich, Langmuir , Tempkin , D-R ve Harkins-Jura İzoterm Sabitleri	47
Çizelge 4.2 Kinetik Sabitleri	50
Çizelge 4.3 Optimum Şartlar	50
Çizelge 4.4: Amoksisilinin titreşim frekansları.....	54
Çizelge 4.5. Pektin- Fe_3O_4 ile AMX 'in Giderimi için ANOVA Tablosu Sonuçları	57

SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ

AMX	: Amoksisilin
FTIR	: Fourier Dönüşümlü Infrared Spektrofotometre
SEM	: Taramalı Elektron Mikroskobu
TS	: Türk Standartları
TSE	: Türk Standartları Enstitüsü
USEPA	: Amerika Birleşik Devletleri Çevre Koruma Ajansı
WHO	: Dünya Sağlık Örgütü
EMA	: Avrupa Sağlık Ajansı
XRD	: X-Isını Kırınımı
EMA	: Avrupa İlaç Ajansı
HPLC	: Yüksek Performanslı Sıvı Kromatografi

1. GİRİŞ

Sularda tespit edilen ilaç kalıntıları diğer kirleticilere oranla her ne kadar çok daha düşük derişimler de bulunsa da insan ve çevre sađlıđı üzerinde meydana getirdikleri zararlı etkiler oldukça önemlidir. Yeryüzündeki bol miktarda bulunan sular dođal kaynaklardan biridir ancak bu kaynaklarının sadece %1' i insanlar tarafından tüketilmektedir (Grey ve ark., 2013; Adeleye ve ark., 2016). İçme suyu, nüfusun ve iklimsel çeşitliliđin artmasıyla ve çevresel endişelere yol açmıştır (Adeleye ve ark., 2016). 1,1 milyardan fazla insanın yeterli miktarda içme suyu kaynađının olmadığı tahmin edilmektedir (WHO, 2015).

Sulardaki en büyük tehlike, çeşitli organik ve inorganik mikrokirleticiler tarafından tatlı su kaynakları giderek azalmaktadır (Schwarzenbach ve ark., 2006). Bu mikrokirleticiler biyolojik ayrışmaya karşı dirençli olup geleneksel atıksu arıtma tesislerinde sadece bir kısmı arıtılarak ya da hiç arıtılmadan alıcı ortamlara verilmektedir. Klasik atıksu arıtma tesisi büyük oranda ve tesise düzenli gelen organik maddelerin azot fosfor gibi nutrientlerin giderimi üzerine projelendirilmiştir.

Bununla birlikte, geleneksel (konveksiyonel) arıtma yöntemleri, ortaya çıkan kirletici maddeleri tamamen arıtılmasında ve su kalitesi standartlarını karşılayacak kadar verimli değildir (Qu ve ark., 2012).

Günümüzde yapılan çalışmalarda çevresel ortam ve sucul ortamda bulunan tıbbi ilaçlardan kaynaklanan mikro kirleticilerin varlığı ve bu ortamlarda yaşayan canlılar üzerinde olumsuz etkilerinin görülmesi bu konu endişelere sebep olmuştur (Richardson ve Brown, 1985; Kümmerer, 2000; Heberer, 2002).

Farmasötik maddeler (analjezik, antibiyotikler, antidepresanlar, antidiyabetikler, doğum kontrol hapları, büyüme düzenleyicileri, iktidarsızlık ilaçları, ağrı kesiciler ve sakinleştiriciler) tarafından yeraltı sularının kirlenmesine yol açan çevresel kirleticilerdir (Robinson ve ark., 2007; Ternes ve ark., 2007). Antibiyotikler, birkaç yıldır insan ve hayvan tıbbında tedavi amaçlı kullanılmaktadır fakat bu bileşikler çevreye bırakıldığında sucul ve karasal organizmalar için potansiyel risk taşımaktadır (Xu ve ark., 2007).

Ekosistemin kirlenmesi ve temiz su kaynaklarının tüketilmesi insan sađlıđı için tehdit oluşturmaktadır. Su kirliliđine, neden olan kaynaklardan biri de sularda minimal düzeyde bulunan ilaç konsantrasyonlarıdır (Rivera ve ark., 2013). Yaklaşık olarak %30-90 insan ve hayvan metabolizmasında bozunmadan kalabilir ve büyük ölçüde aktif bileşik olarak atılır (Aksu ve ark., 2005 ; Pouretedal ve ark., 2014).

Farmasötik kalıntılar hedef olmayan organizmaları da olumsuz etkilemektedir (Vasquez ve ark., 2014). Antibiyotiklerdeki aktif bileşenlerin sucul sistemlerde potansiyel riskler taşıdıkları ve belirli sucul organizmalar için doğrudan zehirli olduklarından şüphelenilmektedir (Bello ve ark., 2015).

Son zamanlarda, çevredeki antibiyotiklerin varlığı, sağlık ve çevre üzerinde etkilerinden dolayı dikkat çekmiştir (Jorfi ve ark., 2016). Antibiyotiklerin giderilmesinde kimyasal, fiziksel ve biyolojik yöntemler kullanılmıştır. Bu yöntemler sırasıyla; kimyasal oksidasyon, biyodegradasyon, adsorpsiyon, sıvı ekstraksiyon ve membran teknikleridir. Atık sudaki kirletici konsantrasyonlarına ve işletim maliyetine bağlı olarak, farklı yöntemler seçilebilmektedir. Bununla birlikte, bu yöntemlerin düşük verim elde etmesinden dolayı atık sudan b-laktam antibiyotiklerin etkili bir şekilde giderilmesinde kullanılan yeni yöntemlerin geliştirilmesi gerekmektedir (Homem ve ark., 2011).

Ayrıca mevcut atıksu arıtma teknolojileri, yüksek enerji gereksimi, kirletici maddelerin verimli düzeyde arıtılamaması ve zehirli çamur üretimi gibi dezavantajlara sahiptir (Ferroudj ve ark., 2013). Bu nedenle yüksek konsantrasyonlarda, biyolojik arıtma tesislerinde toksisiteye neden olan ilaç endüstrisi atıksuları, biyolojik arıtmaya verilmeden önce kimyasal bir ön arıtma işlemi uygulanmalı ve yeni teknolojiler geliştirilmelidir. Son zamanlarda yapılan çalışmalar da su kaynaklarına ve besin zincirine karışan ilaç aktif maddelerinin ve metabolitlerinin ekosistem ve insan sağlığı için gerçek bir tehdit oluşturduğunu göstermektedir.

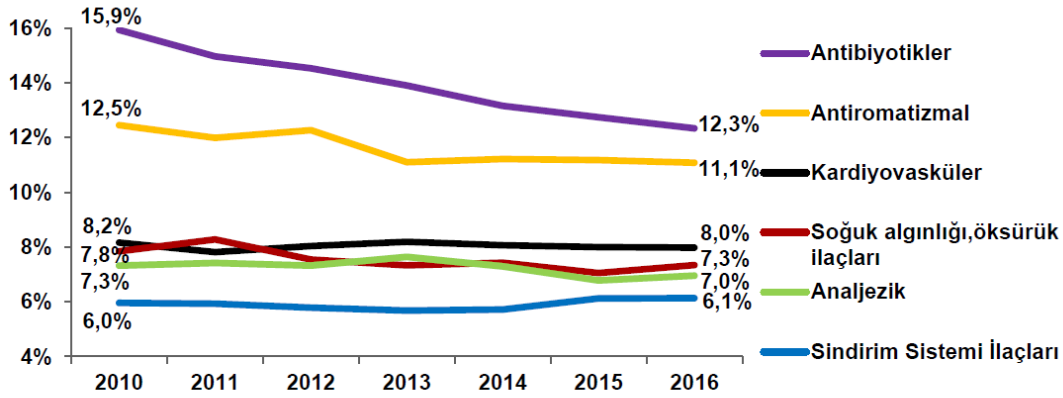
1.1. Tıbbi İlaçların Gruplandırılması

Türkiye’de tedavi gruplarına göre ilaçlar ve kullanım alanları şunlardır:

- Antibiyotikler,
- Ağrı kesici ilaçlar, romatizmal ilaçlar,
- Soğuk algınlığı ve öksürük ilaçları,
- Vitaminler, mineraller ve kan yapıcı ilaçlar,
- Deri hastalıkları ilaçları, sindirim sistemi ilaçları,
- Kalp ve damar hastalıkları ilaçları, hormonlar,
- Kulak, burun, boğaz ve göz ilaçları, sinir sistemi ilaçlarıdır (İeis, 2017)

Türkiye'de yılda yaklaşık 250 milyon kutu antibiyotik kullanılmaktadır. Antibiyotik kullanımının, insanlık tarihinde sağlık açısından bir dönüm noktası olmasına rağmen fazla kullanıldığında sağlığa ciddi zarar vermektedir.

Türkiye' de tedavi gruplarına ilaç kullanımları incelendiğinde antibiyotiklerin ilk sırayı almaktadır. Antiromatizmal ilaçları ve kalpdamar hastalıkları ilaçlarının kullanım oranları zamanla çok değişmezken, ağrı kesici ve analjezik ilaçların kullanımı ise zamanla azalmaktadır.



Şekil 1.1. Türkiye' de Tedavi Gruplarına İlaç Kullanımları IEIS (2017)

1.2. Antibiyotiklerin Çevresel Önemi

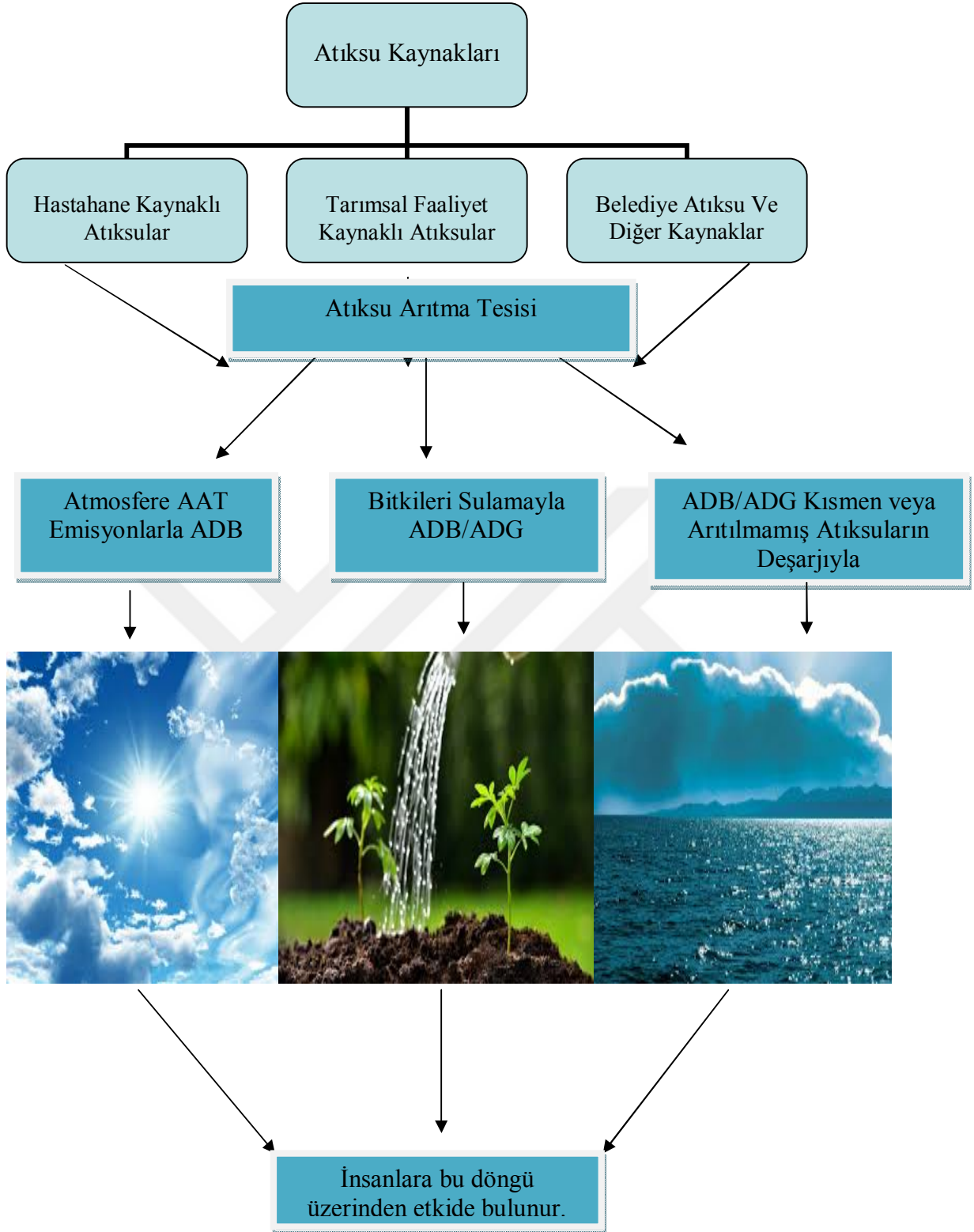
Günlük hayatta yaygın kullanıma sahip olan antibiyotiklerin esas kaynakları; evler, hastaneler, hastabakım evleri (tıbbi tedavi, kullanılmayan ürünlerin doğrudan atılması), kümes ve çiftlik hayvanı yetiştiriciliği (büyüme teşvik maksatlı ilaçlar) ve farmakolojik madde üreticileridir ve varlıkları karasaldan sucul ekosistemlere kadar birçok sistemde tespit edilmiştir (Leung ve ark., 2012; Alygizakis ve ark., 2016; Vălitalo ve ark., 2017). Antibiyotiklerin vücuttan metabolize edilmeden atılma oranları %10-%90 arasında değişmektedir.

Bu nedenle, insan ve hayvan dışı büyük miktarda antibiyotik içerebilmektedir. Kullanılan tüm antibiyotiklerin toplamda ortalama %30'u vücutta metabolize edilirken % 70' i değişmeden dışkı veya idrar yoluyla atılmaktadır (Kummerer, 2009). 2006 yılında ABD'de antibiyotiklerin hayvanlarda büyüme teşvik etme amacıyla kullanılması yasaklanmış olmakla birlikte Çin ve Hindistan gibi dünyanın başka yerlerinde hala bu amaçla kullanılmaktadır (Ronquillo ve Hernandez, 2017).

Son zamanlarda, antibiyotikler, hastane atık sularında ve atık sularda (Lindberg ve ark., 2004), nehirlerde ve atıksu arıtma tesislerinde varlığı tespit edilmiştir (Cha ve ark., 2006). Antibiyotik kullanımı hem antibiyotiğe direçli bakterilerin (ADB) hem de antibiyotiğe karşı dirençli genlerinin (ADG' nin) ortaya çıkmasına neden olmuş, bu da insan sağlığı için ciddi bir tehdit oluşturmaktadır (Luo ve ark., 2014). Antibiyotik direnci (AD); bir mikroorganizma türünün bazı suşlarının antibiyotikten etkilenmemesi ya da antibiyotiğe duyarlı bir suşun çeşitli direnç mekanizmalarından biri ile dirençli hale dönmesi olarak tanımlanmaktadır. Günümüzde çeşitli antibiyotiklerin toplumda tüketiminin artması, bağışıklık sistemi bozulmuş hastaların sayısında artma olması yoğun bakım ünitelerinin sayısının artması, gıda endüstrisinde antibiyotik kullanımı gibi nedenlerle mikroorganizmalardaki antibiyotik direnci giderek artmaktadır. Bu durum, giderek büyüyen ilaç endüstrisinin bilinmeyen çevresel tehlikelere sahip yeni ilaçlar üreterek daha çok ciddi tehlikelere yol açmaktadır. Canlı türler içinde farmasötik ilaçların bilinen bir yıkıcı etkiside, erkek balıkları dişileştirmesidir (Chang ve ark., 2008).

Antibiyotiklerin, birçoğu biyolojik ayrışmaya dirençli olup atıksu arıtma tesislerinde bir kısmı ya da hiç arıtılmadan alıcı ortamlara verilmektedir, böylece antibiyotiğe direçli genlerin çoğalması sonucunda çevreye yayılmaktadır (Aminov ve ark., 2001; Li ve ark., 2017; Makowska ve ark., 2016). Sudaki antibiyotik kaynağı ne olursa olsun, antibiyotiklere karşı antibiyotik dirençli genler (ADG) ve antibiyotiğe dirençli bakteriler (ADB), insan ve hayvan patojenlerine karşı antibiyotik tedavilerinden olumsuz etkilemektedir (Rizzo ve ark., 2013).

Dünya çapındaki su kıtlığı, arıtılmış atık su kullanımını yeniden önem kazandırmıştır. Bu amaçla atık suların yeniden kullanılmadan önce antibiyotiğe dirençli bakterilerin atıksu da tanımlanması ve etkili bir şekilde uzaklaştırılması son derece önemlidir. Örneğin, çiğ veya yarı pişmiş olarak tüketildiğinde antibiyotiğe direçli bakteriler içeren bu tür arıtılmış atıksu kullanılarak yetiştirilen sebzeler, büyük sağlık riskini ortaya çıkarabilmektedir (Ferro ve ark., 2015) .



Şekil 1.2. Tıbbi ilaçların kaynakları ve çevresel etkileri (Ferro,2015)

1.3. Antibiyotikler

Doğal veya sentetik kaynaklı antibiyotikler, bakterilerin hem proliferasyonu (çoğalmayı) önlemek hem de bakterileri yok etmek için kullanılmaktadır. Antibiyotikler, düşük mantarlar veya bazı bakteriler tarafından üretilmektedir. İnsanlar ve hayvanlardaki hastalıkların enfeksiyonel tedavinde kullanılmaktadır. Ancak, bilimsel kanıtlar, bu bileşiklerin kitlesel kullanımının antibiyotik direncinin artmasına yol açtığını göstermektedir (Diarra ve ark., 2007; Forgetta ve ark., 2012; Furtula ve ark., 2010) hem çevrede hem de hayvansal tüketimde kullanılan yemlerde antibiyotik kalıntıları çevre (Carvalho ve ark., 2016; Ronquillo ve ark., 2017), insan ve hayvan sağlığını tehdit etmektedir (Diarra ve ark., 2010).

Antibiyotikler genellikle hastahane atıksuları, (Verlicchi ve ark., 2015; Orya ve ark., 2016), tarımsal faaliyet kaynaklı atıksular (Patrolecco ve ark., 2015), kümes hayvanları ve çiftlik hayvanları gibi diğer atıklardan kaynaklı atıksularda yüksek konsantrasyonlarda bulunmaktadır (Kay ve ark., 2004). Antibiyotikler, her geçen gün gelişen çok çeşitli tıbbi kimyasallar sonucu herhangi bir değişime uğramadan atıksulara ve oradan da evsel atıksu arıtma tesislerine ulaşmaktadır (Grenni ve ark., 2018).

Topraktaki antibiyotik kalıntıları, kullanılan ilaçların fizikokimyasal özelliklerine, toprak özelliklerine ve iklim koşullarına göre farklılık göstermektedir. Asit yağmuru hayvan gübresi ve toprak yüzeyindeki antibiyotik birikimini hızlandırırken, uzun süren yağışlar, antibiyotiklerin toprağın daha derin kısımlarında bulunmasına yol açmaktadır. (Pan ve ark., 2013).

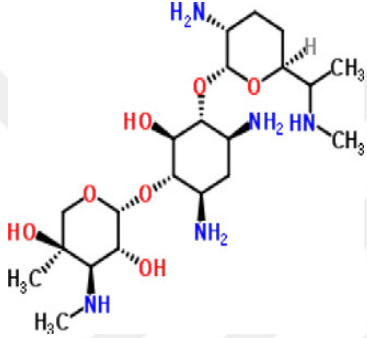
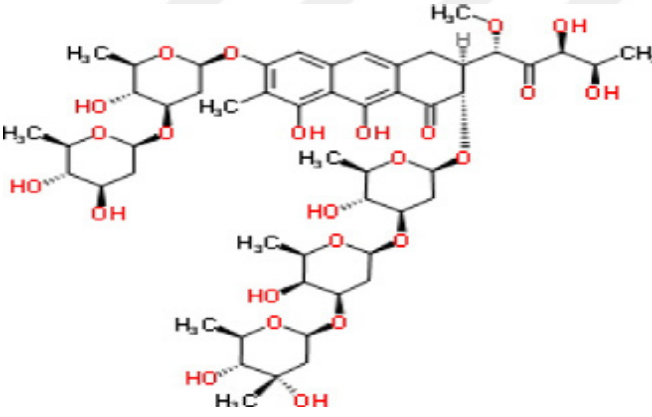
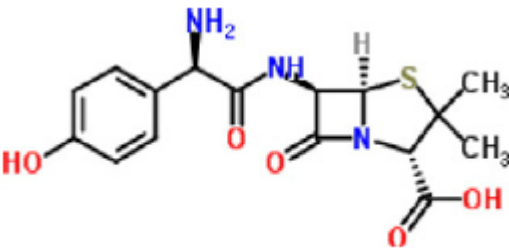
Antibiyotiklerin çevreye salınmasından duyulan başlıca endişe, antibiyotiklere dirençli genlerin (ADG) ve bakteri türlerinin gelişmesi potansiyeli ve sonucunda insan ve hayvan üzerindeki tedavi edici etkiyi azaltacak olmasından kaynaklanmaktadır (Rizzo ve ark., 2013). Özellikle çevresel ortama bırakılan antibiyotikler, gelişmiş dirençli bakterilerin çoğalmasına neden olmakta ve bu durum prosesleri olumsuz yönde etkilemektedir (Mohammadi ve ark., 2015).

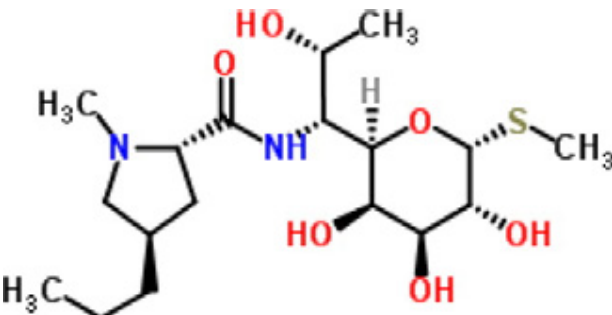
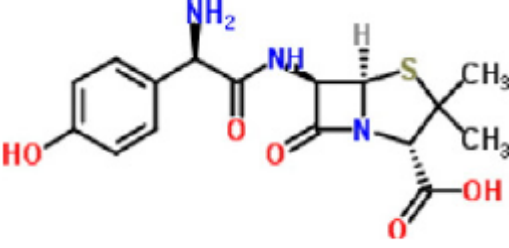
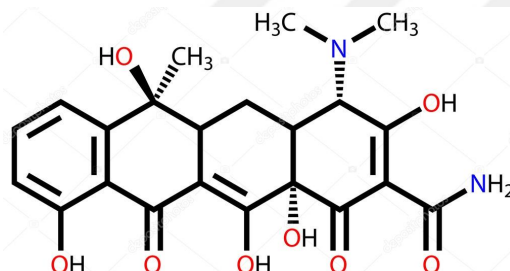
1.3.1. Antibiyotiklerin Sınıflandırılması

Antimikrobiyal bileşikler, mikroorganizmaların (bakteri, archaea, virüsler, protozoa, mikroalg ve mantar) çoğalmasını önleyen ve onları inhibe eden bileşiklerdir. Antibiyotikler, bir mikroorganizma tarafından (bakteriyostatik veya bakterisit) yapılan ve başka mikroorganizmaları öldüren veya çoğalmalarını engelleyen doğal, sentetik ve yarı

sentetik moleküllerdir maddelerdir (Benzilpenisilin, Gentamisin). Yarı-sentetik bileşikler, ilaç formülasyonu içinde bir katkı maddesinin eklenmesiyle kimyasal olarak değiştirilmiş antibiyotiklerdir (Grenni ve ark., 2018). Antibiyotikler, kimyasal yapılarında farklı fonksiyonel gruplara sahip olabilen ve farklı kategorilere ayrılabilen kompleks moleküllerdir (Brandt, 2015). Antibiyotik çeşitleri ve aktif kullanımları Çizelge 1.3'de belirtilmiştir.

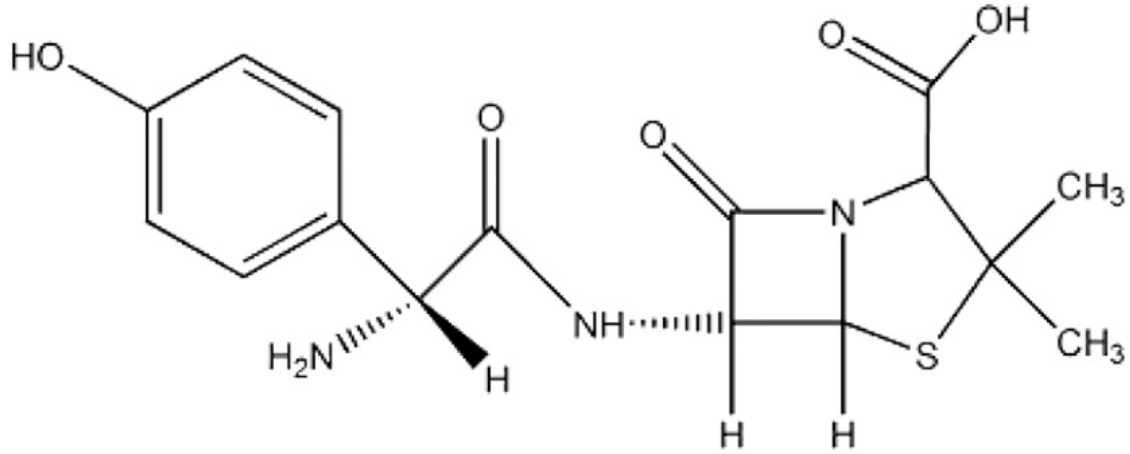
Çizelge:1.1. Antibiyotik Çeşitleri ve Aktif Kullanımı (EMA, 2001)

Antibiyotiklerin Sınıflandırılması	Aktif Bileşikleri	Kullanım Alanı
Aminoglikozitler 	Amikasin Dihydrostreptomycin Antibiyotik Kanamisin Neomisin Gentamisin	Veterinerlik Veterinerlik İnsan, Bitki Veterinerlik Veterinerlik Veterinerlik
Kanser İlaçları 	Mitramisin Streptozosine Pentostatin	İnsan İnsan İnsan
β-laktamlar 	Amoxisisilin Ampisisilin Azlosilin Benzylpenisilin Carbenisilin Cloxasilin Cephalotin Diclokasilin Fluclokasilin Methisilin Mezlosilin Nafsilin	Veterinerlik, İnsan Veterinerlik İnsan Veterinerlik Veterinerlik (Büyükbaş) Veterinerlik (Köpek) İnsan Veterinerlik (Büyükbaş) İnsan İnsan

	Oxasilin Nafsilin Penisilin G	Veterinerlik (Büyükbaş) İnsan
Linkozamidler	Klindamisin Linkomisin	İnsan Veterinerlik
		
Makrolidler	Eritromisin Roksitromisin Klaritromisin Diritromisin Azitromisin Spiramisin	İnsan İnsan, Veterinerlik İnsan İnsan İnsan Veterinerlik
		
Tetrasiklin	Klortetrasiklin Terasiklin Doksisiklin Oksitetrasiklin	Veterinerlik Veterinerlik, İnsan Veterinerlik, İnsan
		

1.4. Amoksisilin Fiziksel ve Kimyasal Özellikleri

Amoksisilin geniş spektrumlu bir b-laktam antibiyotiktir. Gastrointestinal (Sindirim sistemi) ve sistemik enfeksiyonların tedavisi için veterinerlik tıbbında kullanılmaktadır ve ayrıca insanlarda bu ilacı olarak bakterilerin neden olduğu enfeksiyonlara karşı yaygın olarak kullanılmaktadır (Mohammadi ve ark., 2015; Putra ve ark., 2009). Amoksisilin tüketimi, ağız yoluyla alınan diğer penisilin gruplarına göre daha yüksektir (Berghe ve ark., 2011) ve biyolojik olarak bozunurluğu diğer antibiyotiklere göre daha azdır.



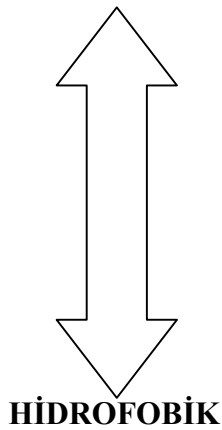
Şekil 1.3. Amoksisilin Yapısal Formülü ($C_{16}H_{19}N_3O_5S$)

Çizelge 1.2. Amoksisilin Yapısal Ve Kimyasal Özellikleri

Moleküler Formülü	$C_{16}H_{19}N_3O_5S$
Moleküler Ağırlığı	365.4 g mol ⁻¹
CAS Numarası	26787-78-0
Asit Ayırma Sabiti (pKa)	Karboksil (pKa: 2,68), amin (pKa: 7,49) ve fenolik hidroksil (pKa: 9,63)

Adsorbsiyon partiküller ve mikroorganizmalar ile ilaçların hem hidrofobik hem de elektrostatik çekim özelliklerine bağlıdır. Bu bileşikler hidrofilik olmalarına göre su ortamına girebilir ya da adsorbe olmuş halde katı partikül üzerinde kalabilmektedir (Dökmeci, 2009).

HİDROFİLİK



HİDROFOBİK

- ✓ İyonize ajanlar
- ✓ Florlu kinolonlar
- ✓ Lipid düzenleyiciler, B-blokerler, NSAİİ (Non Steroid anti enflamatuar ilaçlar)
- ✓ Sulfonamidler, makrolid grubu antibiyotikler
- ✓ Antiepileptikler; karbamazepin
- ✓ Antidepresanlar
- ✓ Estrojenler

Şekil 1.4. Bazı Farmasötik İlaçların Hidrofilik Ve Hidrofobik Sınıflandırması (Halling-Sorensen, 1998)

1.5. Antibiyotik İçeren Atıksuların Arıtılması

Antibiyotiklerin kararsız ve dirençli yapılarından dolayı, antibiyotik formülasyon çıkış sularının klasik biyolojik arıtma yöntemleriyle gideriminde zorluklarla karşılaşmakta ve bu atıksular çevre kirliliğine katkıda bulunmaktadır. Ayrıca bazı tür antibiyotikler biyolojik olarak bozunamadıklarından dolayı konvansiyonel arıtmayla giderilememektedir. Bu durum, bu maddelerin aktif çamur sistemlerindeki mikroorganizmalara olan inhibisyon etkisinden kaynaklanmaktadır. Antibiyotikler, atıksu arıtma tesislerinde genellikle ikincil ve ileri arıtım basamaklarında giderilmektedir (Minh ve ark., 2010).

Konvansiyonel atıksu arıtma tesislerinde antibiyotikleri giderilmesi için biyolojik prosesler, filtrasyon ve koagülasyon/flokülasyon/sedimentasyon gibi çeşitli yöntemler kullanılmaktadır (Homem ve ark., 2001). Klasik atıksu arıtma tesisi, ilaçlar gibi kirleticilerin arıtımı için tasarlanmamış olup ilaçların düşük konsantrasyonlarını gidermek için işletilmekte ve buradaki bileşenler yüzeysel sulara bırakılmaktadır (Kolpin ve ark., 2002; Glassmeyer ve ark., 2005; Batt ve ark., 2006). Antibiyotiklerin giderilmesinde farklı giderim metodları vardır.

Bunlar;

- ✓ Adsorpsiyon,
- ✓ İleri Oksidasyon İşlemleri (Fenton reaksiyonu, UV, UV/H₂O₂, UV/H₂O₂/TiO₂ işlemleri, vb.), Biyodegradasyon,
- ✓ Membran, filtrasyonu ve koagülasyon/flokülasyon/sedimentasyon gibi yöntemlerdir (Rivera, 2013; Jung, 2013; Homem, 2011).

Başlıca antibiyotik türlerinin atıksu arıtma tesislerinde bulunma miktarları Çizelge1.3'te ifade edilmektedir. Konvansiyonel arıtma sistemi çıkış akımlarında, potansiyel endokrin bozucular, farmakolojik bileşikler (antibiyotikler), dezenfeksiyon yan-ürünleri, kişisel bakım ürünleri, metabolitler ve dönüşüm yan ürünleri gibi zor ayrışabilir yapıda organik madde yüklerine rastlanmaktadır. Bunun sebebi bu kirleticilerin yapısal özellikleri sebebiyle mevcut sistemlerde yetersiz oranda arıtılabilmeleridir (Kassinis ve ark., 2011).

Antibiyotiklerin, birçoğu biyolojik ayrışmaya dirençli olup atıksu arıtma tesislerinde bir kısmı ya da hiç arıtılmadan alıcı ortamlara verilmektedir, böylece ADG proliferasyonu (antibiyotiğe dirençli genlerin çoğalmasına yol açarak) sonucunda çevreye yayılmaktadır (Aminov ve ark., 2001; Li ve ark., 2017; Makowska ve ark., 2016).

Atık sudaki kirletici konsantrasyonlarına ve işletim maliyetine bağlı olarak, farklı yöntemler seçilebilir. Bununla birlikte, bu yöntemlerin düşük verim elde etmesinden dolayı atık sudan b-laktam antibiyotiklerin etkili bir şekilde giderilmesinde kullanılan yeni yöntemlerin geliştirilmesi gerekmektedir (Homem ve ark., 2011).

Antibiyotikler, alıcı ortamlara sürekli dahil olmaları ve varlıkları yüzünden, görünüşte kalıcı bileşik olarak kabul edilmektedir. Antibiyotiklerin oluşumu ve salınımı, mikroorganizmayı öldürmek ve büyümesini baskılamak için tasarlandığından ve bu yüzden atıksu arıtma tesisinde faydalı mikroorganizmaların aktivitesini engellemeleri veya etkisiz hale getirmelerinden dolayı özel bir kaygı kaynağı oluşturmaktadırlar. Ayrıca, antibiyotiklere sürekli maruz kalma nedeniyle, atıksu içinde yaşayan mikroorganizma topluluğu, geri kalan mikroorganizma topluluklarına nazaran daha fazla direnç mekanizması geliştirmektedir. Arıtılmamış atıksuyun hem sıvı hem de katı fazında çeşitli antibiyotik bileşiğinin varlığı saptanmıştır (Tiwari ve ark., 2017).

Biyolojik arıtma sistemlerinde antibiyotiklerin biyolojik bozunma oranları düşük olup, giderim mekanizmaları arasında yoğun olarak adsorpsiyon, biyodegradasyon, dezenfeksiyon ve membran prosesler ön plandadır (Minh ve ark., 2010; Lin ve ark., 2009). Antibiyotiklerin gideriminde etkin olan mekanizma aynı zamanda bakterilerde direnç gelişimini de etkinleştirebilmektedir. Antibiyotiklerin, dirençli bakterilerin ve anbiyotiklere direnç geliştiren genlerin konvansiyonel arıtma sistemlerinde kontrol altına alınması hemen hemen mümkün değildir.

Antibiyotikler, antibakteriyel ilaçlar, ağrı kesiciler ve ateş düşürücü ilaçlar, kolesterol ilaçları, sitostatik ilaçlar, sentetik steroidler vb. çeşitli araştırmalarla su ekosisteminde tespit edilen ilaçlardır (Heberer ve ark., 2002).

Çizelge 1.3. Başlıca Antibiyotik Türlerinin Atıksu Arıtma Tesislerinde Bulunma Miktarları

Analiz tür/Bölge	Giriş Kons. (mg/L)	Çıkış Kons. (mg/L)	Uygulanan Arıtma Yöntemleri	Giderim Yüzdesi	Kaynak
Amoksisilin (Kuzey Kore)	480	233	UV	51	(Lee ve ark., 2017)
Ampisilin (Avustralya)	56	24	A.Ç/UV/ Klorlama	56	Lee ve ark., 2017)
Sulfametaksazol (Gwangju)	692	183	A.Ç / UVKlorlama	74	(Lee ve ark., 2017)
Amoksisilin, Penisilin (Almanya)	100	-	Konveksiyonel Arıtma	0	(Marx ve ark., 2012)
Tetrasiklin (İsveç)	250	-	A/O HRT;72 sa	29,6	(Chen ve ark., 2012b)
Siprofloksasin (Çin)	69,3	-	MBR	80	Hu ve ark., 2018)
Tekrasiklin (Çin)	234	-	A.Ç/ flokulasyon	-	Hu ve ark., 2018)
Sülfan-amidleri (Yeong-san)	327	60,47	A.Ç	-	Hu ve ark.,2018)
Sülfapiridin (Hollanda)	<275	<275	A.Ç	-	(Sabri ve ark., 2018)
Tetrasiklin (Güney Çin)	100	55	A.Ç	-	(Pan ve ark., 2018)
Amoksisilin (Nanjing)	10-150	<20	MPBR/ Adsorpsiyon	99	(Shia ve ark., 2018)
B-Laktam (Avusturya)	100,253	-	İkincil arıtım	96	(Lucas ve ark., 2016)

UV=Ultra Viyole

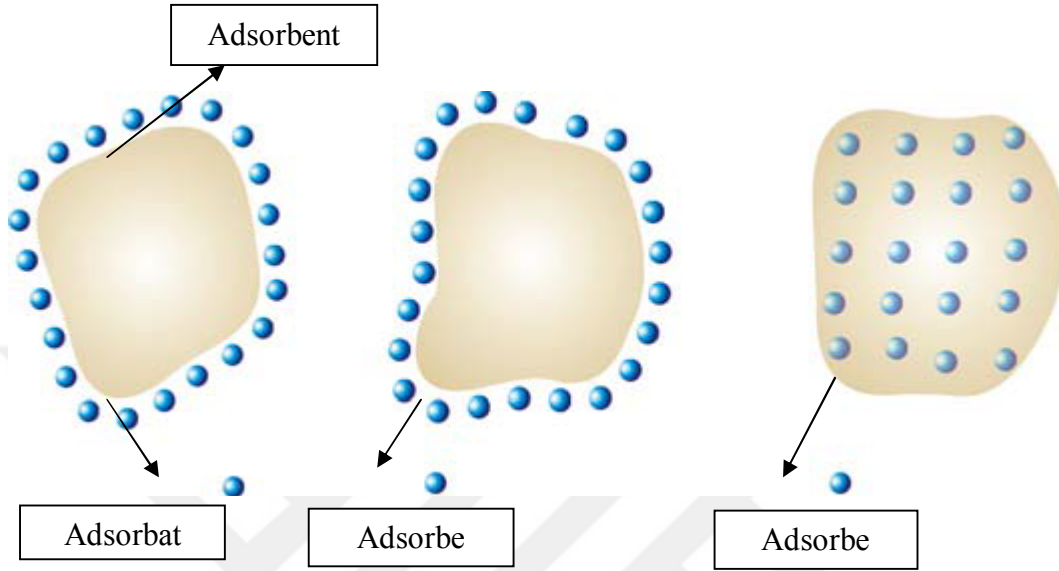
A.Ç=Aktif Çamur

HRT=Hidrolik Bekletme Süresi,

MPBR= Hareketli Yatak Bio Reaktör Sistemi

1.6. Adsorpsiyon

Atom, bir katı yüzeyinde moleküllerin ya da iyon tutulmasına adsorpsiyon, katıya adsorplayıcı (adsorbent), katı yüzeyinde tutunan maddeye ise adsorplanan (adsorban) adı verilir. 3 çeşit adsorpsiyon vardır.



1.6.1. Adsorpsiyon türleri

1.6.1.1. Fiziksel adsorpsiyon

Adsorbe olan molekül katı yüzeyinde belirli bir yere bağlanmamıştır, yüzey üzerinde hareketli bir durumdadır. Düşük sıcaklıklarda gerçekleşmektedir. Adsorbat adsorbanın yüzeyinde birikir ve gevşek bir tabaka oluşturmaktadır (Smith, 1995).

1.6.1.2. Kimyasal adsorpsiyon

Adsorplanan madde ile katı yüzey arasındaki fonksiyonel grupların kimyasal etkileşimi ile oluşan adsorpsiyondur. Kimyasal adsorpsiyon, adsorplanan maddenin fonksiyonel gruplarından dolayı oluşmaktadır ve adsorban kararlı bir bağ oluşturmak için etkileşmektedir. Katının tüm yüzeyinde değil yalnızca aktif merkezlerde olmaktadır. Kimyasal adsorpsiyon yüksek sıcaklıklarda gerçekleşmektedir. Sıcaklık çok yükselirse fiziksel adsorpsiyon olayı kimyasal adsorpsiyona dönüşebilir. Adsorbe olan maddenin uzaklaştırılması için (rejenerasyon) adsorbanın yüksek sıcaklıklara kadar ısıtılması gibi işlemler uygulanmaktadır. Fiziksel ve kimyasal adsorpsiyonun karşılaştırılması Çizelge 1.4' de gösterilmiştir.

Çizelge 1.4. Fiziksel ve Kimyasal Adsorpsiyonun Karşılaştırılması (Arıkan, 1991; Yener, 1997)

FİZİKSEL ADSORPSİYON	KİMYASAL ADSORPSİYON
Moleküller arası Van Der Waals etkileşimleri neden olur.	Kimyasal bağ oluşumu neden olur.
Kolayca sıvılaştırılabilir gazlar kolayca adsorbe edilir	Fiziksel adsorpsiyondan çok daha spesifiktir.
Çift yönlüdür.	Tek yönlüdür.
Düşük sıcaklıkta hızla oluşur; artan sıcaklıkla azalır.	Sıcaklık artışı ile artar
Basıncın artması adsorpsiyonu artırır; Basınç azalması desorpsiyona neden olur.	Basınç değişiminin böyle bir etkisi yoktur.
Adsorban yüzeyinde multimoleküler tabakalar oluşturur.	Tek moleküllü katman oluşturur.

1.6.1.3. İyonik adsorpsiyon (Elektrostatik Adsorpsiyon, Değişim Adsorpsiyonu)

Adsorbat ile yüzey arasındaki elektriksel çekim ile olmaktadır. Adsorplayan ile adsorplananın iyonik güçleri önemlidir. Elektrik yükü fazla olan iyonlar ve küçük çaplı iyonlar daha iyi adsorbe olmaktadır.

1.6.2. Adsorpsiyona etki eden faktörler

Adsorpsiyon mekanizmasını etkileyen faktörler;

- Gözenek büyüklüğü ve yüzey alanı
- pH
- Adsorban Özellikleri
- Sıcaklık
- Temas süresi' dir (Koçer, 2013).

1.6.2.1. Yüzey alanı

Adsorpsiyon derecesi yüzey alanıyla orantılıdır. Bu nedenle, katı daha fazla bölünmüş ve daha gözenekli ise, katı adsorbannın birim ağırlığı başına elde edilen adsorpsiyon miktarı daha fazladır (Şahinoğlu, 2013).

Adsorbanın yüzey alanı; kimyasal bir reaksiyonda yüzey alanı büyüklüğünün reaksiyonu olumlu yönde artmaktadır. Burada adsorbanın yüzey alanının büyük olması demek, onun adsorbat ile temasının daha fazla olması demektir. Dolayısıyla alan büyüdükçe adsorpsiyon da artmaktadır (Kayacan, 2007; Etc, 2008).

1.6.2.2. Adsorban özellikleri

Adsorbanın gözenek büyüklüklerinin artması, adsorbat moleküllerinin bu gözeneklere tutunabilme şanslarının artması yani adsorpsiyonun artması anlamına gelmektedir. Adsorbatın molekül büyüklüğü; eğer adsorpsiyon oranı parça içine difüzyon aşaması ile kontrol ediliyorsa ve adsorplanacak maddenin molekül kütlesi küçükse reaksiyon genellikle daha hızlı olmaktadır. Molekül büyüklüğü fazla olan adsorbatın gözeneklere adsorpsiyonu zordur. Dolayısıyla molekül büyüklüğünün azalması demek adsorpsiyonun artması demektir (Kayacan, 2007; Etc, 2008).

1.6.2.3. Sıcaklık

Adsorpsiyon işleminde sıcaklık çok önemli bir kriter olup, adsorpsiyonun tipini de karakterize etmektedir. Adsorpsiyon işlemi genelde ekzotermiktir ve azalan sıcaklık ile adsorpsiyon kapasitesi artmaktadır. Genellikle açığa çıkan ısı miktarları fiziksel adsorpsiyonda yoğunlaşma veya kristallenme enerjisi mertebesinde, kimyasal adsorpsiyonda ise kimyasal reaksiyon enerjisi mertebesinde olduğu bilinmektedir (Mustafaoğlu, 2011).

1.6.2.4. pH

Çözelti fazında bulunan adsorbat, katı faz yüzeyinde bulunan gruplar üzerinde tutulur. Genel olarak, maddelerin nötral olduğu pH değerlerinde adsorpsiyon hızı artmaktadır. Bunun nedeni, hidrojen ve hidroksit iyonlarının oldukça güçlü adsorplanma yetenekleridir. Ortamda fazlaca hidrojen ve hidroksit iyonu bulunursa, bu iyonlar adsorbat iyonları ile yüzeye bağlanma yarışına gireceklerdir. Bu da yüzeyin adsorbat molekülleri ile daha az kaplanma riskinin olması demektir bu durum adsorbatın iyonik yapısı ile ilişkilidir. Dolayısıyla adsorpsiyon da nötr duruma göre daha az olacaktır (Kayacan, 2007; Etc, 2008).

1.6.2.5. Temas Süresi

Filiz (2007) tarafından yapılan arařtırmada, adsorban ile temas süresinin çok önemli olduđu ve adsorbanın, etrafını çevreleyen sıvı filmdeki maddeyi hızla adsorplayabildiğinden bahsedilmektedir. Adsorpsiyon işleminde tutunma olduđu ve malzeme ilk başta bu potansiyele sahip olduđu için, başlangıçta adsorpsiyon hızı çok yüksektir; süre ilerledikçe adsorpsiyon hızında bir düşüş ve azalma görülecektir.

1.6.3. Adsorpsiyon izotermi

Adsorpsiyon dengesi, adsorpsiyon izotermi olarak bilinen bağıntılarla ifade edilebilmektedir. Adsorpsiyon izotermi adsorbanın birim kütlesine adsorbe olan kimyasal miktarıyla dengedeki çözelti konsantrasyonu arasındaki ilişkiyi temsil eder. Genel olarak, sabit sıcaklıkta adsorban tarafından adsorplanan madde miktarı ile denge basıncı veya konsantrasyonu arasındaki bağıntıya adsorpsiyon izotermi adı verilmektedir (Sönmez, 2014).

Adsorpsiyon, adsorban yüzeyinde biriken madde konsantrasyonu ve çözültide kalan madde konsantrasyonu arasında bir denge oluşuncaya kadar devam etmektedir. En genel kullanım gören izotermi Langmuir ve Freundlich denklemleridir (Aksu ve ark., 1999; Aksu ve ark., 2001; Wong ve ark., 2004; Ng ve ark., 2003).

1.6.3.1. Freundlich izotermi

Freundlich izoterm modeli adsorpsiyon prosesinin tanımlanmasında bilinen en eski modeldir. Freundlich modelinde adsorpsiyon tek tabakayla sınırlı değildir. Heterojen yüzey ve homojen olmayan adsorpsiyon ısısı temeline dayanan Freundlich adsorpsiyon izotermi doğrusal olmayan eşitliğin formülü (1.1) 'de şu şekildedir;

$$q_e = K_F \cdot C_e^{1/n} \quad (1.1)$$

Bu eşitlikte;

C_e : Adsorpsiyon sonrası çözültide kalan boyar madde konsantrasyonu (mg/L)

q_e : Birim adsorban üzerine adsorplanan madde miktarı (mg/g)

K_F : Adsorbat ile adsorban arasındaki ilişkinin gücünü gösterir $[(\text{mg g}^{-1}) (\text{L/mg}^{-1})^{1/n}]$

n : Adsorpsiyon yoğunluğunun bir ifadesidir. n değeri, heterojenite faktörüdür ve 0-1 aralığında değerler almaktadır. Ayrıca $1/n$ değerlerinin 1-10 arasında olması iyi bir adsorpsiyon olduğunun bir göstergesidir.

Böylece, $\ln (q_e)$ 'e karşı $\ln C_e$ grafiğe çizildiğinde, bir doğru elde ediliyorsa adsorpsiyon Freundlich izotermine uyuyor demektir. Burada n ve K_F sabitleri doğrunun eğimi ve eksenin kesim noktalarından belirlenmektedir.

1.6.3.2. Langmuir izotermi

Maksimum doyma noktasında, yüzey tek tabaka ile kaplanmakta ve yüzeye adsorbe olmuş adsorbat miktarı sabit kalmaktadır. Langmuir izoterminde adsorpsiyon enerjisi uniformdur. Adsorpsiyon hızı adsorbat konsantrasyonu ve yüzey üzerinde bulunan boş adsorpsiyon alanları ile doğru orantılıdır.

Aşağıdaki (1.2) 'de birim adsorban üzerinde adsorplanan madde miktarı hesaplama formülü verilmiştir.

$$q_e = q_L \cdot K_L \cdot C_e / (1 + K_L \cdot C_e) \quad (1.2)$$

C_e : Adsorpsiyon sonrasında çözültide kalan maddenin konsantrasyonu (mg/L veya mol/mg)

q_e : Birim adsorban üzerinde adsorplanan madde miktarı (mg g^{-1})

q_L : Adsorplayıcının birim kütleinde adsorplanan madde miktarı (mg g^{-1})

K_L : Adsorpsiyon net entalpisi ile ilgili sabit (L mg^{-1})

Bazı durumlarda adsorpsiyonun elverişliliğini bulmak için boyutsuz R_L sabiti hesaplanır.

$$R_L = (1 / (1 + b C_0)) \quad (1.3)$$

Burada b Langmuir sabiti, C_0 başlangıç konsantrasyonunu ifade etmektedir. Eğer R_L 0-1 arasında çıkarsa bu durum adsorpsiyonun elverişliliğine işaret eder.

Adsorpsiyonun elverişliliğini bulmak için Webber ve Chakkravorti tarafından tanımlanan boyutsuz ayırma R_L sabiti aşağıdaki denklemden hesaplanır ve bu sabitin 0 ile 1 arasında değerler alması adsorpsiyona uygunluk durumunun sağlandığına gösterir (Namasiyawam ve Kavitha, 2002).

Çizelge 1.5 R_L degerleri ile izoterm tipi arasındaki ilişki (Hameed ve Rahman, 2008)

R_L Degerleri	İzoterm Tipi
$R_L > 1$	Elverişli olmayan
$R_L = 1$	Lineer
$0 < R_L < 1$	Elverişli
$R_L = 0$	Tersinmez

1.6.3.3. Tempkin izotermi

Bu izotermde, adsorbe olan maddeler arasındaki etkileşimler göz önüne alınmaktadır. Çözelti içindeki tüm moleküllerin adsorpsiyon entalpisi dikkate alınarak geliştirilmiştir. Tempkin izotermi ifade eden eşitlik aşağıda gösterilmiştir. İzotermin varsayımında adsorplanan moleküller arasındaki etkileşimleri formül (1.4) 'te şu şekildedir;

$$q_e = B \ln A_T + B \ln C_e \quad (1.4)$$

q_e: Birim adsorban üzerinde adsorplanan madde miktarı (mg/g)

B: Tempkin izoterm sabiti

A_T: Denge bağlanma sabiti (L/g)

C_e: NFE çözeltisinin denge konsantrasyonu (mg/L veya mol/mg)

B ve A_T değerleri sırasıyla q_e ye karşı ln C_e nin çizilen lineer grafiğin eğim ve kesim noktasından hesaplanmaktadır.

1.6.3.4. Harkins – Jura izotermi

Harkins - Jura izotermi, çok tabakalı adsorpsiyonu, heterojen gözenek dağılımının varlığına bağlı olarak açıklar ve formülü (1.5) şöyle ifade edilir:

$$1/q_e^2 = B/A - 1/A \log C_e \quad (1.5)$$

Log C_e değerleri, 1/q_e² değerlerine karşılık grafiğe geçirildiğinde, eğim ve kayma değerinden A ve B Harkins - Jura sabitleri elde edilir. B sabitinin büyüklüğü, adsorpsiyonda fiziksel adsorpsiyonun daha fazla olduğunu göstermektedir.

1.6.3.5. Dubinin-Radushkevich (D-R) İzotermi

Dubinin–Radushkevich modeli Langmuir modelinden daha geneldir. Çünkü homojen bir yüzey veya sabit bir adsorpsiyon potansiyeli varsayımına dayanmaz (Memon, 2007). Bu modele göre adsorpsiyon, adsorbat yüzeyindeki sabit bir hacim ya da adsorpsiyon alanında gerçekleşir (Akhtar, 2007).

$$E = RT \ln (1 + (1/C_e)) \quad (1.6)$$

C_e Denge konsantrasyonunu (mg/L)

E: Polanyi potansiyeli (kJ/mol)

R: Evrensel gaz sabiti (8,314 j)

T: Sıcaklık (K)

D-R izotermi heterojen bir yüzeyde meydana gelen adsorpsiyonun fiziksel ya da kimyasal olup olmadığı hakkında bilgi veren bir modeldir (Tosun, 2009). Yapılacak hesaplamalar sonucu elde edilen E değerinin 8 kJ mol⁻¹ den büyük olması halinde adsorpsiyonun kimyasal olduğu söylenebilmektedir (Koçer, 2013).

1.6.4. Adsorpsiyon kinetiği

Adsorpsiyon olayı, zamana bağlı bir süreçtir. Adsorpsiyon dinamiğinin aydınlatılmasında, çözeltiden adsorpsiyon sisteminde adsorplayıcı ve adsorplanan denge temas süresi mevcuttur ve adsorplayıcı-adsorplanan sistemi ve diğer etkin parametrelere bağlı olarak değişmektedir. Adsorplayıcının adsorplanan ile doyduğu ana dek geçen süre, yani denge temas süresi, adsorpsiyon hızı ile orantılı bir büyüklüktür. Adsorpsiyon mekanizması ve adsorpsiyon özelliklerini açıklamak için adsorpsiyon kinetik modelleri kullanılmaktadır (Sönmez, 2014).

Başlıca kinetik modeller; kimyasal etkileşimleri temel alan birinci ve ikinci mertebe yalancı kinetik model ile Elovich modeli, kütle transferini temel alan tanecikler içerisinde difüzyon ve sıvı film difüzyon modelleridir (Lewinsky, 2007).

1.6.4.1. Pseudo - birinci derece kinetik denklemi

İlk olarak Langergren tarafından türetilmiş olan katı faz adsorpsiyonunun esas alındığı Langergren yalancı birinci derece hız ifadesi formül (1.7) 'de şekilde verilir;

$$q_t = q_e \cdot (1 - e^{-k_1 \cdot t}) \quad (1.7)$$

q_e: Denge meydana geldiği zaman adsorbe edilen madde miktarı (mg/g)

k₁: Langergren adsorpsiyon hız sabiti (dakika⁻¹)

q_t: t zamanında birim adsorban üzerine adsorplanan adsorbat miktarı (mg/g)

t: Zaman (dakika)

Bu eşitliğe göre t-log(q_e-q_t) grafiğinin eğiminden "k₁" hız sabiti elde edilebilir. Kayma noktasından teorik q_e değeri hesaplanır.

1.6.4.2. Pseudo - ikinci derece kinetik denklemi

Ho ve McKay tarafından geliştirilen ikinci derece kinetik hız ifadesi formülü ise formül (1.8) 'de şekilde verilir;

$$t/q_t = 1/ k_2 q_e^2 + t/q_e \quad (1.8)$$

- q_e: Denge meydana geldiği zaman adsorbe edilen madde miktarı (mg g⁻¹)
k₂: Yalancı ikinci dereceden adsorpsiyon hız sabiti (mg g⁻¹ dk⁻¹)
q_t: Herhangi bir zamandaki adsorbe edilmiş olan madde miktarı (mg g⁻¹)
t: Zaman (dakika)

Bu eşitliğe göre t-t/q_t eğrisinin eğiminden “q_e” ve kaymasından “k₂” değeri hesaplanabilmektedir.

1.6.4.3. Partikül İçi Difüzyon Modeli

Partikül içi difüzyon modeli Weber ve Morris tarafından geliştirilmiştir ve aşağıdaki formül (1.9)'de ifade edilmiştir (Weber, 1964).

$$q_t = k_{id} \cdot t^{1/2} + C \quad (1.9)$$

- q_t: t zamanı süresince adsorplanan madde miktarı (mg/g)
k_{id}: Partikül içi difüzyon modeli için hız sabiti (mg g⁻¹ dk^{-1/2})
t^{1/2}: Yarı zaman (dak^{1/2})
C: Partikül içi difüzyon modeli için denge oran sabiti

Weber-Morris modeline göre; adsorpsiyonda gözenek difüzyonu gerçekleşiyorsa, t^{1/2} değerleri q_t değerlerine karşılık grafiğe geçirildiğinde orijinden geçen bir doğru elde edilir ve hız sabiti k_p, q_t'nin t^{1/2} karşı çizilen grafiğinin eğiminden hesaplanır. C ise kesim noktasıdır (Waranusantigul ve ark., 2003).

1.7. Nanoteknoloji ve Nanopartiküller

Nanoteknoloji, malzeme mühendislerinin geliştirdiği 100 nm'den daha küçük yapılarda geliştirdiği bilimdir (Anisa ve ark., 2003). Nanoteknolojik gelişmeler, atık su ve diğer çevresel sorunların giderilmesi için inanılmaz bir potansiyel olduğunu kanıtlamıştır

(Zare ve ark., 2013; Sadegh ve ark., 2014; Gupta ve ark., 2015). Nanoteknoloji, malzeme mühendislerinin geliştirdiği 100 nm'den daha küçük yapılarda geliştirdiği bilimdir (Anisa ve ark., 2003). Nano materyaller, insanların geliştirdiği, nanometreye sahip olan en küçük yapılardır (Chaturvedi ve ark., 2012). Atıksu arıtma tesisleri, endüstriyel atıklar, yüzey ve yeraltı suyu, içme suyunun arıtımı için çevre dostu ve uygun maliyetli ve verimli nano malzemeler geliştirilmiştir (Brumfiel ve ark., 2003; Theron ve ark. , 2008; Gupta ve ark., 2015).

Nanoteknoloji, atık su arıtımı için en gelişmiş proseslerden biri olarak gösterilmektedir.

Nano-materyaller üç ana kategoride sınıflandırılabilir:

- ✓ Nano-Adsorbanlar,
- ✓ Nano-Katalizörler ve Nano-Membranlardır.

Nano-adsorbanlar, kimsayasal olarak aktif olan nano malzemenin yüzünde yüksek adsorpsiyon kapasitesine sahip olan elementlerin atonların kullanılarak üretilmesidir (Kyzas ve ark., 2015). Nano adsorbanların geliştirilmesi için kullanılan malzemeler; aktif karbon, silika, kil malzemeleri ve metal oksitlerdir (El-Saliby ve ark., 2008). Nanomalzemeler ikinci sınıf nano-katalizörlerdir. Atıksu arıtma teknolojilerinin geliştirilmesinde metal oksit ve yarı iletken nanomateryaller önem kazanmıştır. Atıksu arıtma işlemlerinde kullanılan nano malzemelerin üçüncü sınıfı nano-membranları kullanmaktır. Bu teknolojide, atık suya uygulanan basınç odaklı arıtma, su kalitesinin artırılması için idealdir (Rao, 2014). Çeşitli membran filtrasyon türleri arasında (Lau ve Ismail, 2009; Ouyang ve ark., 2013; Blanco ve ark., 2012) nano-filtrasyon (NF), küçük gözenek boyutlarından dolayı endüstrilerde atık suyun arıtımı için uygulanmaktadır. Düşük maliyet, yüksek verim ve kullanım kolaylığı sağlamaktadır (Petrinic ve ark., 2007; Hilal ve ark., 2004; Babursah ve ark. 2006, Rashidi ve ark., 2015).

1.7.1. Nano-adsorbentler

Son yıllarda yapılan çalışmalarda adsorbent potansiyelleri için nano-parçacık malzemeleri incelenmiştir. Nanoparçacıkların daha küçük boyutları, metal yüzeylerinin adsorpsiyonu için nano parçacıkların kimyasal etkinliğini ve adsorpsiyon kapasitesini arttıran yüzey alanını arttırmaktadır (Kalfa ve ark., 2009; Gubin ve ark., 2005). Adsorpsiyon işlemi, adsorpsiyon katsayısı K_d 'ye ve kirleticinin denge koşulları altındaki sınıflandırılmasına dayanmaktadır (Hu ve ark., 2010; Mehrizad ve ark., 2011). Sulu ortamlarda, adsorpsiyon sürecini etkileyen faktörler; yüzey alanının büyüklüğü,

adsorpsiyon aktivitesi, kimyasal aktivite, yüzeydeki atomların yerleri, iç difüzyon direncinin olmaması ve yüksek yüzey bağlama enerjisidir (Khajeh ve ark., 2013). Sulu ortamda adsorpsiyon sürecini etkileyen faktörler yüksek yüzey alanı, adsorpsiyon aktivitesi, kimyasal aktivite, yüzeydeki atomların yeri, iç difüzyon direncinin olmaması ve yüksek yüzey bağlayıcı enerjidir (Khajeh ve ark., 2013). Adsorban olarak kullanılan nanopartiküller, toksik olmayan, yüksek adsorpsiyon kapasiteli, kirleticileri adsorbe edilen yüzeyden kolayca uzaklaştırılabilen özelliğine sahip olmalıdır (Cloete, 2010).

1.7.2. Demir bazlı nano parçacıklar

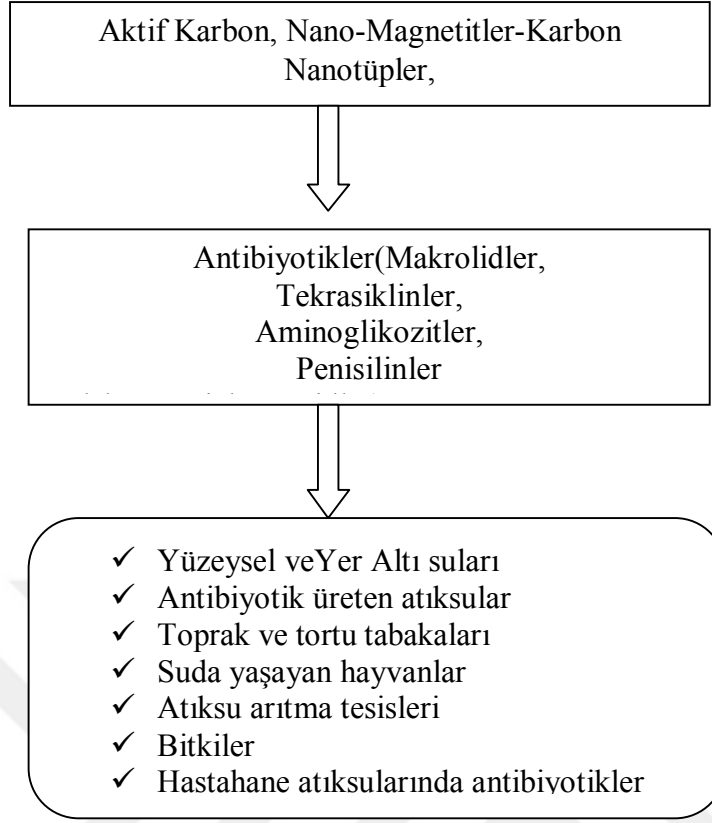
Demir nano parçacıklar değişik kimyasal bileşenlerden oluşmaktadır. Fe_2O_3 nanoparçacıklarında adsorpsiyonunu etkileyen faktörler; pH, sıcaklık, adsorban dozu ve inkübasyon süresine bağlıdır (Gupta ve ark., 2015).

1.7.3. Manyetit (Fe_3O_4)

Manyetit nanoparçacıkları (Fe_3O_4), fiziksel ve potansiyel özelliklerine göre biyomedikal, biyoteknoloji, malzeme bilimi, mühendislik ve çevre biliminde uygulanmaktadır. Yüksek doygunluk manyetizasyonlu, toksik olmayan ve biyo-uyumlu manyetit parçacıklar en çok çalışılan materyallerdir (Khajeh ve ark., 2010).

Manyetit nano partiküller (Fe_3O_4) adsorpsiyon süreçlerinde, adsorbentin yüzey alanını arttırmak için bir yüzey kaplayıcı olarak kullanılabilir. Manyetit ile kaplanmış bu nano adsorbentler, yüksek derece adsorpsiyon kapasitesine sahip olması ve artan yüzey alanlarından dolayı son yıllarda önem kazanmıştır. Bu nedenle, Fe_3O_4 nanopartiküller; dinamik sızdırmazlık, biyosensörler manyetik rezonansa MR görüntüleme (MR), terapötik hipertermide lokalizatör ve yeni manyetik-biyomedikal uygulamalarda kullanılmaktadır (Wei ve ark., 2011).

Fe_3O_4 'ün, farmasötik atıkların gideriminde kullanılarak biyoteknolojik, yenilikçi bir kavram oluşturmaktadır.



Şekil 1.6. Antibiyotik Kaynakları ve Kullanılan Nano-magnetitler

2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR

Rivera-Utrilla ve ark.(2009), su ve atıksu arıtmada aktif karbonla antibiyotiklerin giderimi üzerine bazı çalışmaları araştırmışlardır. Nehir sularında, 10 mg/L ve 20 mg/L toz aktif karbon dozlarıyla bazı antibiyotiklerin konsantrasyonlarının 4 saat temas süresinden sonra sırasıyla %49 ve %99 oranında azaldığı bildirilmiştir.

Kerkez ve ark. (2016), antibiyotik Amoksisilin (AA), manyetik olarak modifiye edilmiş grafen nanoplatelet kullanılarak sulu çözeltiden giderim mekanizmalarını araştırmışlardır. Antibiyotiklerin amoksisilin giderim verimi başlangıç konsantrasyonu adsorban miktarı, temas süresi, başlangıç pH, sıcaklık ve gibi parametrelerle değişebilmektedir. pH 5.'te ve 9,6 mg/L adsorbent kullanılarak, AA'nin çoğunun 90 dakika içinde uzaklaştırıldığını göstermiştir.

Weng ve ark. (2017), kil katkılı yüksüz nano demir kullanılarak amoksisilin degradasyonu araştırılmış ve çalışmada, AMX çözeltilisinin B-nZVI ile giderilebildiğini ve AMX'in reaksiyon hızının, başlangıç çözeltisi pH değerleri, başlangıçtaki B-nZVI konsantrasyonu, AMX'in başlangıç konsantrasyonu ve reaksiyon sıcaklığı gibi bir dizi faktörden etkilendiği gözlemlenmiştir. AMX bozunmasını, yüksek performanslı sıvı kromatografi-kütle spektrometrisi (HPLC-MS) kullanılarak analiz yapılmıştır. Bu çalışma, B-nZVI kullanarak b-laktam antibiyotiğin bozulmasına ve B-nZVI'nin stabilitesinin geliştirilmesi ve amoksisilin, ampisilin ve penisilin gibi antibiyotiklerin giderimi için yeni bir bakış açısı getirmektedir. Antibiyotiklerin sudan giderilmesinde; Amoksisilin ve ampisilin mikro ve nano ölçekli demirle giderimi araştırılmıştır (Antoine Ghauch ve ark., 2009). Antibiyotiklerin giderimi 3 farklı mekanizmayla sağlanmıştır. (1) Redüksiyon , (2) AMX ve AMP 'nin adsorpsiyonu, (3) AMX ve AMP 'nin demir hidroksitlerin birlikte çöktürülmesidir. ZVI, b-laktam ailesinin antibiyotiklerinin başarılı bir şekilde ortadan kaldırıldığını göstermiştir. AMP ve AMX, redüksiyon mekanizması ile tamamen giderilmiştir, ardından ZVI ile 3 saat temas sonrası hidroliz sonucunda giderim deneylerinde, AMP'nin ZVI'ya AMX'ten daha dirençli olduğunu göstermiştir.

Weng ve ark.(2018), bentonit destekli nano ölçekli Fe/Ni (B-Fe/Ni) amoksisilin, ampisilin ve penisilininin eşzamanlı giderilmesi değerlendirilmiştir. Çalışmada karışık antibiyotik içeren çözeltiden AMX'in %94,6' sı, AMP'nin %80,6'sı ve PEN'in %53,7'si; bu antibiyotikleri tek tek içeren çözeltiden ise AMX'in %97,5' sı, AMP'nin %85,1'i ve PEN'in %74,5'i giderilmiştir. Karışık antibiyotik içeren çözeltide giderim veriminin azalması, antibiyotikler arasında demiroksitin aktif bölgelerine adsorpsiyon için rekabete

bağlanmıştır. Antibiyotiklerin gideriminde nanopartiküller ortanda iken adsorpsiyon ve degradasyonun eş zamanlı olarak gerçekleştiği vurgulanmıştır. Son olarak, B-Fe/Ni, farmasötik atık sudan antibiyotiklerin konsantrasyonunu gidermek için kullanılmış ve B-Fe/Ni'nin antibiyotik içeren atıksu arıtımı için umut veren bir materyal olduğu gösterilmiştir.

Bu çalışmada, amoksisilin adsorpsiyonunun, uygun hız sabitlerine sahip ikinci mertebeden kinetik modele uygun olduğunu göstermiştir (25°C'de 0,0187 g/mg dk). Langmuir izoterm en yüksek adsorpsiyon kapasitesini sağlamıştır (25°C'de 26,18 mg/g). Ayrıca, Taramalı elektron mikroskopu (SEM), Spesifik Yüzey Alanı (SSA), X-ışını toz difraksiyonu (XRD) ve Fourier Transform Infrared (FTIR) spektrometresi ile karakterize edilmiştir. Bu karakterizasyonlarla, morfolojik özellikleri ve adsorpsiyon sürecinin ne kadar iyi olacağı kanıtlanmıştır.

Antibiyotik çeşitleri üzerine yapılan adsorpsiyon çalışmalarıyla diğer giderim metodları Çizelge 2.1'de verilmiştir.

Çizelge 2.1. Antibiyotik Çeşitleri Üzerine Yapılan Adsorpsiyon Çalışmaları

Kullanılan Materyal	Arıtma	Yüzey Alanı	Antibiyotik Çeşitleri	pH	Referans
MnFe ₂ O ₄ /aktif karbon manyetik kompozitler	Manganez klorür ve demir klorür çözeltisine aktif karbon eklenmiştir.	553	Tetrasiklin	4,35	(Li ve ark., 2013)
Fe ₂ O ₃ /CeO ₂ ⁻¹	Fe (NO ₃) ₂ / Ce (NO ₃) ₃ oranında çözelti hazırlayıp NaOH damla damla eklenmiş ve yıkanmıştır. 60° C'de azot ortamına kurutulmaya bırakılmıştır.	1536.3	Sulfamethoksazol	5,5	(Akhtar ve ark., 2011)
Granül aktif karbon	Fosforik asitle kimyasal aktivasyon işlemi kullanarak hazırlanmıştır.	1237	Siprofloksasin	5	(Carabineiro ve ark., 2012)
Manyetik bir CNTs-C karbon nanotüplere hazırlanmıştır.	Ferrosen ve tiofen ile çözülmüş etanol çözeltisi, ilave edilip numuneler asetik asit çözeltisi içinde kitosan ile karıştırılmıştır. NaHSO ₃ , formaldehit eklenip NaOH çözeltiye ilave edilip, ısıtılmış ve yıkanmıştır.	6,8	Tetrasiklin	6	(Ma ve ark., 2015b)
Grafen oksitli manyetik parçacıklar	İlk olarak, amin işlevli manyetik parçacıklar (NH ₂ -MPs) sentezlenmiştir. Karışım nitrojen atmosferi altında 2 saat 70 °C'de deneysel çalışma yapılmıştır.		Oksitetrasiklin Tetrasiklin Chlortetracycline doksisisiklin		(Lin ve ark., 2013)
Grafen oksit / manyetit kompozitler (RGO-Fe ₃ O ₄)	Hidrotermal yöntemle üretilmiştir.		Siprofloksasin norfloksasin	6,2	(Tang ve ark., 2013)

3. MATERYAL VE METOT

3.1. Materyal

Kullanılan ilaç Amoksisilin olup Abdi İbrahim İlaç Sanayi'nden temin edilmiştir. İlaç çözeltileri, saf su kullanılarak hazırlanan stok ilaç çözeltilerinin seyreltilmesiyle hazırlanmıştır. Çalışmada kullanılan Amoksisilin (AMX) kimyasalından 1000 mg/L derişimde stok çözelti hazırlanmış ve istenilen derişimlerde AMX çözeltileri stok çözeltilerin seyreltilmesi ile elde edilmiştir. AMX stok çözeltisi herhangi bir bozunmaya karşı sık aralıklarla hazırlanmış ve karanlık bir ortamda saklanmıştır.

3.1.1. Nano-kompozit madde (Pektin-Fe₃O₄)

Çalışmamızda manyetit nano-kompozit sentezinde gerekli olan kompozit maddeler için pektin kullanılmıştır. Turunçgil kabuğundan pektin (Galakturonik asit \geq %74 - Sigma-Aldrich, CAS 900-69-5), elde edilmiştir. Kimyasal yollarla sentezlenmiştir

3.1.2. Diğer kimyasallar

NH₄OH, FeCl₃.6H₂O ve FeCl₂.4H₂O ise Merck firmasından temin edilmiştir. pH ayarlamaları için 0.1M HCl ve NaOH kullanılmıştır.



Şekil 3.1. Pektin-Fe₃O₄ sentezinde kullanılan kimyasallar

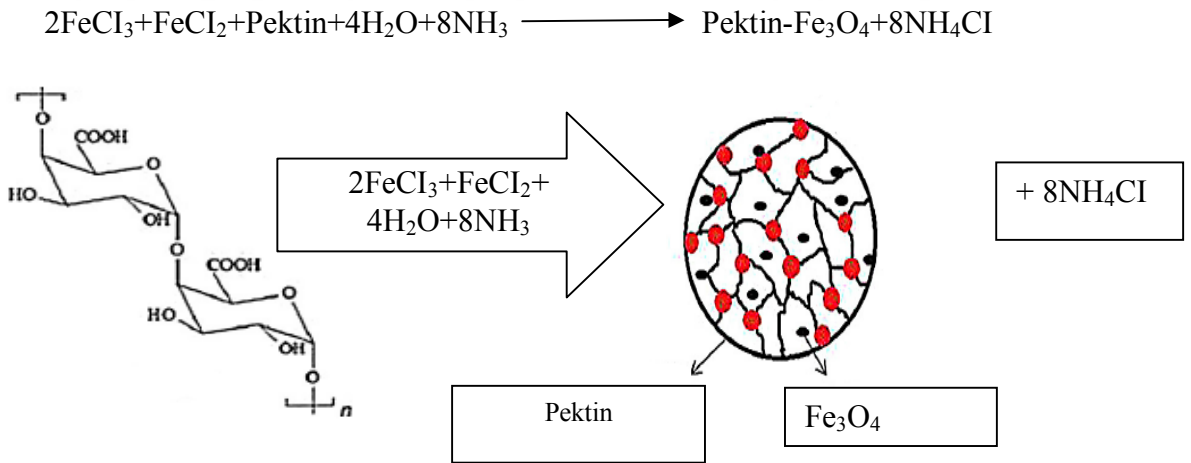
Çalışmada kullanılan ilaç saf suda çözülmüştür Amoksisilin etken maddesinden 1 g alınarak saf su ile 1000 mL'ye tamamlanarak 1 g/L stok standart çözeltiler hazırlanmıştır.

3.1.4. Pektin-Fe₃O₄ sentezi

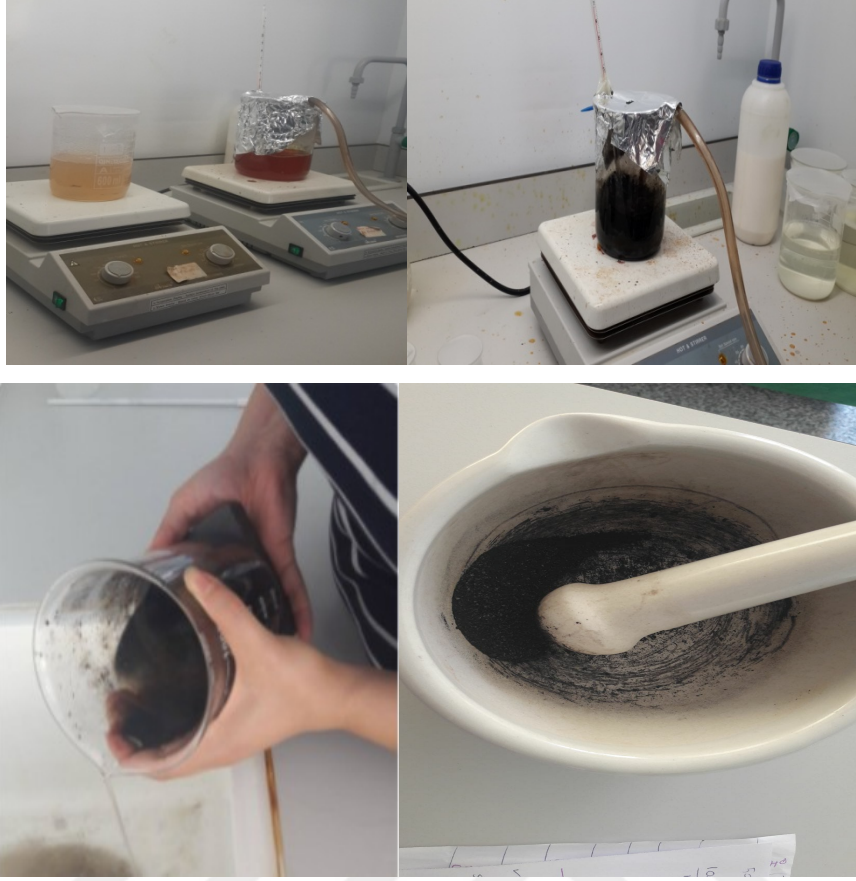
Pektin, biyomedikalde oldukça dikkat çeken doğal olarak oluşan materyaldir. Pektinin mikro ve/veya nanopartiküllerin geliştirilmesindeki en büyük avantajı, biyo-

bozunabilirlik, kontrol edilebilir biyolojik aktivite ve polisakkaritin belirli bir şekilde modülasyonuna izin veren esnek zincirler gibi mknatis özelliklerine dayanmaktadır. Bu bağlamda, pektin farmasötik formülasyonlarda kullanım için uygun bir malzemedir (Silva ve ark., 2014). Turunçgil kabuğundan pektin (Galakturonik asit \geq %74,0 - Sigma – Aldrich, CAS 900-69-5), elde edilmiştir. Kimyasal yollarla sentezlenmiştir 1 g pektin 100 mL ultra saf suda oda sıcaklığında manyetik karıştırıcıda 24 saat boyunca karıştırılmıştır. Demir kaynakları olarak Merck firmasından temin edilen 6,1278 g $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ve 3,0121g $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 100 mL ultra saf su içerisinde çözündürülmüştür.

Termometre aracılığıyla ölçülen sıcaklık beher içerisinde 85°C kadar ısıtılmıştır. 10 mL %25 saflıkta amonyum hidroksit çözeltisi ve hazırlanan pektin çözeltisi ilave edilerek karışıma bırakılmıştır. Karışım 85°C 'ye kadar 30 dakika boyunca manyetik karıştırıcıda karıştırılmış ve oda sıcaklığında soğumaya bırakılmıştır. Oluşan pektin nano-magnetit çözelti neodyum mıknatısları üzerine bırakılıp pH 7 olana kadar ultra saf su ile yıkama işlemi devam etmiştir. Ardından etüvde 50°C kurutulup desikatörde oda sıcaklığına gelinceye kadar muhafaza edilmiştir. Hazırlanan adsorbent içerisinde azot geçirilmiş pleksi şişede saklanmıştır. (Şekil 3.2). Pektin nanokompozit sentezi denklemi aşağıda verilmiştir.



Şekil 3.2. Pektin- Fe_3O_4 Şematik Sentezi (Silva, 2014)



Şekil.3.3. Pektin-Fe₃O₄ nanopartiküllerinin sentezleme aşamaları

Manyetik özellik kazanmış pektin nanokompozitleri Şekil 3.3 ve Şekil 3.4' de gösterilmiştir.



Şekil.3.4. .Manyetik özellik kazanmış Pektin-Fe₃O₄ nanopartikülü

3.2. Kullanılan Cihazlar

Azot Tüpü: %99,9 saflıkta azot gazı Pektin-Fe₃O₄ sentezi sırasında kullanıldı.

Neodyum Mıknatısı: Pektin-Fe₃O₄ partikülün sentez işleminden sonra sudan ayrılması için kullanıldı.

Desikatör: Hazırlanan Pektin-Fe₃O₄ saklanması için kullanıldı.

Termometre: Adsorbentlerin sentezinde sıcaklık ölçümleri için kullanıldı.

Manyetik Karıştırıcı: Pektin-Fe₃O₄ sentezi sırasında homojen karışım elde edilmesi için kullanıldı.

SEM: Adsorbentin karakterizasyonunda kullanıldı.

FTIR: Adsorbentin karakterizasyonunda kullanıldı.



Şekil 3.5. Isıtmalı manyetik karıştırıcı

pH Metre: pH değerleri Hanna marka HI 2211 pH/ORP meter model masa üstü pH metre ile ölçülmüştür.



Şekil 3.6. pH Metre

Hassas Terazî: Kern Abj 220-4NM marka model hassas terazî kullanılmıştır.



Şekil 3.7. Hassas Terazi

Desikatör: Hazırlanan Pektin-Fe₃O₄ ' in saklanması için kullanılmıştır.

HPLC: AMX konsantrasyonlarının ölçümü için kullanılmıştır.



Şekil 3.8. HPLC cihazı

SEM: Adsorbentin karakterizasyonunda kullanılmıştır.



Şekil 3.9. SEM cihazı

3.4. Metot

3.4.1. Analitik metotlar

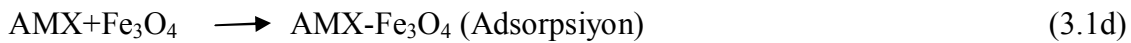
3.4.1.1. Adsorpsiyon Çalışmaları

Adsorpsiyonun üzerine konsantrasyon, pH ve sıcaklığın etkisi temas süresinin bir fonksiyonu olarak ayrı ayrı incelenmiştir. Adsorpsiyonda konsantrasyonun etkisini incelemek için deneyler farklı konsantrasyonlarda 25-125 mg/L'lik amoksisilin çözeltileri kullanılarak yapılmıştır. Belirli aralıklarda numuneler alınarak optimum konsantrasyon belirlenmiştir.

Adsorpsiyon çalışmalarında pH'nın etkisi, pH: 4-10'da çalışılmış olup, pH çalışmaları 25 °C'de ve 100 mg/L konsantrasyonda gerçekleştirilmiştir. Belirli aralıklarla numuneler alınarak optimum pH belirlenmiştir. Denge süresinin (120 dk) belirlenmesinin ardından adsorpsiyonu deneylerinde kullanılmak üzere hazırlanan farklı nano kompozitlerden 0,5-7 g/L çözelti için tartılmıştır. Üretilen gözenekli katıdan eklenerek yeniden çalkalamaya bırakılmıştır. Adsorpsiyon süresi 120 dk olarak sabit tutulmuştur.

Deneyler sıcaklık kontrollü çalkalamalı inkübatör karıştırıcı ile gerçekleştirilmiştir. Daha sonra belirlenen zaman aralıklarında bu karışımlardan 5'er mL numuneler alınıp bunlar 3000 rpm'de 5 dakika santrifüjlenmiştir. Bu numunelerin absorbanslar, HPLC ile ölçülmüş ve veriler kaydedilmiştir.

AMX 'in Fe₃O₄ adsorpsiyonuna ilişkin reaksiyon basamakları aşağıdaki denklemde verilmiştir (Weng ve ark., 2017)



Adsorbanın birim kütlesinde adsorplanan madde miktarı (q_e, mg/g), C₀ ve C_e (mg/L), sırasıyla, başlangıçtaki amoksisilin konsantrasyonu ve adsorpsiyon sonrasında çözeltinin içinde kalan amoksisilin konsantrasyonudur; V (L) çözeltinin hacmi; m (g) adsorban miktarıdır Denklem (3.2) Adsorbanın birim kütlesinde adsorplanan madde miktarı formülü verilmiştir.

$$q_e = (C_0 - C_e) \times V / M \quad (3.2)$$

q_e= Adsorbanın birim kütlesinde adsorplanan madde miktarı (mg/g adsorban),

C_e = Adsorpsiyon sonrası çözeltide kalan maddenin konsantrasyonu (mg/L),

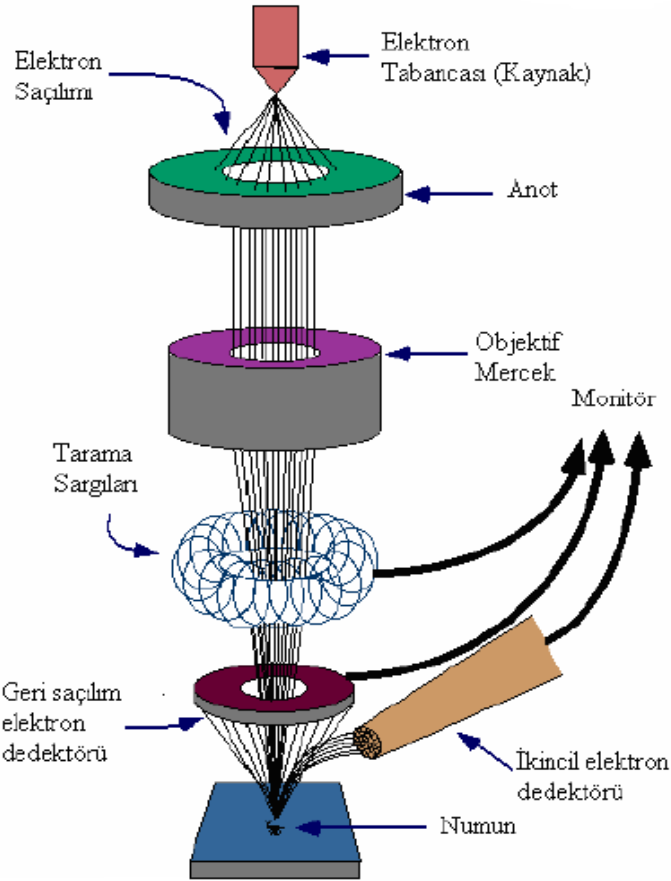
Co= Başlangıçtaki konsantrasyon

Giderimin yüzdesinin hesaplanması için kullanılan aşağıda verilmiştir:

$$\text{Giderim(\%)} = \frac{Co-Ce}{Ce} \times 100 \quad (3.3)$$

3.4.1.2. SEM analizi (Taramalı Elektron Mikroskobu)

Film yüzeyinde 1000, 2000, 5000, 10000, 20000 x büyütme oranlarında yapılan görüntülemeler sonucunda alınan sonuçlar morfolojik ve yapısal özelliklerini değerlendirmede ve ayrıca adsorpsiyon prosesi sonrası yüzey özelliklerindeki değişimleri izlemek amacıyla kullanılmıştır. SEM analizi sonuçları alınıp adsorbent (pektin-Fe₃O₄) morfolojik ve yapısal özellikleri ve tanecik boyutları belirlenmiştir.



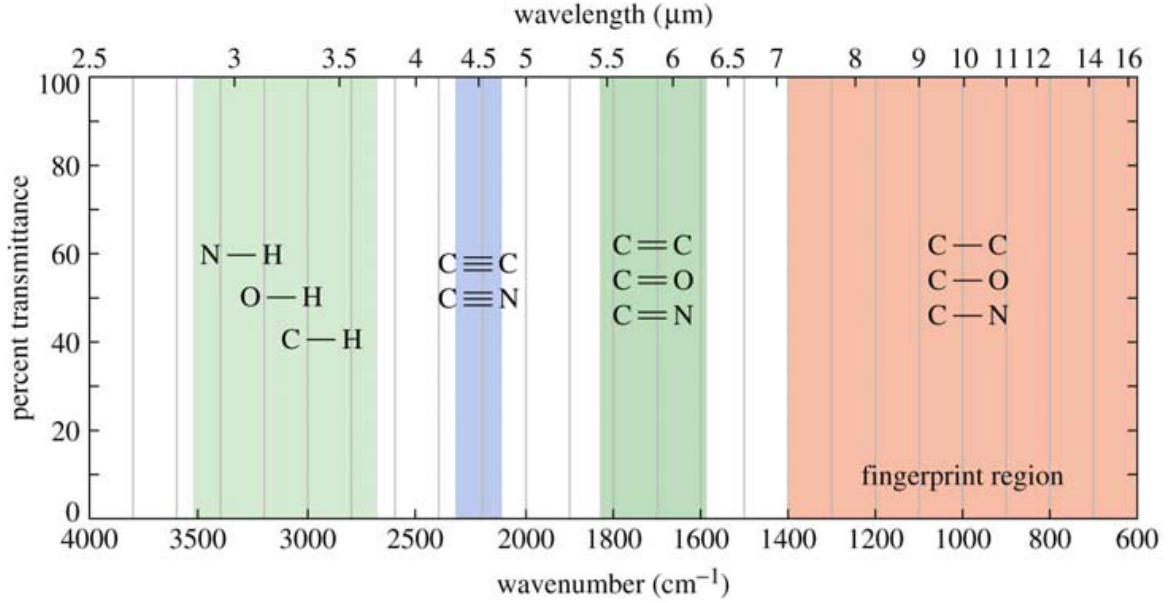
Şekil.3.10. SEM Cihazın Şematik Görünüşü (Özkal, 2017)

3.4.1.3. FTIR analizi (Fourier Dönüştümlü İnfrared Spektrofotometre)

Fourier Dönüştümlü İnfrared Spektrofotometre Analizleri (FTIR) spektroskopisi incelenmek istenen örnek makromolekülleri fonksiyonel gruplarının titreşimlerinden

kaynaklanan yapısal, kompozisyonel ve fonksiyonel bilgilerin elde edilmesini sağlayan bir tekniktir (Öden, 2015).

İnce-film yapısındaki, Ti grupları, OH molekülleri vb. oksidasyon potansiyeli olan bileşenlerin belirlenmesi ve fotokataliz sonrasındaki değişimlerin ortaya konulabilmesi amacıyla FTIR analizleri gerçekleştirilmiştir (Özkal, 2017).



Çizelge 3.1. IR Spektra İlişki Çizelgesi

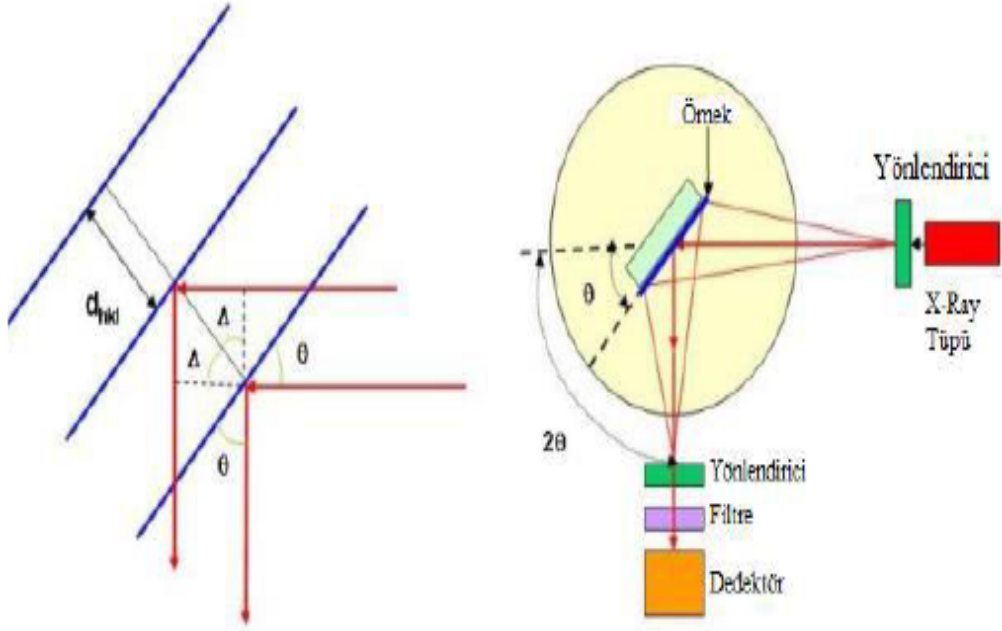
Organik fonksiyonel grupların (C=O, CH₃, C≡C gibi) IR ışını absorbladıkları yaklaşık frekanslar, atomların kütleleri ve aralarındaki bağın sabitiyle bulunur. Bunlara, (moleküldeki herhangi bir fonksiyonel grubun varlığını veya yokluğunu saptamaya olanak veren) "grup frekansları" denir ve gruptaki atomlardan birinin veya her ikisinin birden diğer titreşimlerden etkilenmesiyle değişebilmektedir. Ancak bu tür etkileşimler çoğu kez zayıf olduğundan, bir fonksiyonel grubun absorpsiyon pikinin bulunabileceği bir tek frekans yerine frekans aralığından söz edilmektedir.

(<http://faculty.ksu.edu.sa/Alomar/Documents/IR.ppt>).

3.4.1.4. X-Işını kırınım (XRD) analizi

X ışını veya X ışını difraksiyonu yöntemi isminden de anlaşıldığı gibi X ışınları kullanılarak yapılan bir yüzey muayene yöntemidir. 1912 yılında Max Von Laue kristal yüzeylerindeki atomların dizilişini bu yöntemle gözlemlemiştir. X ışınlarını gönderdiği yüzeylerde kalıcı bir hasara neden olmadığı için tahribatsız muayene yöntemleri grubunda yer almaktadır (Sadık, 2011).

Temel olarak Şekil 3.11’ de görüldüğü gibi belirli bir açıyla malzeme yüzeyine yansıtılan X ışınları malzeme yüzeyinden bir dedektör veya sensör sayesinde izlenerek kırınım desenleri kaydedilir. Bu sistemle malzeme yüzeyinin morfolojik yapısı ve atom dizilişleri gibi özellikler bu kırınım desenleriyle kıyaslanabilmektedir. X ışını kırınım deseni malzemeye göre karakteristik bir değer olduğundan bu desenler ince film yüzeylerinde hangi yarı iletken olduğu hakkında bilgi vermektedir (Adıgüzel, 2014).



Şekil 3.11. XRD Cihazının Şematik Gösterimi (Adıgüzel, 2014)

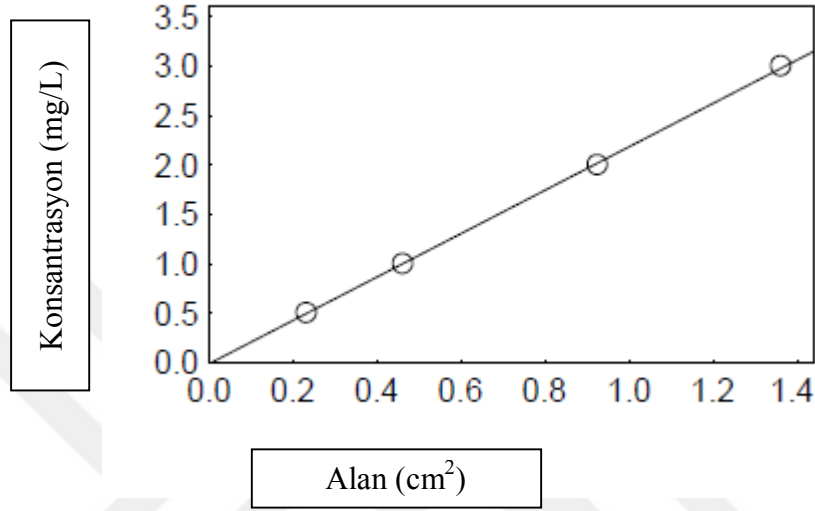
3.4.1.5. HPLC analizi

HPLC, birçok alanda yaygın olarak kullanılmaktadır. Başlıca kullanım amaçları; kimyasal ayırma, saflaştırma, konsantrasyonların tayinidir. Numunelerin adsorbansları ve çözeltide kalan AMX tayini için HPLC kromatografik koşullar Çizelge 3.2’ de verilmiştir. Hareketli faz, sabit faz boyunca ilerleyerek enjekte edilen numuneyi taşımakla görevlidir.

Çizelge 3.2. Amoksisilinin Kromatografik Koşulları (Antoine Ghauch ve ark., 2009)

Kolon Sıcaklığı	30 ⁰ C
Kolon Akış Hızı	0,85mL/dk
Mobil Faz	Metanol/Formik Asit (%0,1, 20/80 v/v)
Dalga Boyu Aralığı	220 nm-400 nm
Dedektör tipi	C 18
Analiz Süresi	9 dk (Her bir numune süresi)

C18 kartuşu ilk olarak metanol ve %0,1'lik formik asit (ultra saf suyla hazırlanmış) ile şartlandırılmış ve saflaştırma işlemine uygun hale getirilmiştir. HPLC yöntemi ile amoksisilin standartları hazırlanarak kalibrasyon grafikleri çizilmiş olup kalibrasyon grafikleri Şekil 3.12'de verilmiştir. Kalibrasyon grafik denklemleri bulunmuştur ve bu denklemler sayesinde antibiyotik kalıntı miktarları hesaplanmıştır.



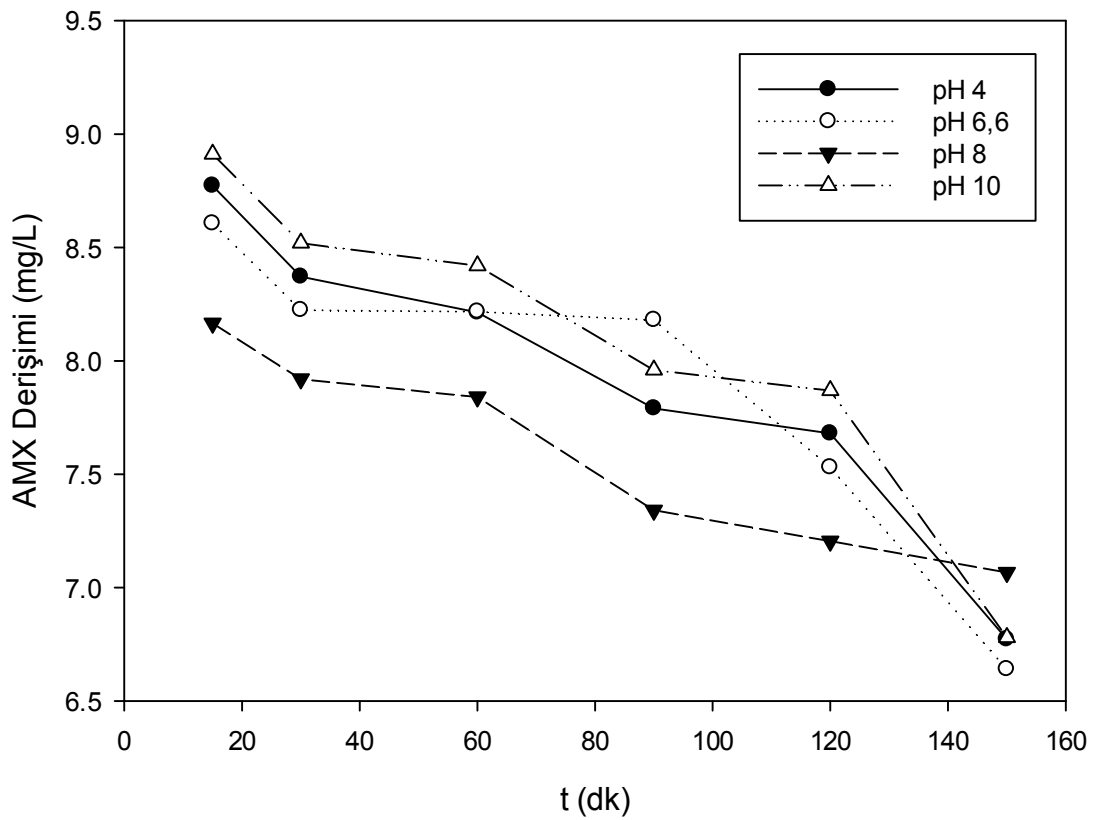
Şekil.3.12. Amoksisilin Kalibrasyon Grafiği

Kalibrasyon, analitik konsantrasyonuyla olan ilişkinin doğru olarak saptanmasıyla amacıyla yapılan bir işlemdir. Farklı konsantrasyonlarda (5, 10, 20, 30 mg/L) amoksisilin çözeltisi hazırlanarak uygun analiz koşulları saptandıktan sonra standart çözelti kullanılarak kalibrasyon eğrisi hazırlanmıştır. Standartlar, çözeltinin konsantrasyonuna yakın değerler olmalıdır. Regrasyon hesabında belirtilen R^2 değeri 1'e yaklaştıkça absorbans ile konsantrasyon arasındaki ilişkisi artar, elde edilen sonucunda doğruluk payı artar. Yani R^2 değeri ne kadar yüksek çıkarsa eşitlik o kadar doğru demektir. Şekil.3.12 'te verilen grafiğe göre $R^2=0.9998206$ olarak bulunmuştur. Amoksisilin kalibrasyon eğrisi verilerin doğruluk payını arttırmıştır.

4. BULGULAR VE TARTIŞMA

4.1.1. AMX gideriminde pH'ın etkisi

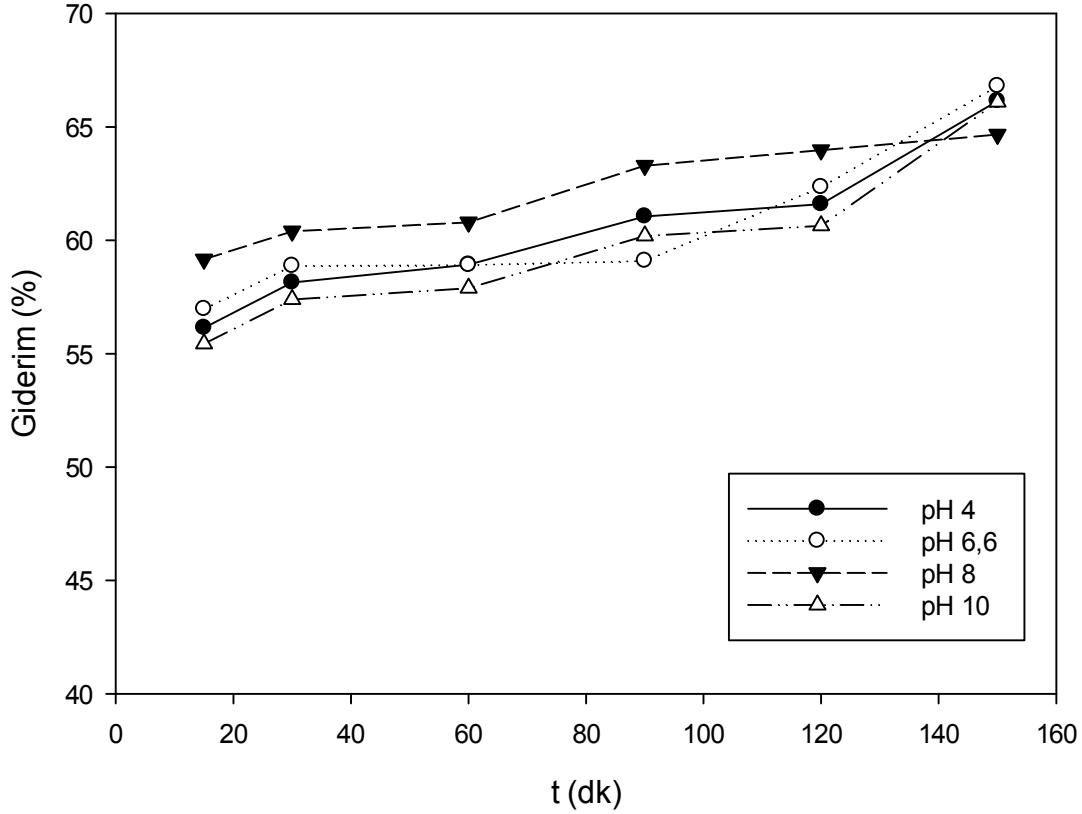
Ortam pH'ı hem adsorban yüzeyini hem de adsorban türünü etkileyen en önemli parametrelerden biridir. Adsorpsiyona pH'ın etkisini araştırmak için diğer değişkenler sabit tutularak 4-10 aralığında değişik pH değerlerinde adsorpsiyon çalışmaları yapılmıştır. 20 ppm amoksisilin konsantrasyonunda, oda sıcaklığında, 5 g/L adsorban ilave edilerek, 120 dk süren adsorpsiyon çalışmaları sonunda elde edilen değerler Şekil 4.1' de verilmiştir.



Şekil 4.1. Pektin-Fe₃O₄ ile AMX Adsorpsiyon Prosesine pH'ın Etkisi
(pH: 4-10, 100 mL, AMX: 20 ppm, T: 25°C)

AMX adsorpsiyonda tüm pH'larda ilk dakikalardan itibaren yüksek bir adsorpsiyon gözlemlenmiş ve maksimum giderim verimi pH 8'de elde edilmiştir. Şekil 4.1'e göre, yüksek pH'da adsorpsiyon veriminin artması, ortama salınan fazlaca OH⁻ iyonlarından dolayı adsorbent yüzeyi daha negatif hale gelerek bu yüzeyde pozitif yüklü AMX'in molekülleri ile arasında çekim kuvveti artması olarak yorumlanabilir. Bu da adsorplanan AMX miktarının artmasına neden olmuştur.

Sentetik olarak hazırlanan amoksisilinin pH'ı 4-10 aralığında farklı değerlerde hazırlanmış ve çalışma sonucunda Şekil 4.2'de giderim verimleri tespit edilmiştir.



Şekil 4.2. AMX'in Zamana Bağlı Giderim Verimi

(pH:4-10, 100 mL, AMX:20 ppm, pektin-Fe₃O₄; 0,5 g/L, T: 25°C)

Zha ve ark. (2013), amoksisilinin atıksudan organobentonit kullanarak giderilmesi çalışmasında, pH'ın adsorpsiyon üzerine etkisini belirlemek için 3-11 aralığında farklı pH değerlerinde çalışılmış ve adsorpsiyon kapasitesinin pH 3-7 aralığında artıp 7-11 aralığında sabit kaldığı gözlemlenmiştir. Bu durum şu şekilde açıklanmıştır: Katyon değişirme mekanizmasına göre, bentonit içindeki düşük değerlikli katyonların, düşük pH'lı çözeltide pozitif yüke sahip olan amoksisilin içindeki protonlanmış fonksiyonel gruplarla yer değiştirme mekanizmasıdır. Bu fenomen, amoksisilinin fonksiyonel gruplarının karboksil (pKa: 2,68), amin (pKa: 7,49) ve fenolik hidroksil (pKa: 9,63) iyonlaşmasından kaynaklanmıştır (Goddard ve ark. 1996).

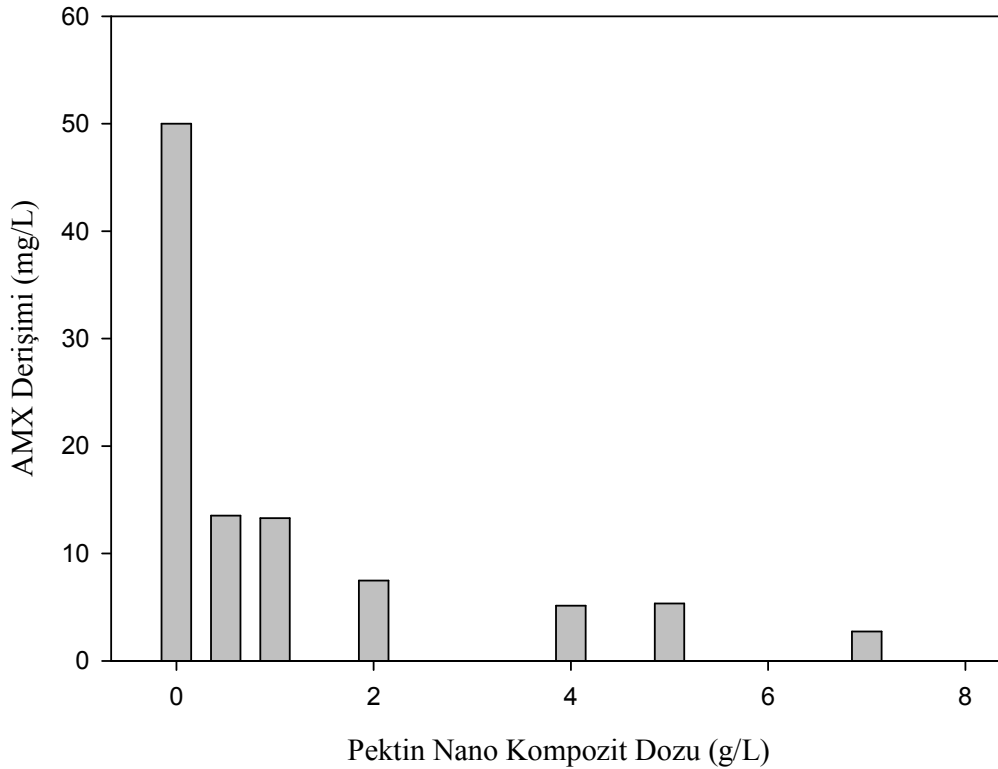
Kuyumcu ve ark. (2016), tarafından yapılan manyetik grafen Nanoplatelets kullanılarak amoksisilinin giderim çalışmasında, pH 5'de en yüksek giderim verimi elde

etmişlerdir. AMX 'in gideriminde pH değeri arttıkça, amoksisilin adsorpsiyon değerinin de azaldığını tespit etmişlerdir.

Weng ve ark. (2017), tarafından bentonit katkılı yüksüz nano-demir (nZVI) kullanılarak yapılan çalışmada pH'ın etkisini gözlemlemişlerdir. Farklı koşulların etkisi (AMX: 20 mg/L, Nano-dozu: 4g/L ve pH: 3-11) incelenmiş ve amoksisilin çözeltisinde pH düştükçe giderim verimi artmış ve maksimum giderim verimi pH:3'te elde edilmiştir. Bunun nedeni, düşük pH'ın yüksüz nano-demirin yüzeyinde korozyona neden olması, atomik ve moleküler hidrojenin bentonit-nanodemir yüzeyinde oluşması (Bokare ve ark., 2008) ve bunun AMX degradasyonu için önemli olduğu (Ghauch ve ark., 2009) şeklinde yorumlanmıştır.

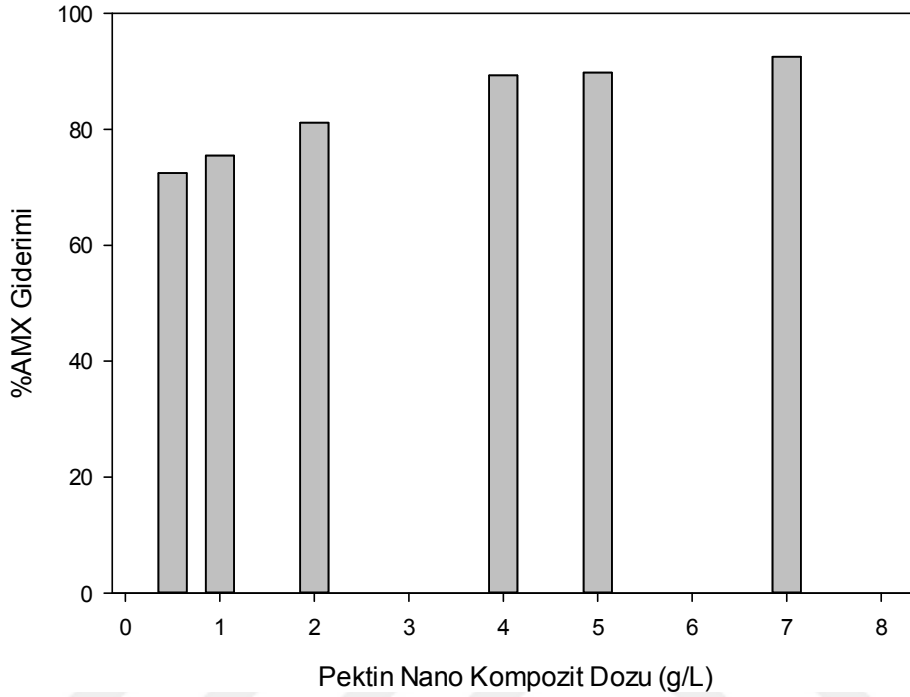
4.1.3. AMX gideriminde nanokompozit dozunun etkisi

Pektin-Fe₃O₄ manyetitleri kullanılarak AMX'nin adsorpsiyonunda nanokompozit dozunun etkisi, 50 ppm'lik başlangıç konsantrasyonu ve pH 8'de ve 25 °C oda sıcaklığında incelenmiştir. AMX'nin farklı nanokompozit dozlarında (0,5-7 g/L) adsorplanan AMX konsantrasyonları üzerine adsorbent dozunun etkisi Şekil 4.3' te gösterilmiştir.



Şekil.4.3. Pektin-Fe₃O₄ ile AMX Adsorpsiyon Prosesine Nanokompozit Dozunun Etkisi (pH: 4-10, 100 mL, AMX: 50 ppm, T: 25°C)

Şekil 4.4’de optimum nanokompozit dozu 5 g/L olarak belirlenmiştir. Şekil 4.4’ de dikkat edilirse adsorbent dozunun artmasıyla adsorbentin gramı başına adsorplanan amoksisilin miktarı artmış ve adsorpsiyon yüzdesi de artmıştır

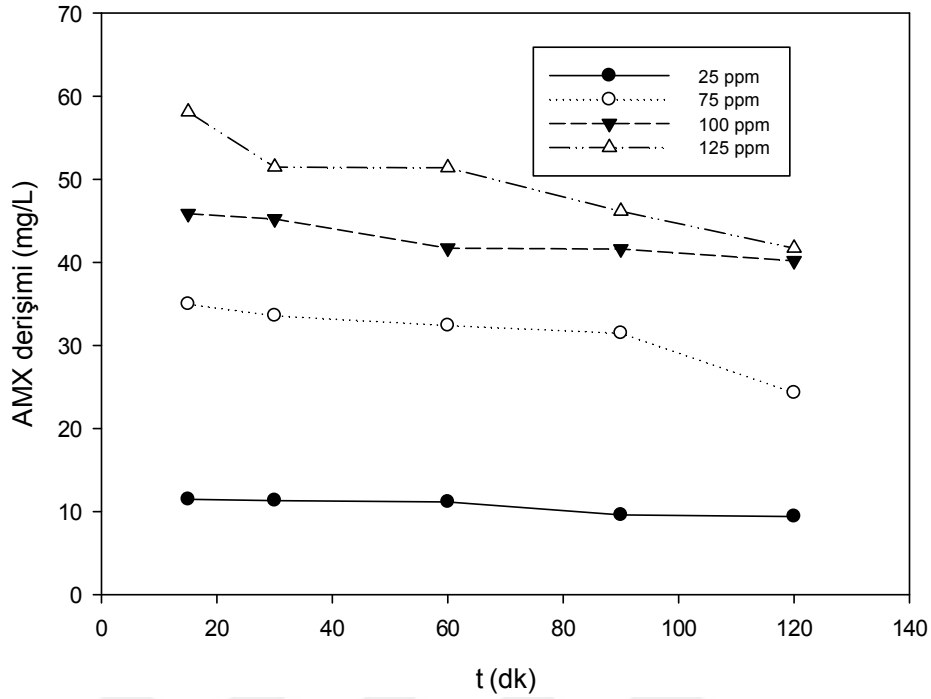


Şekil 4.4. Adsorplanan Amoksisilin Miktarı ve Adsorpsiyon Yüzdesinin Adsorbent Dozuyla Değişimi (pH:8, 100 mL, pektin-Fe₃O₄: 0,5-7 g/L, T: 25°C)

Weng ve ark. (2017), amoksisilinin giderilmesi çalışmasında montmorillonit içeren bentonit kullanmışlardır. Montmorillonit’in kimyasal olarak %62,50 SiO₂, %18,50 Al₂O₃, %1,75 Fe₂O₃, %4,25 MgO, %0,95 CaO ve %2,75 Na₂O içermektedir. Bu çalışmada adsorbent dozunun artışının aktif yüzey alanının artması nedeniyle AMX gideriminde artışa neden olduğu vurgulanmıştır.

4.1.2. AMX gideriminde konsantrasyon etkisi

Pektin-Fe₃O₄ manyetitleri kullanılarak AMX’nin adsorpsiyonunda AMX konsantrasyonunun etkisi, pH=8’de ve 0,5 g/L nanokompozit dozu kullanılarak incelenmiştir. AMX’nin farklı konsantrasyonları için (25-125 mg/L) adsorplanan AMX konsantrasyonların adsorpsiyon çalışmaları sonunda elde edilen değerleri Şekil 4.5’te verilmiştir.



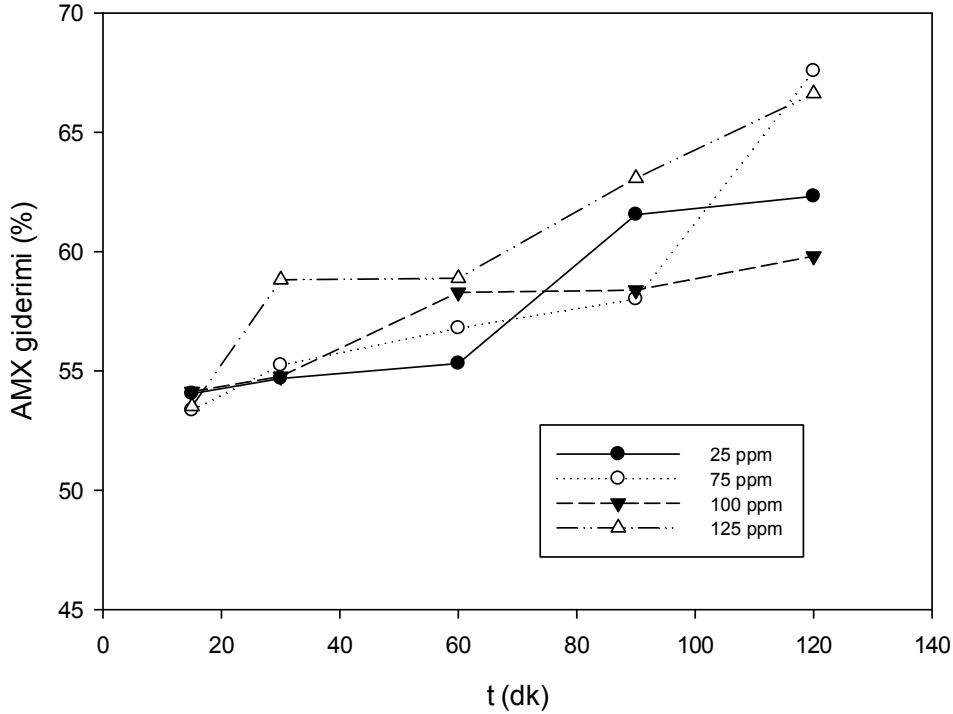
Şekil 4.5. Pektin-Fe₃O₄ ile AMX Adsorpsiyon Prosesine Konsantrasyon Etkisi

(pH:8, 100 mL, AMX: 25-125 ppm, pektin-Fe₃O₄: ;0,5 g/L, T: 25°C)

Şekil 4.6’da görüldüğü gibi AMX konsantrasyonunun zamana bağlı etkisi incelendiğinde, Pektin-Fe₃O₄ ile farklı AMX konsantrasyonları için 125 ppm de en iyi verim elde edilmiş olup zaman arttıkça giderim verimi de artmıştır. 120 dk’da en yüksek giderim verimine ulaşmıştır.

Ghauch ve ark. (2009), sudan amoksisilin ve ampisilin gibi antibiyotiklerin giderilmesinde mikro ölçekli ve nano ölçekli demir parçacıkları (nZVI veya nFe⁰) kullanmıştır. Başlangıç konsantrasyonu sırasıyla $C_{AMX0}=C_{AMP0}=20$ mg/L olarak verilmiştir. Her bir konsantrasyon için nZVI=0.5 g/L yüksüz nano-magnetit parçacıklar ilave edilmiştir. AMX’in 75 dakikalık reaksiyon sonucunda sudan tamamen giderildiği tespit edilmiştir. Antibiyotik giderimi 3 farklı mekanizma ile açıklanmıştır: i) β laktam halkasının hızlı bir şekilde açılması (redüksiyon); ii) AMX ve AMP’nin demir korozyon ürünleri üzerinde adsorpsiyonu, iii) çökelen demirhidroksit matrisinde AMX ve AMP’nin ayrılması. Kinetik çalışmalar göstermiştir ki, oksik koşullar altında ZVI ile temas ettikten sonra AMP ve AMX’in (20 mg/L) 60,3 ve 43,5 dk yarılanma ömründe birinci dereceden kinetik modeli ile bozunmaya uğradığını göstermiştir. Bunun aksine, anoksik koşullar altında AMX ve AMP yaklaşık 11,5 ve 11,2 dk yarılanma ömründe bozunma göstermiştir.

NaCl eklenmesi FeO tüketimini hızlandırırken arıtma sistemlerinde FeO'nun ömrünü kısaltmıştır.



Şekil.4.6. AMX'in Zamana Bağlı Giderim Verimi

(pH:8, 100 mL, AMX: 25-125 ppm, pektin-Fe₃O₄:0,5 g/L, T: 25°C)

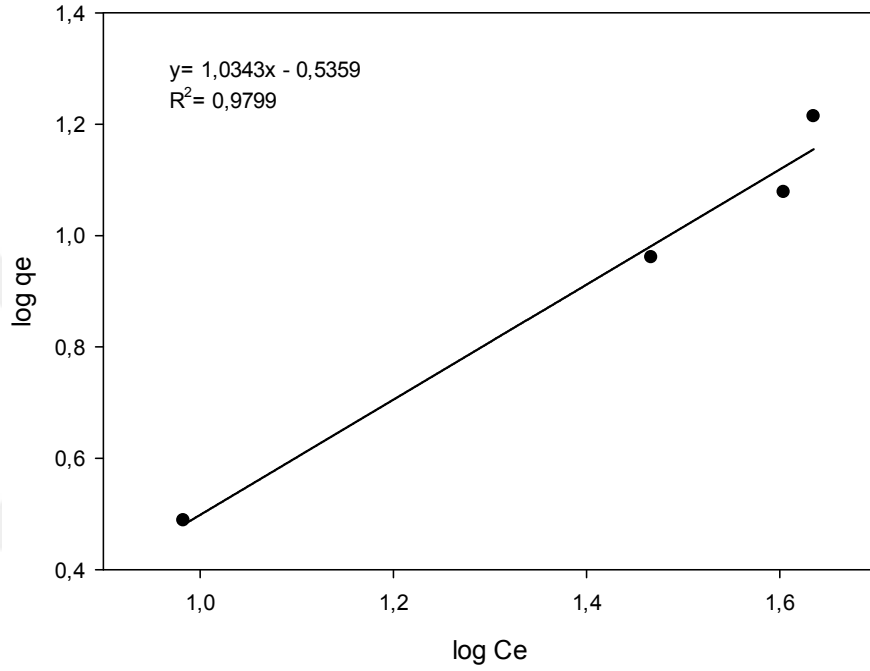
Weng ve ark. (2014), kil katkılı Fe/Ni nanopartiküllerle sulu çözeltilerden amoksisilin giderilmesinde kullanılmıştır. Amoksisilin gideriminde başlangıç konsantrasyonu Co:60 mg/L, B-Fe/Ni dozu: 4 g/L; Fe/Ni dozu 2 g/L; bentonit dozu: 2 mg/L; pH 6,05; anoksik koşullar altında 60 dk'da %94 verim elde etmişlerdir.

4.2. Adsorpsiyon İzotermi

Pektin-Fe₃O₄ magnetit ile amoksisilin adsorpsiyon izotermi Freundlich, Langmuir, Tempkin, D-R ve Harkins-Jura izotermi modellerine göre incelenmiştir. AMX'in adsorpsiyon izoterm incelemeleri farklı başlangıç konsantrasyonlarında (25-125 mg/L) oda sıcaklığında ve pH=8'de yapılmıştır. Elde edilen izotermiler sırasıyla aşağıda gösterilmiş olup izoterm sabitleri Çizelge 4.1'de verilmiştir.

Fe₃O₄ magnetit ile amoksisilin adsorpsiyonunda Şekil 4.7'de Freundlich izotermi için R²=0,9799'lık yüksek bir korelasyon değeri hesaplanmıştır. Bu korelasyon değeri adsorpsiyonun Freundlich izotermine uyduğunu göstermektedir. Eğer n değeri 1'den az ise,

adsorpsiyon kimyasaldır. Tam tersi durumda fizikseldir denebilir (Wu, 2006). $1/n$ değeri, heterojenite faktörüdür ve 0-1 aralığında değerler alır. Freundlich sabitlerinden adsorpsiyon şiddetini ifade eden n değeri ise, $n=0,6$ g/L olarak hesaplanmış olup bu durum adsorpsiyonun kimsayasal olduğunu göstermiştir. Adsorpsiyonun Freundlich izotermine uyması aynı zamanda yüzeyin heterojen özelliğe sahip olabildiğine ve adsorpsiyonu kimyasal olarak da meydana gelebildiğine işaret etmiştir.

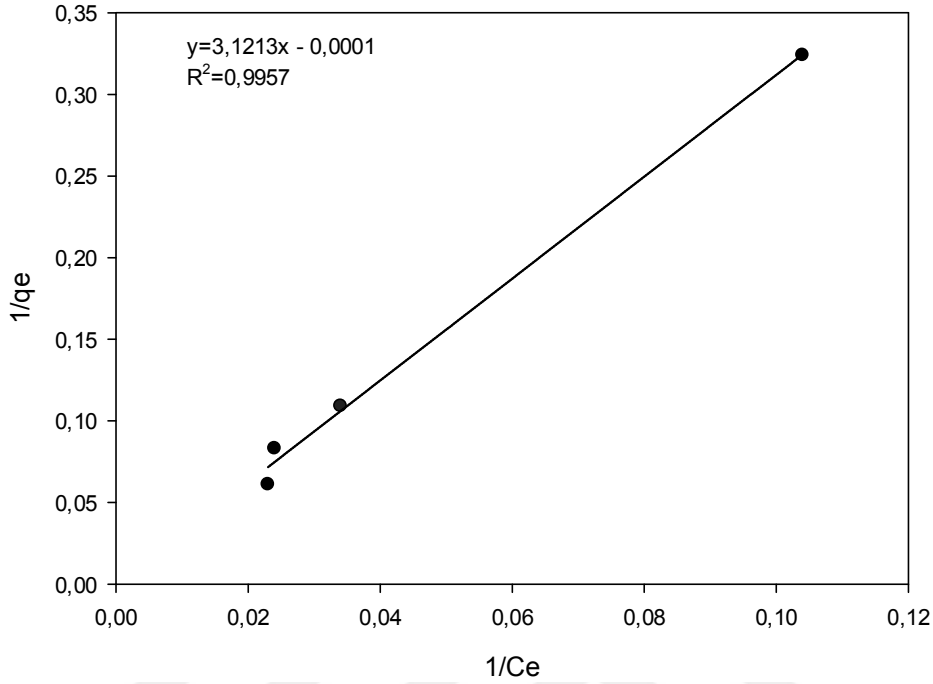


Şekil 4.7. Pektin-Fe₃O₄ AMX Adsorpsiyonunun Freundlich İzoterm Grafiği

Şekil 4.8'de görüldüğü üzere pektin-Fe₃O₄ ile amoksisilin adsorpsiyonunda Langmuir izotermi için $R^2 = 0,9957$ 'lık bir korelasyon değeri elde edilmiştir. Yüksek korelasyon değerinden dolayı adsorpsiyonun en iyi Langmuir izotermine uygunluğu tespit edilmiştir. Langmuir adsorpsiyon izotermine kirletici, adsorban yüzeyinde tek tabaka halinde sıralanır ve tabakanın hareket etmediği varsayılır. Bu tabaka üzerindeki tüm bağlayıcı sitelerin aynı adsorpsiyon enerjisine sahip olduğunu ve adsorban yüzeyine homojen olarak dağıldığını işaret etmektedir (Hameed ve El-Khaiary, 2008).

R_L sabiti aşağıdaki denklemden hesaplanır ve bu sabitin 0 ile 1 arasında değerler alması adsorpsiyona uygunluk durumunun sağlandığına işaret eder (Tasmakıran, 2010). Bu çalışmada, $R_L(\text{mg/g}) = 0,87$ olarak hesaplanmıştır. Langmuir izotermi açısından bakarsak, adsorban seçiminde b değerlerinin yüksek olması makbuldür. Langmuir sabitlerinden b

değeri ise, $b=23,84$ L/mg olarak hesaplanmıştır. Bu durum Fe_3O_4 'ın sulardan AMX'in adsorpsiyon ile gideriminde oldukça elverişli bir adsorbent olduğunu göstermektedir.

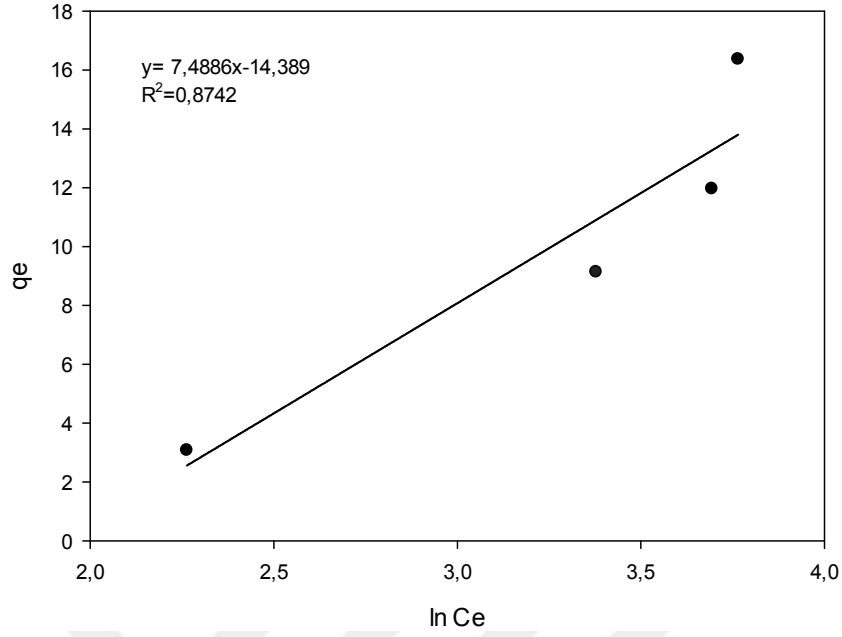


Şekil 4.8. Pektin- Fe_3O_4 AMX Adsorpsiyonunun Langmuir İzoterm Grafiği

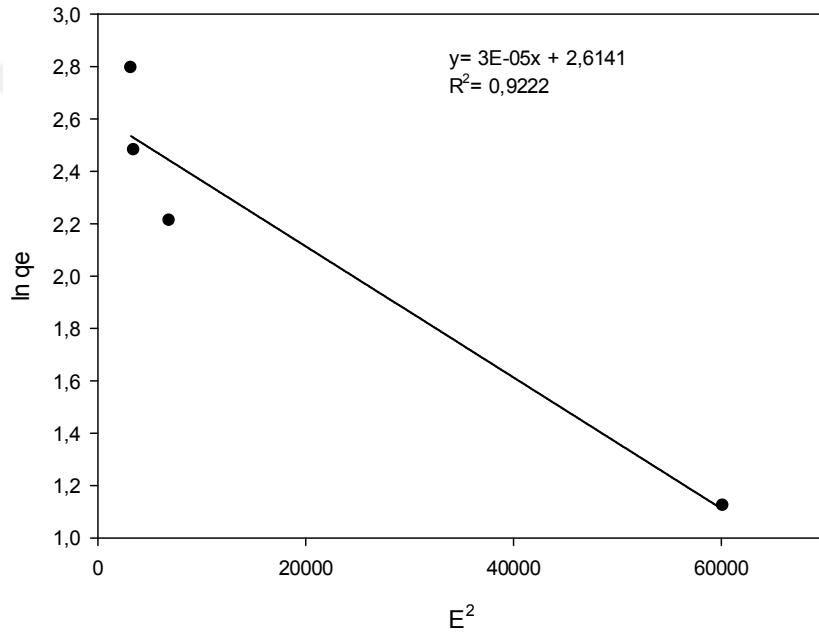
Tempkin geliştirdiği modelde, katmandaki tüm moleküllerin adsorpsiyon ısısının, adsorban-adsorbat etkileşimleri nedeniyle lineer olarak azalacağını ve adsorpsiyon, bağlanma enerjilerinin düzgün dağılımı ile belirlendiğini ifade etmektedirler.

Çalışmamızda elde edilen veriler bu modele göre hesap edilerek elde edilen grafik Şekil 4.9'da verilmiş olup; hesaplanan değerler Çizelge 4.1'de verilmiştir. 25 °C'deki Tempkin izoterminin eğiminden $B=7,886$ ve kesim noktasından $A_T =8,33$ (L/mg) olarak $R^2=0,8742$ hesaplanmıştır. Kolerasyon değeri düşük olduğu için Pektin- Fe_3O_4 'ün AMX'in gideriminde uygun bir izoterm değildir.

Şekil 4.10'da AMX'nin Pektin- Fe_3O_4 üzerine adsorpsiyonunda D-R izotermi için $R^2=0,9222$ 'lik bir korelasyon değeri elde edilmiştir. Adsorpsiyonun karakteristiği hakkında bilgi veren D-R izotermine hesaplanan E (adsorpsiyon enerjisi: kJ/mol) 8 kJ/mol'ün altında bir değer ise fiziksel adsorpsiyon, $E=8-16$ kJ/mol arasında ise iyon değişimi ya da kimyasal adsorpsiyon ve $E>16$ kJ/mol için ise partikül difüzyonu baskındır. Pektin- Fe_3O_4 'in AMX'in ile adsorpsiyonu için Şekil 4.10'da E değeri 0,5878 kJ/mol olarak hesaplanmıştır. Bu değerler, adsorpsiyonda fiziksel adsorpsiyon olduğunu göstermiştir.



Şekil 4.9. Pektin-Fe₃O₄ AMX Adsorpsiyonunun Tempkin İzoterm Grafiği

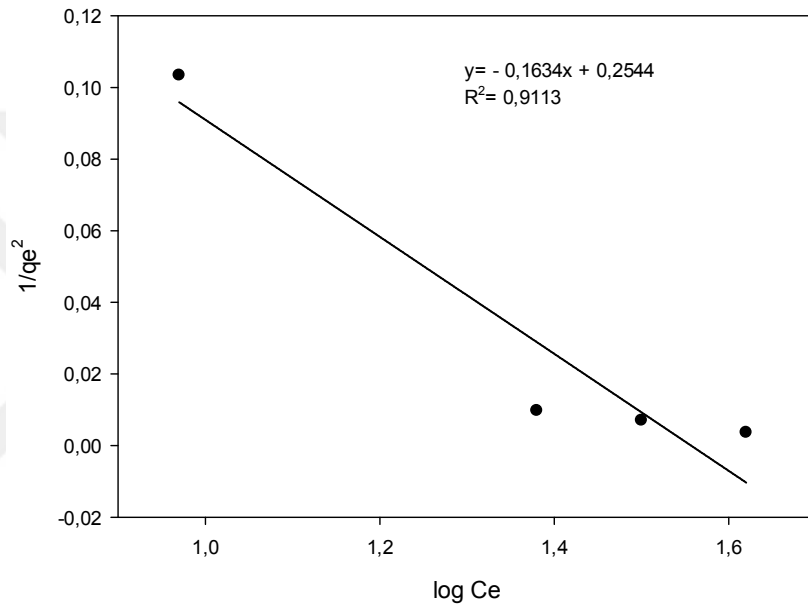


Şekil 4.10. Pektin-Fe₃O₄ AMX Adsorpsiyonunun D-R İzoterm Grafiği

Grafik yardımıyla D-R izoterm sabitleri hesaplanmıştır. 25°C'deki D-R izoterminin eğiminden $B = -3 \times 10^{-5}$ ve kesim noktasından $Q_s = 11,06$ (mg/g), $R^2 = 0,9222$ olarak hesaplanmıştır. Çalışmamızda D-R izoterm sabiti 3×10^{-5} olarak bulunmuştur.

Şekil 4.11'de AMX'nin Pektin-Fe₃O₄ üzerine adsorpsiyonunda Harkins-Jura izotermi için $R^2 = 0,9113$ 'lük bir korelasyon değeri elde edilmiştir. Bu izoterm heterojen

gözenekli dağılımın varlığında çok tabakalı bir adsorpsiyonun mevcudiyetini var sayar. Harkins-Jura (HJ) eşitliğine göre deney sonuçları grafiğe geçirilerek Şekil 4.11'de verilmiştir. Harkins-Jura eşitliğine göre deney sonuçları grafiğe geçirildiğinde bu doğrunun eğim ve kayması Harkins-Jura eşitliğinde yerine konulduğunda $A=6,119$ ve $B=1,54$ sabitleri ve kayma miktarı= $0,25$ olarak hesaplanmıştır. B sabitinin büyüklüğü, adsorpsiyonda fiziksel adsorpsiyonun daha fazla olduğunu gösterir. Elde edilen B sabit değeri kimsayal adsorpsiyonun daha fazla olduğunu göstermiştir. Araştırılan bu değerler literatürlerdeki değerlerle son derece uyum içerisindedir.



Şekil 4.11. Pektin-Fe₃O₄ AMX Adsorpsiyonunun Harkins-Jura İzoterm Grafiği

Çizelde 4.1' de R^2 değerlerine bakılacak olursa Langmuir izotermine nispeten daha uygun olduğu görülmektedir. Bir adsorpsiyonunun hangi izotermle daha iyi açıklandığının bulunması için deneysel olarak elde edilen veriler tüm izoterm denklemlerine uygulanıp grafiğe dökülmüştür. Verilerin doğrusal bir grafik oluşturduğu ve korelasyon katsayısı R^2 'nin 0,95'ten büyük olduğu izoterm çeşidi o adsorpsiyon için en uygun olduğunu belirtmektedir. Çizelgeden korelasyon değerlerine bakıldığında AMX giderimi için Pektin-Fe₃O₄'ün hem Langmuir ($R^2=0,9957$) hem de Freundlich ($R^2= 0,9799$) izotermine uyduğu ancak Langmuir izotermi ile daha çok uyduğu gözlenmiştir.

Çizelge 4.1. Freundlich, Langmuir , Tempkin , D-R ve Harkins-Jura İzoterm Sabitleri

	Parametre (Birim)	Değerler
Freundlich İzotermi	n ($g L^{-1}$)	0,6
	K_F (L/mg)	1,57
	R^2	0,9799
Langmuir İzotermi	B (L/mg)	22,88
	R_L (mg/g)	0,87
	R^2	0,9957
Tempkin İzotermi	B ($J mol^{-1}$)	7,4886
	A_T ($L g^{-1}$)	8,33
	R^2	0,8742
D-R İzotermi	q_s (mg/g)	11,06
	E (kJ/mol)	0,5878
	R^2	0,9222
Harkins-Jura İzotermi	A	6,119
	B	1,54
	R^2	0,9113

4.3. Adsorpsiyon Kinetiği

Fe_3O_4 magnetit ile amoksisilin adsorpsiyon kinetiği yalancı birinci dereceden (Pseudo first-order), Yalancı ikinci dereceden (Pseudo second-order) ve Partikül içi difüzyon (Intra-particle difussion) modellerine göre incelenmiştir.

Fe_3O_4 magnetit ile amoksisilin adsorpsiyon kinetiği farklı konsantrasyonlarda (25-125 ppm) oda sıcaklığında ve pH 8’te incelenmiştir. Elde edilen kinetik grafikler sırasıyla aşağıda Şekil 4.12’ de kinetik parametreler ise Çizelge 4.2’ te gösterilmiştir.

Eğer adsorbanın bulunduğu faz hareketsiz ise, 1. basamak en yavaş ve adsorpsiyon hızını belirleyen basamak olabilmektedir. Eğer akışkan hareket ettirilirse, yüzey tabakasının kalınlığı azalacağı için adsorpsiyon hızı artar (Koçkaya, 2016). Şekil 4.12’deki her bir doğru için elde edilen denklemler sırasıyla aşağıda verilmiştir.

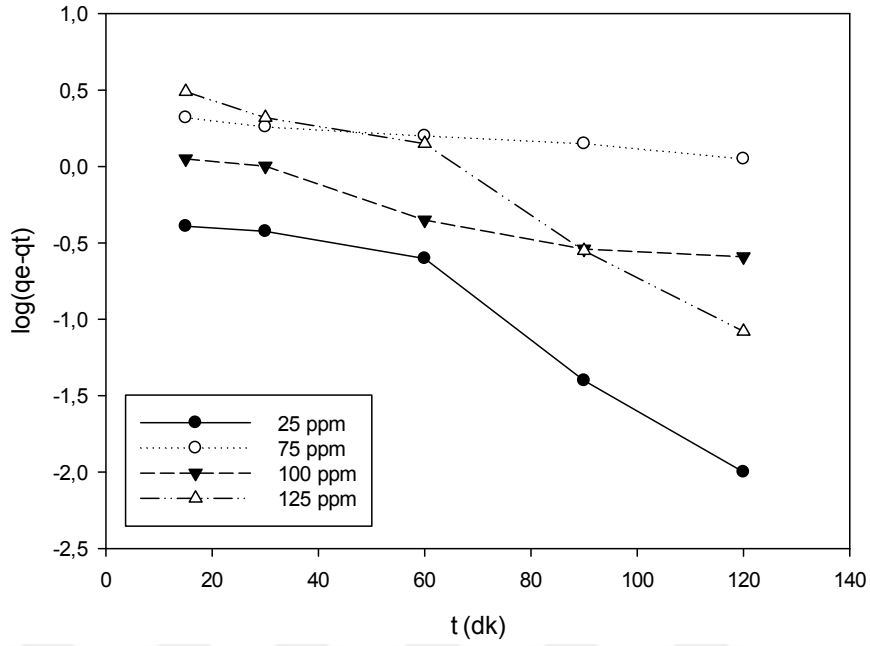
$$25 \text{ mg/L için; } y = -0,0159x + 0,038 \quad R^2 = 0,9248$$

$$75 \text{ mg/L için; } y = -0,0024x + 0,3466 \quad R^2 = 0,9824$$

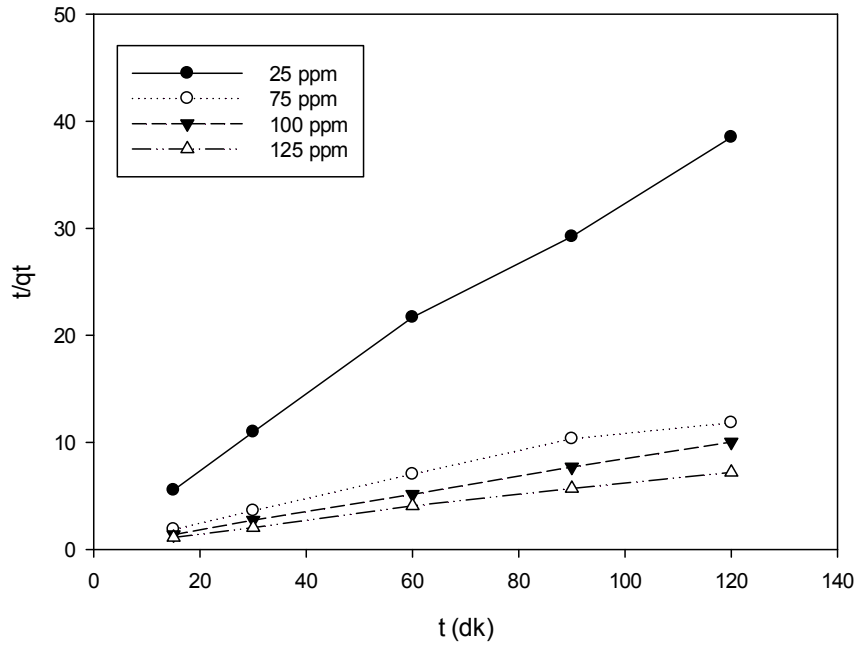
$$100 \text{ mg/L için; } y = -0,0067x + 0,1385 \quad R^2 = 0,9348$$

$$125 \text{ mg/L için; } y = -0,015x + 0,813 \quad R^2 = 0,9562$$

Denklemlere göre tüm konsantrasyonlar için korelasyon değerlerinin yüksek olduğu ve bu değerlerin $R^2 = 0,9248 - 0,9848$ aralığında yer aldığı belirlenmiştir.



Şekil 4.12. Pektin-Fe₃O₄ Magnetit İle Amoksisilin Adsorpsiyonunun Pseudo Birinci Dereceden Kinetik Grafiği



Şekil 4.13. Pektin-Fe₃O₄ Magnetit İle Amoksisilin Adsorpsiyonunun Pseudo İkinci Dereceden Kinetik ile İfadesi

Şekil 4.13'deki her bir konsantrasyon grafiği için elde edilen denklemler sırasıyla aşağıda verilmiştir.

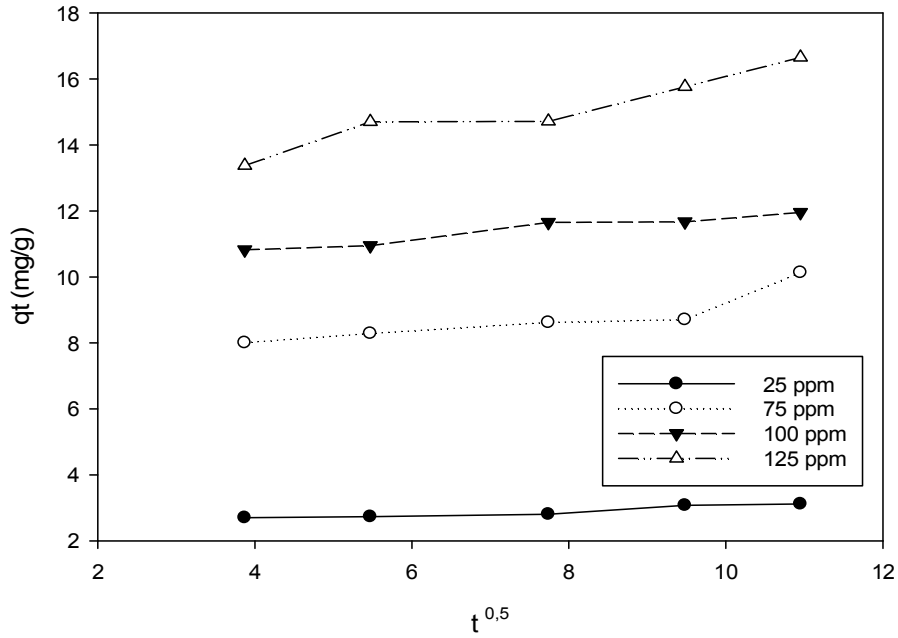
$$25 \text{ mg/L için; } y = 0,3105x + 1,628 \text{ R}^2=0,996$$

$$75 \text{ mg/L için; } y = 0,098x + 0,7668 \text{ R}^2=0,9813$$

$$100 \text{ mg/L için; } y = 0,0824x + 0,207 \text{ R}^2=0,9997$$

$$125 \text{ mg/L için; } y = 0,0584x + 0,3466 \text{ R}^2=0,9962$$

Denklemlere göre tüm konsantrasyonlar için korelasyon değerlerinin yüksek olduğu ve bu değerlerin $R^2 = 0,9813-0,9997$ aralığında yer aldığı belirlenmiştir. Pektin- Fe_3O_4 'ün AMX üzerine adsorpsiyonu yalancı ikinci dereceden kinetik modele uygunluğunu göstermiştir. Adsorpsiyonun pseudo ikinci dereceden kinetik modele uyması, pektin- Fe_3O_4 ile AMX arasında kimyasal bir aktivasyon olabileceğine işaret etmektedir.



Şekil 4.14. Pektin- Fe_3O_4 Magnetit İle Amoksisilin Adsorpsiyonunun Partikül İçi Difüzyon Modeli

Şekil 4.14'deki her bir konsantrasyon grafiği için elde edilen denklemler sırasıyla aşağıda gösterilmiştir.

$$25 \text{ mg/L için; } y = 0,0639x + 2,4075 \text{ R}^2= 0,8915$$

$$75 \text{ mg/L için; } y = 0,2504x + 6,8709 \text{ R}^2= 0,7666$$

$$100 \text{ mg/L için; } y = 0,1669x + 10,163 \text{ R}^2= 0,9371$$

$$125 \text{ mg/L için; } y = 0,4117x + 11,957 \text{ R}^2= 0,9182$$

Denklemlere göre tüm konsantrasyonlar için korelasyon değerlerinin nispeten yüksek olduğu ve bu değerlerin $R^2 = 0,7666-0,9371$ aralığında yer aldığı belirlenmiştir. Amoksisilin buradaki durgun kısımdan geçerek adsorbanın gözenek boşluklarında hareket

etmektedir ve adsorpsiyonun meydana geleceği yüzeye doğru ilerlemiştir. Son basamak ise, parçacık içi difüzyon olayının meydana geldiği basamaktır ve burada adsorbat, adsorbanın yüzeyine tutunmuştur.

Eğer adsorbanın bulunduğu faz hareketsiz ise, 1. basamak en yavaş ve adsorpsiyon hızını belirleyen basamak olabilmektedir. Fakat akışkan hareket ettirilse, yüzey tabakasının kalınlığı azalacağı için adsorpsiyon hızı artacaktır (Koçkaya, 2016). Dolayısıyla 1. basamak hız belirleyici olmaktan çıkmış ve 2. basamak hız belirleyici olmuştur. Pseudo ikinci dereceden denklemin hız belirleyici basamak olması, kimyasal adsorpsiyonun hız belirleyici basamak olması demektir. Çizelge 4.2’ de bu kimyasal adsorpsiyon da süreçte amoksisilin ile adsorban arasında elektron paylaşımı veya değişimi olmasını yani Valans kuvvetlerinin olduğunu kanıtlamıştır.

Çizelge 4.2. Kinetik Sabitleri

	Pseudo 1.Dereceden Denklem Sabitleri		Pseudo 2.Dereceden Denklem Sabitleri	
	R_1^2	K_1 (min^{-1}) (g/mg.dk)	R_2^2	K_2 (min^{-1}) (g/mg.dk)
25 ppm	0,9248	0,0366	0,9960	9,330
75 ppm	0,9824	0,0055	0,9813	17,73
100 ppm	0,9348	0,0154	0,9997	5,4
125 ppm	0,9562	0,0345	0,9962	2,152

Yapılan çalışmalarda sentezlenen bu adsorbentler ile AMX gideriminde pektin- Fe_3O_4 nanokompozitin etkili bir AMX giderimi gerçekleştirdiğini ortaya koymuştur. Çizelge 4.3’de çalışmamızın optimum şartları verilmektedir.

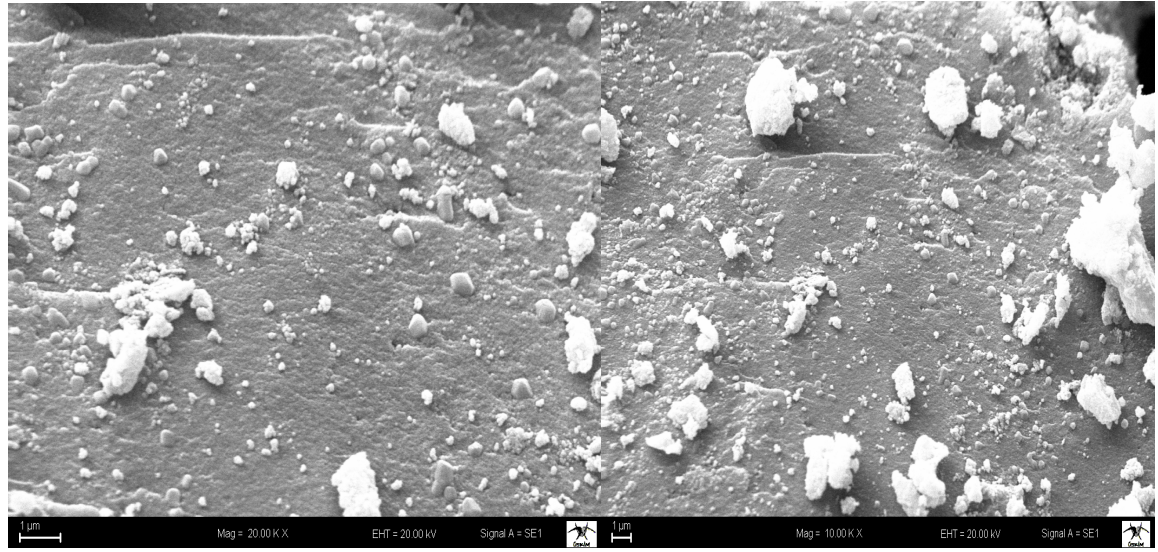
Çizelge 4.3. Optimum Şartlar

Şartlar	Pektin- Fe_3O_4
pH	8
Nanokompozit Dozu (g/L)	5
AMX Konsantrasyon (mg/L)	125
Temas Süresi (dk)	120
Adsorpsiyon İzotermi	Langmuir İzotermi
Adsorpsiyon Kinetiği	Pseudo İkinci Derece Kinetik

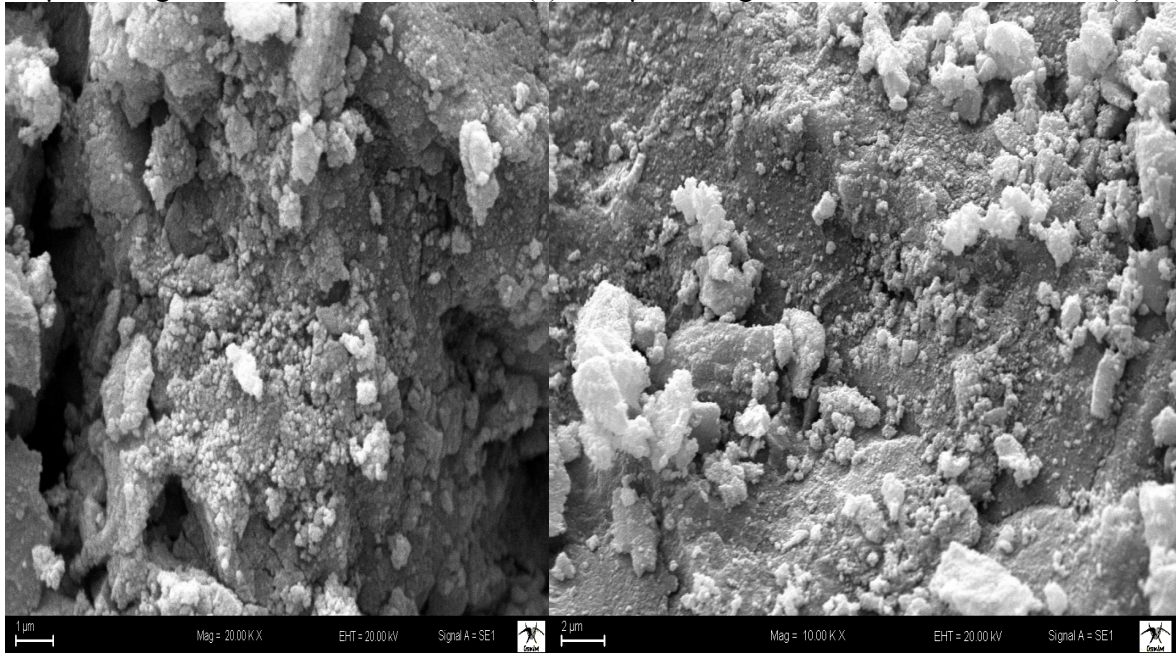
4.4. AMX 'in Karakterizasyonu

4.4.1. SEM analizi

SEM fotoğrafları, yüzeyin fiziksel morfolojisi hakkında önemli bilgiler vermektedir. Amoksisilin'in adsorpsiyondan önce ve sonra Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) görüntüleri Şekil 4.15'te gösterilmiştir. 1 μm 'lik SEM görüntüleri incelendiğinde pektin Fe_3O_4 daha düz bir yüzey gözlenirken aynı boyuttaki SEM görüntüsünde AMX'in tabakanın üzerinde kümeleşme olduğu gözlemlenmiştir. AMX'in adsorpsiyon sonrası SEM görüntüleri incelendiğinde içlerine nüfuz edip yüzeyinde adsorplandığı görülmüştür.

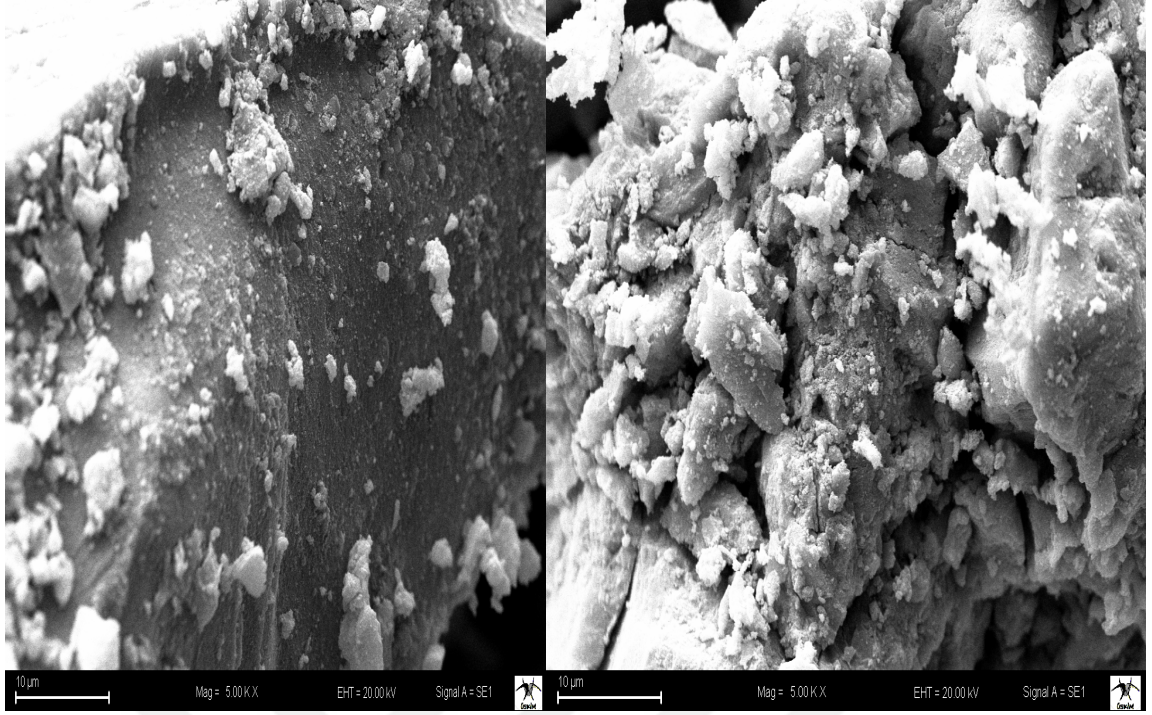


1 μm Mag=20.00X EHT=20.00kV (a) 1 μm Mag=10.00X EHT=20.00kV (b)



2 μm Mag=20.00X EHT=20.00kV (c) 2 μm Mag=10.00X EHT=20.00kV (d)

Şekil 4.15. Pektin- Fe_3O_4 SEM görüntüleri. (a) ve (b) adsorpsiyon öncesi pektin- Fe_3O_4 partikülleri, (c) ve (d) adsorpsiyon sonrası pektin- Fe_3O_4 partikülleri



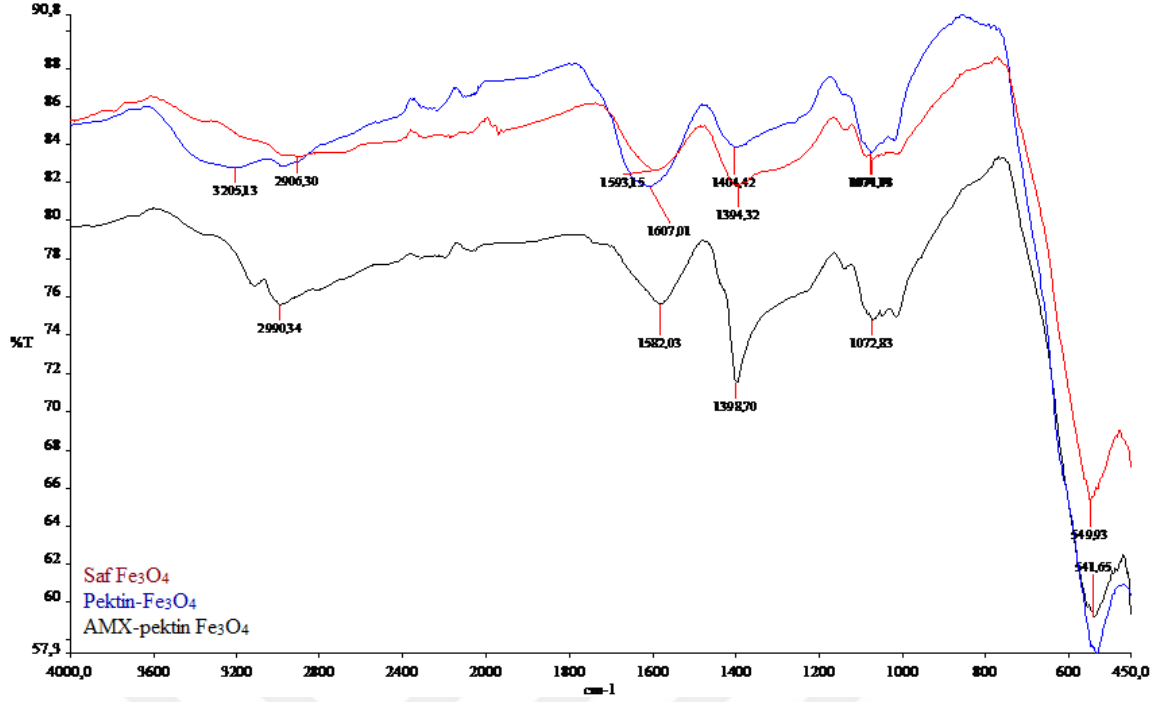
Şekil 4.16. Pektin-Fe₃O₄ ile AMX' in Adsorpsiyon Öncesi ve Sonrası SEM Görüntüleri

10 µm'lik SEM görüntüleri Şekil 4.16'da incelendiğinde pektin Fe₃O₄ karşılaştırma yapacak olursak, Pektin Fe₃O₄ gözenekli yapıya sahip olup dış yüzeyinde birçok çıkıntı görülmüştür. Yüzey alanına dikkat edilecek olursa görüntülerdeki oyukların etrafında ve çevresinde amoksisiline ait çok sayıda mezo ve mikro gözenek bulunduğu tahmin edilip tanecik boyutu 200 µm olarak ölçülmüştür.

4.4.2. FTIR analizi

Fourier Dönüşüm Kızılötesi (FTIR) spektroskopisi incelenmek istenen örnek makromolekülleri fonksiyonel gruplarının titreşimlerinden kaynaklanan yapısal, kompozisyonel ve fonksiyonel bilgilerin elde edilmesini sağlayan bir tekniktir. FTIR kimyasal yoğunlaşma, kompozisyon, konformasyon ve içerilen fonksiyonel gruplar gibi pek çok kalitatif bilgi elde etmek mümkündür (Öden, 2015).

Pektin Fe₃O₄ adsorpsiyon deneylerinde kullanılmak üzere hazırlanan gözenekli katının FTIR analizleri yapılmıştır. Şekil 4.17'de ise gözenekli katının spektrumu görülmektedir.



Şekil 4.17. Pektin-Fe₃O₄ partiküllerinin FTIR spektrumu

Pektin-Fe₃O₄ FTIR spektrumunda, fonksiyonel grupları göstermektedir. Şekil 4.17'deki spektruma göre 400 ile 4000 cm⁻¹ dalga aralığında gözlenmiştir. Saf Fe₃O₄ pektin-Fe₃O₄ partiküllerinden farklı olarak 2925 piki ortamda karbondioksit olduğunu göstermektedir. 1429 pikinin ise O-H eğilme titreşiminden kaynaklandığı görülmektedir. 3100-3200 cm⁻¹ civarında dalga sayısı etrafında görülen küçük pikler O-H karboksil asit gruplarının geniş ve güçlü gerilimini gösterir. Pektinde galakturonik asitin metil esterleri nedeniyle 2950-2750 cm⁻¹ arasında C-O gerilme bandı gözlenmiştir. 2214,28 cm⁻¹ dalga sayısındaki pikler ise C≡C ve C≡N geniş spektrumlu ve çoklu piklerin metil ve metilen gruplarının titreşiminden kaynaklanabileceğini tespit etmiştir. Yaklaşık 1640 ile 1620 cm⁻¹ arasında ortaya çıkan pikler daha kuvvetli ester karbonili (C=O) bantları, göstermektedir. 1398,70-1138,58 arasında bölgede pektinin parmak izi bölgesini gösterir ve pektin Fe₃O₄ nanopartikül üzerine başarılı bir şekilde kaplandığı tespit edilmiştir.

Pektin için, 1600-1012 arasında (N-H eğilme), (N-O asimetrik gerilme) ve (C-N) cm⁻¹ olmak üzere üç amid grubu gösterilmiştir. Adsorbsiyon yapmadığı bölgelerde geçirgenlik yüzdesi az olur bu yüzden geçirgenlik yüzdesi pektin-Fe₃O₄ ile AMX adsorpsiyonu öncesi % (75-80) aralığında ölçülmüştür.

AMX adsorpsiyonunun pektin-Fe₃O₄ FTIR spektrumunda gösterilmektedir. Şekil 4.17' deki spektruma göre 2979,29 cm⁻¹ civarında görülen küçük pikler O-H karboksil asit gruplarının geniş ve güçlü gerilimini gösterir. 2230,76 cm⁻¹ dalga sayısındaki pikler ise

$C\equiv C$ ve $C\equiv N$ geniş spektrumlu ve çoklu piklerin metil ve metilen gruplarının titreşiminden kaynaklanabileceğini göstermiştir. Üretilen gözenekli katının spektrumu pektin- Fe_3O_4 örneğinin FTIR spektrumu ile karşılaştırıldığında fonksiyonel gruplarda önemli oranda azalma olduğu gözlenmiştir. $3131,86\text{ cm}^{-1}$ civarında gözlenen $-OH$ gerilme bandından kaynaklanan pik tamamen gözden kaybolmuştur. Gözenekli katı yapısında $1606,53\text{ cm}^{-1}$ 'de gözlenen pik aromatik $C=C, C=N$ gerilme bandını ifade etmiştir. Adsorpsiyondan sonra bu bağlarda bir etkileşimin meydana geldiği ve $1074,08\text{ cm}^{-1}$ 'deki pikin $1613,42\text{ cm}^{-1}$ 'e kaydığı gözlenmiştir.

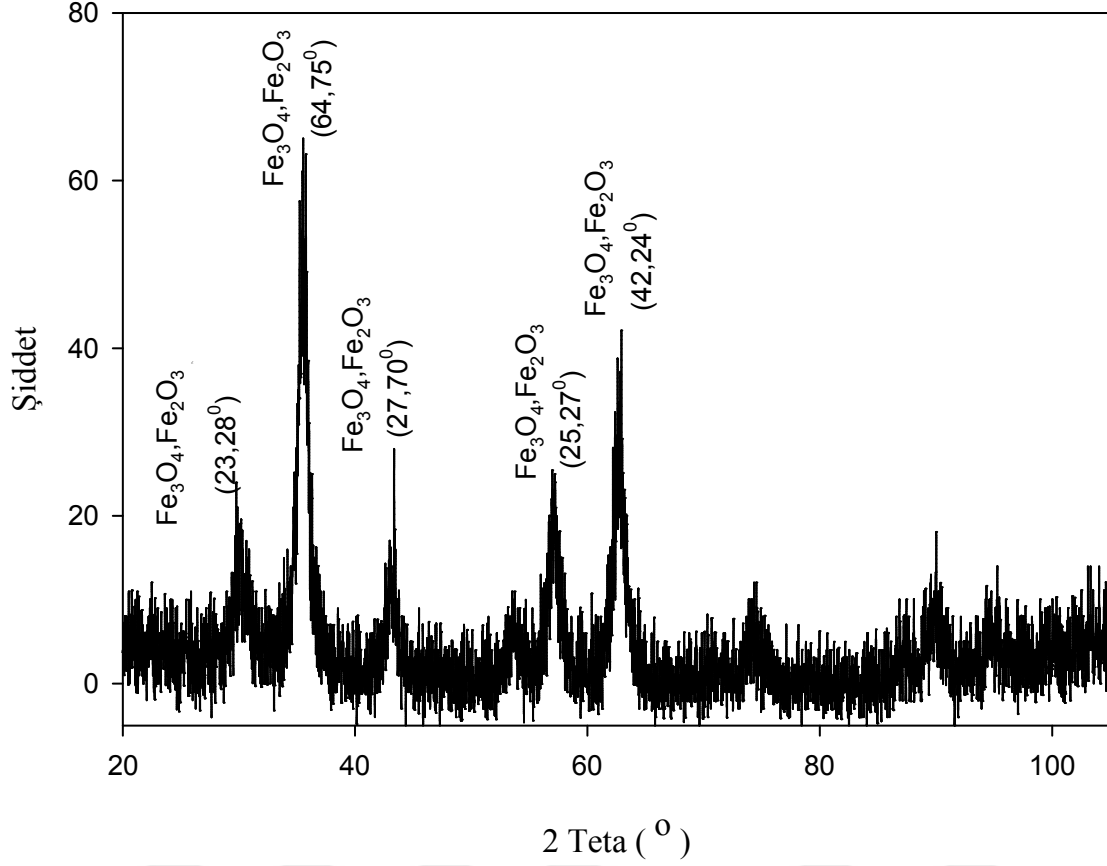
Absorbsiyon yaptığı bölgelerde geçirgenlik %100'e yakındır. Şekil 4.17'deki grafikte verilen geçirgenlik %91,2'dir. Bu durum adsorpsiyonun başarılı bir şekilde gerçekleştiğini göstermiştir.

Çizelge 4.4. Amoksisilinin titreşim frekansları

Dalgaboyu(cm^{-1})	Bağ
2979,29	N-H (Amin)
2230,76	$C\equiv C$ (Amid)
1606,53	$C=N$ (Halka)
1399,14	C-C
1074,03	C-C-H (Aromatik Düzlem İçi)

4.4.3. X-Işını kırınımı (XRD)

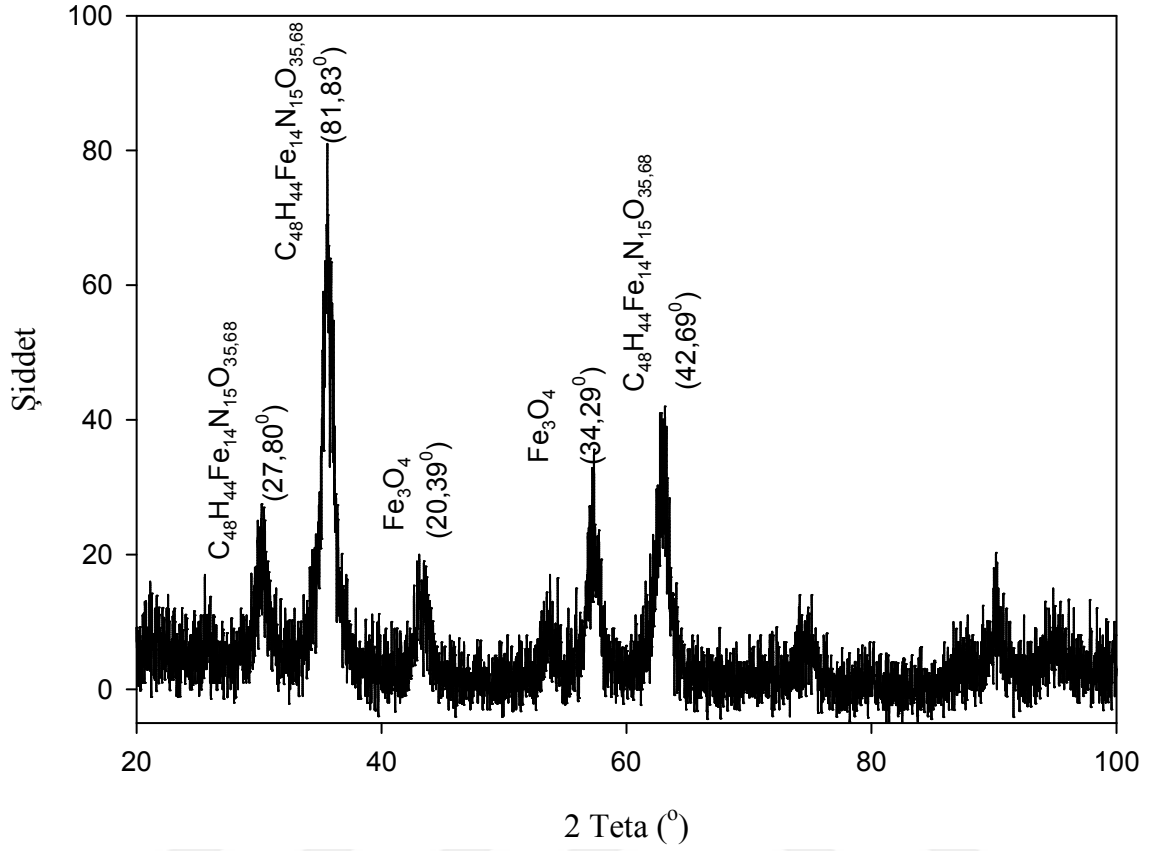
X-Işını Kırınım yöntemi (XRD), her bir kristalin fazın kendine özgü atomik dizilimlerine bağlı olarak, X-ışınlarını karakteristik bir düzen içerisinde kırması esasına dayanır. Her bir kristalin faz için bu kırınım profilleri o kristali tanımlar. X-Işını Kırınım analiz metodu, analiz sırasında numuneyi tahrip etmez ve çok az miktardaki numunelerin dahi analizlerinin yapılmasını sağlamaktadır. XRD'yi çok kullanışlı yapan şey kristal yapılarında parmakizi hassaslığında veri toplayabilmesi ve güvenilir olmasında yatmaktadır. θ ise XRD desenindeki ani yükselişin açı değerinin yarısını belirtmektedir (Adıgüzel, 2014). Pektin- Fe_3O_4 ait XRD grafiği Şekil 4.18'de gösterilmiş olup elde edilen veriler değerlendirilmiştir.



Şekil 4.18. Katkısız Pektin-Fe₃O₄ ait XRD grafiği

XRD analizine bakıldığında, ölçülen ana pikin “manyetit” olduğu belirlenmiştir. Şekil 4.18 Manyetit Fe₃O₄'ün varlığını ortaya çıkarmıştır. Tüm ölçümlere bakıldığında spesifik manyetit pikinin 2θ=23,28-64,75 aralığında Fe₃O₄ ve Fe₂O₃ pikin olduğu, bunun yanında yeni pikler de oluştuğu ve bazı piklerde azalmalar ya da kayıplar yaşandığı tespit edilmiştir.

Piklerin şiddetindeki artma ve azalmaların yapılan katkı miktarlarına bağlı olarak daha önce oluşan bazı fazların bozularak yeni fazlar ortaya çıkışından kaynaklandığı düşünülmüştür. AMX ile reaksiyona girdikten sonra pektin Fe₃O₄'in XRD analizi Şekil 4.19'da gösterilmiştir. X-ışını kırınım desenlerinin analizleri ve piklerin karakterizasyonu literatürden elde edilen referanslardan yararlanılarak yapılmıştır. Fe₃O₄ (18,05°) olarak belirlenmiştir. Pektin magnetitle AMX'in reaksiyonu sırasında oluşan Fe₃O₄ ve Fe₂O₃ ürünleri oluşmaktadır. XRD deseninde 20,39°, 27,80°, 34,29°, 42,69°, 81,83° açı değerlerinde geniş pikler oluşmuştur. Bu değerler literatür ile son derece uyum içerisindedir.



Şekil 4.19. AMX Katkılı Pektin-Fe₃O₄ ait XRD Grafiği

4.4.4. AMX Konsantrasyonları, pH ve Pektin-Fe₃O₄ Materyallerinin Zamana Bağlı Değerlerinin İstatiksel Olarak Karşılaştırılması

Belirli dozajlarda ve farklı karışım konsantrasyonlarında amoksisilin pektin-Fe₃O₄ materyallerinin adsorpsiyon verimine ait veriler tek yönlü varyans analizine (ONE WAY ANOVA) tabi tutulmuş ve ortalamalar arasındaki farklar belirlenmiştir. Uygulanan modelin % 95 güven aralığı içerisindeki ANOVA (analysis of variance) analizi incelenmiş ve model ile deneysel bulguların uyumuna bakılmıştır. Bağımsız değişkenlerin regresyon analizi Çizelge 4.4'de gösterilmektedir. ANOVA analizinden elde edilen F-değeri önerilen modelin önemli olduğunu göstermektedir. P-değerinin 0.05'ten küçük olan parametreler istatistiksel olarak önemlidir. Adsorbans dozu, pH'sı, AMX konsantrasyonu, adsorpsiyon prosesinin lineer bir etkiye sahip olduğu model tarafından ifade edilmektedir. Ayrıca amoksisilin konsantrasyonu ve temas süresi değişkenlerinin üstel parametrelerinin model için önemli olduğu, bu parametrelerde meydana gelecek değişimin AMX giderim verimini önemli oranda değiştireceği görülmektedir. Adsorbent dozu ile pH'sı ve AMX madde konsantrasyonu arasındaki etkileşimin önemli olduğu istatistiksel olarak ifade edilmektedir.

Ayrıca Başlangıç pH'sıyla amoksisilin madde konsantrasyonu arasındaki etkileşimin önemli olduğu görülmektedir.

Çizelge 4.5. Pektin-Fe₃O₄ ile AMX 'in Giderimi için ANOVA Tablosu Sonuçları

	Varyasyon kaynağı	Karelerin Toplamı	Serbestlik Derecesi	Karelerin ortalaması	F değeri	Sig .
pH	Gruplar arası	622,802	1	622,802	19634,626	,000
	Gruplar içinde	,444	14	,032		
	Toplam	623,246	15			
Nanodoz	Gruplar arası	5523,685	1	5523,685	17332,404	,000
	Gruplar içinde	4,462	14	,319		
	Toplam	5528,147	15			
Konsantrasyon	Gruplar arası	57600,000	1	57600,000		
	Gruplar içinde	,000	14	,000		
	Toplam	57600,000	15			

Pektin-Fe₃O₄ ile AMX 'in ortalamaları arasındaki farklılıklar önemlidir ($P \leq 0.05$), ($R^2 = 1,000$, adj $R^2 = 0,999$)

5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

Antibiyotikler tüm dünyada en çok kullanılan ilaçlar arasında ilk sıralarda yer almaktadır. Antibiyotik kullanımı tüm dünyada toplum sağlığını tehdit eder hale gelmiş olup Türkiye'de çok daha riskli boyutlara ulaşmıştır. Antibiyotik kullanımının yararları olmasına karşın zararlarının da olduğu akılda tutulmalıdır. Bu nedenle ülkemizde antibiyotik tüketiminin azaltılması ve en aza indirilmesi için gerekli önlemlerin alınması şarttır. Bu konu hakkında yasal düzenlemelerin yapılması, antibiyotik tüketiminin kontrol altına alınması gerekmektedir.

Yapılan araştırmalar sonucunda, ilaçların özellikle biyolojik hedefler söz konusu olduğunda sulu ortamdaki organizmaya uzun dönemli etkilerinin ve karışım halinde bulunabilen bileşiklerin etkilerinin çok az bilindiğini göstermektedir. İlaç atıkların giderim yöntemleri arasında adsorpsiyon son yıllarda önem kazanan bir konudur. Bu amaçla, adsorpsiyon, atık suların içerisindeki kirletici maddelerin gideriminde etkili yöntem olarak kabul edilmektedir. Uygulaması basittir ve işletme maliyetleri düşüktür.

Bu çalışmada, pektin-Fe₃O₄ adsorbent olarak sentezlenip AMX'in adsorpsiyonu için adsorbent olarak kullanılmıştır. Adsorpsiyona etki eden faktörlerden pH, konsantrasyon ve adsorbent dozunun etkisi incelenmiştir. Kesikli deneylerden elde edilen sonuçların izoterm ve kinetik uygunluğu incelenmiştir. Amoksisilin ve pektin-Fe₃O₄ morfolojik özelliklerinin belirlenmesinde SEM görüntüleri tespit edilmiştir.

Yüksek pH değerlerinde AMX gideriminin arttığı ve optimum giderimin pH 8'te gerçekleştiği belirlenmiştir. Çözeltilerin pH değerleri ayarlanırken, adsorbent yüzeyinin iyon yüküne dikkat edilmelidir. Tüm pH'lar ilk dakikalardan itibaren yüksek bir adsorpsiyon gözlemlenmiş ve maksimum giderim pH 8'de elde edilmiştir. Bu değerlere dikkat edilirse adsorpsiyonun yüksek pH'da ortama salınan fazlaca OH⁻ iyonlarından dolayı adsorbent yüzeyi daha negatif hale gelerek bu yüzeyde pozitif yüklü AMX'in molekülleri ile arasında çekmeler söz konusu olabilmektedir. Bu da adsorplanan AMX miktarının artmasına neden olmuştur.

Pektin-Fe₃O₄ adsorbent dozunun etkisi incelendiğinde dozun artmasıyla verim artmıştır. Freundlich, Langmuir, Tempkin, D-R ve Harkins-Jura izotermi modellerine uygunluğu araştırılmış olup adsorpsiyona en iyi uyum sağlayan izotermin Langmuir izoterminin olduğu tespit edilmiştir. AMX adsorpsiyonunda ait Langmuir izoterminin b = 22,88 (mg/L) değeri yüksek çıkmıştır ki bu da kullanılan pektin-Fe₃O₄ iyi birer adsorbent

olduğunu kanıtlamıştır. Freundlich izotermi $n=0,6$ g/L olarak hesaplanmış olup amoksisilin adsorpsiyonunun elverişliliğinin ifadesidir.

Adsorpsiyonun hangi kinetiğe uygun olduğunu bulmak için Pseudo-birinci ve ikinci derece kinetik grafikler çizilmiş ve kinetik sabitleri hesaplanmıştır. Birinci derece kinetik modelinin pektin- Fe_3O_4 kolerasyon katsayıları sırasıyla $R^2=0,9248 -0,9848$ aralığında yer aldığı belirlenmiştir. İkinci derece kinetik modelinin pektin- Fe_3O_4 kolerasyon katsayıları $R^2= 0,9813-0,9997$ aralığında yer aldığı hesaplanmıştır. Bu hesaplamalara göre pektin- Fe_3O_4 nano magnetit ile AMX adsorpsiyonunun ikinci derece kinetik modele uygun olduğu belirlenmiştir.

Pektin- Fe_3O_4 ile AMX 'in adsorpsiyonunda morfolojik özelliklerinin belirlenmesinde SEM görüntüleri incelenmiştir. Adsorpsiyon öncesinde pektin- Fe_3O_4 ' nın gözenekli bir yapıda olduğu, adsorpsiyon sonrasında ise bu gözenekli yapının AMX iyonlarını adsorpladığı tespit edilmiştir. Taneciklerin yüksek çözünürlüklü ayrıntılı görüntülerinden partiküllerin ortalama çapının $200 \mu m$ civarı olduğu ölçülmüştür.

XRD analizlerine göre partiküllerin başlangıçta tamamının Fe_3O_4 ve Fe_2O_3 yapısında olduğu gözlemlenmiştir. Kaplamalar arasındaki farklar, piklerin farklılığından açıkça görülmektedir. Kaplama arttıkça partikül çapı büyümekte ve yüzey alanı da küçülmektedir. Bu adsorpsiyon işlemleri için olumsuz bir durum gibi gözükse de, çekirdekteki demirin oksitlenmemesi, taneciklerin boyutlarını korumaları ve stabil kalmaları için zorunlu bir işlemdir. Piklerin şiddetindeki artma ve azalmaların yapılan katkı miktarlarına bağlı olarak daha önce oluşan bazı fazların bozularak yeni fazlar ortaya çıkışından kaynaklandığı düşünülmüştür.

Yapılan çalışmanın laboratuvar ölçekli olmasında dolayı gerçek su/atıksularda giderime yönelik araştırmalar daha net uygulamaları öne çıkaracaktır. Bu tez çalışmasında elde edilen sonuçlar manyetit partiküller farklı özellikteki antibiyotik kirleticilerin adsorpsiyon prosesiyle giderimindeki etkinliğini yorumlamada katkı sağlayacaktır.

KAYNAKLAR

- Alygizakis, N.A., Gago-Ferrero, P., Borova, V.L., Pavlidou, A., Hatzianestis, I., Thomaidis, N.S., (2016). Occurrence and spatial distribution of 158 pharmaceuticals, drugs of abuse and related metabolites in offshore seawater. *Sci. Total Environ.* 541: 1097–1105.
- Adeleye, A.S., Conway, J.R., Garner, K., Huang, Y., Su, Y., Keller, A.A., (2016). Engineered nanomaterials for water treatment and remediation: costs, benefits, and applicability. *Chem. Eng. J.* 286, 640–662.
- Aksu, O., Tunc, Process Biochem. 40 (2005) 831.
- Akhtar, M., Hasany, S. M., Bhanger, M. I. ve Iqbal, S., (2007), “Low Cost Sorbents for the Removal of Methyl Parathion Pesticide from Aqueous Solutions”, *Chemosphere*, 66(10):1829–1838.
- Amin, N. K., (2008), “Removal of Direct Blue-106 Dye from Aqueous Solution Using New Activated Carbons Developed from Pomegranate Peel: Adsorption Equilibrium and Kinetics”, *Journal of Hazardous Materials*.
- Aminov, N. Jeanjean, R.I., Mackie, (2001) . Molecular Ecology of tetracycline resistance: development and validation of primers for detection of tetracycline resistance genes encoding ribosomal protection proteins, *Appl. Environ. Microbiol.* 67 (1) 22–32.
- Arıkan, N. 1991. Sudaki Bazı Kirleticilerin Aktif Karbonla Giderilmesi. Yüksek Lisans Tezi. Uludağ Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü. Bursa, 110 s.
- Aksu, Z., Çalık, A., Dursun, A. Y., Demircan, Z., 1999. Biosorption of Iron(III)-Cyanide Complex Anions to *Rhizopus Arrhizus*: Application of Adsorption Isotherms. *Process Biochem.*, 34: 483-491.
- Adıgüzel A.R., 2014. M(3-Aminopiridin) 2Ni(CN)₄ [M = Cu(II) ve Zn(II)] Hofmann Tipi Bileşiklerin Kristal Yapı Sabitlerinin Toz XRD Verilerinden Hesaplanması .Yüksek Lisans Tezi, Dumlupınar Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Kütahya.
- Aksu, Z., Yener, J., 2001. A Comparative Adsorption/Biosorption Study of Mono-Chlorinated Phenols onto Various Sorbents. *Waste Management*, 21: 695-702.
- Anisa, M., Abdallah, S.D., Peter, A.S., 2003. 'Mind the gap': science and ethics in nanotechnology. *Nanotechnology* 14 (3),
- Aghaie, H., Gharbani, P., 2011. Kinetic and thermodynamic studies of adsorption of 4-chloro-2-nitrophenol on nano-TiO₂. *J. Phys. Theor. Chem.* 8 (1), 33–38.

- Akhtar, J., Amin, N.S., Aris, A., 2011. Combined adsorption and catalytic ozonation for removal of sulfamethoxazole using Fe₂O₃/CeO₂ loaded activated carbon. *Chem. Eng. J.* 170, 136-144.
- Akgün G., 2001. İlaç Endüstrisi Formülasyon Alt Kategorisi için Kaynak Bazında Atıksu Karakterizasyonu ve Arıtılabilirliği. Yüksek Lisans Tezi. , İ.T.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü. İstanbul
- Anjum , R. Miandad., M. Waqas ., F. Gehany .,M.A. Barakat. Remediation of wastewater using various nanomaterials. Review.Department of Environmental Sciences,accepted 10 October 2016
- Arpat Ç., 2007. İlaç Endüstrisinde İnsan Sağlığı Açısından Tehlikeli Maddelerin Risk Değerlendirmesi. Yüksek Lisans Tezi, İ.T.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü. İstanbul.112s
- Brandt, A.Amézquita., T. Backhaus., A. Boxall, A. Coors., T. Heberer, J.R. Lawrence, J. Lazorchak, J. Schönfeld, J.R. Snape., Y.G. Zhu, E. Topp., (2015) . Ecotoxicological assessment of antibiotics: a call for improved consideration ofmicroorganisms, *Environ. Int.* 85189–205.
- Batt, A.L., Kim, S., Aga, D.S., 2006. Enhanced biodegradation of iopromide and trimethoprim in nitrifying activated sludge. *Environmental Science & Technology* 40 (23), 7367-7373.
- Bokare, A.D., Chikate, R.C., Rode, C.V., Paknikar, K.M., 2008. Iron-nickel bimetallic nanoparticles for reductive degradation of azo dye Orange G in aqueous solution. *Appl. Catal B Environ.* 79, 270–278.
- Bendz D, Paxéus NA, Ginn T R, Loge FJ (2005). Occurrence and fate of pharmaceutically active compounds in the environment, a case study: Höje River in Sweden. *J. Hazard. Mater.* 122, 195–204.
- Blanco, J., Torrades, F., De la Varga, M., Garcí'a-Montan˜ o, J., 2012. Fenton and biological-Fenton coupled processes for textile wastewater treatment and reuse. *Desalination* 286, 394–399.
- Babursah, S., C, akmakci, M., Kinaci, C., 2006. Analysis and monitoring: costing textile effluent recovery and reuse. *Filtr. Separat.* 43 (5), 26–30.
- Berghe, X. Garric, M. Vert, J. Coudane, J. *Polym. Int.* 60 (2011) 398.
- Bello, Antibiotic adjuvants – A strategy to unlock bacterial resistance to antibiotics C. González-Bello/*Bioorganic & Medicinal Chemistry Letters* 27 (2017) 4221–4228

- Brumfiel, G., 2003. Nanotechnology: a little knowledge. *Nature* 424,246–248.
- Costanzo S D, Murby J, Bates J (2005). Ecosystem response to antibiotics entering the aquatic environment. *Mar. Pollut. Bull.* 51, 218–223.
- Chang, M.C., Shu, H.Y., Hsieh, W.P., Wang, M.C., 2007. Remediation of soil contaminated with pyrene using ground nanoscale zero-valent iron. *J. Air Waste Manag.* 57, 221–227.
- Carvalho IT, L Santos. Antibiotics in the Aquatic Environments: A Review of the European Scenario. *Environ Int* 2016; 94: 736-757.
- Cha, J.M., Yang, S., Carlson, K.H., 2006. Trace determination of b-lactam antibiotics in surface water and urban wastewater using liquid chromatography combined with electrospray tandem mass spectrometry. *J. Chromatogr. A* 1115, 46–57.
- Chaturvedi, S., Dave, P.N., Shah, N.K., 2012. Applications of nanocatalyst in new era. *J. Saudi Chem. Soc.* 16, 307–325
- Chen, Y., Zhang, H., Luo, Y., Song, J., 2012b. Occurrence and dissipation of veterinary antibiotics in two typical swine wastewater treatment systems in east China. *Environ. Model. Assess.* 184 (4), 2205–2217.
- Carabineiro, S., Thavorn-Amornsri, T., Pereira, M., Serp, P., Figueiredo, J., 2012. Comparison between activated carbon, carbon xerogel and carbon nanotubes for the adsorption of the antibiotic ciprofloxacin. *Catal. Today* 186, 29-34.
- Cloete, T.E., 2010. *Nanotechnology in Water Treatment Applications*. Horizon Scientific Press, New York, USA, p. 196, ISBN-13:9781904455660.
- Diarra MS, F Malouin. Antibiotics in Canadian Poultry Productions and Anticipated Alternatives. *Front Microbiol* 2014; 5: 282.
- Diarra MS, H Rempel, J Champagne, L Masson, J Pritchard, E Topp. Distribution of Antimicrobial Resistance and Virulence Genes in *Enterococcus* Spp. And Characterization of Isolates from Broiler Chickens. *Appl Environ Microbiol* 2010; 76: 8033-8043.
- Dökmeci, Bazı Farmasötik İlaç Kalıntılarının Sulardaki Toksik Etkileri. Trakya Üniversitesi Sağlık Bilimleri Enstitüsü. Doktora Tezi. Edirne.110s(2009)
- Etcı, Ö., 2008, Ağır metal içeren atıksulardan doğal kil minerali beydellit ile kadmiyum ve kurşun giderimi, Yüksek Lisans Tezi, *GYTE, Çevre Mühendisliği*, Gebze.
- Eva M Golet, Irene Xifra, Hansruedi Siegrist, Alfredo C Alder, Walter Giger (2003). Environmental Exposure Assessment of Fluoroquinolone Antibacterial Agents from Sewage to Soil. *Environ. Sci. Technol.* 37, 3243–3249.

- Elmolla, Malay Chaudhuri. Degradation of amoxicillin, ampicillin and cloxacillin antibiotics in aqueous solution by the UV/ZnO photocatalytic process *Journal of Hazardous Materials* 173 (2010) 445–449)
- Filiz, E., 2007, Doğal kaynaklardan elde edilen adsorbanlarla sulardan ağır metal giderimi, Yüksek Lisans Tezi, *İstanbul Teknik Üniversitesi*, İstanbul.
- Ferro, A. Fiorentino., M.C. Alferez., M.I. Polo-López., L. Rizzo., P. Fernández-Ibáñez. Urban wastewater disinfection for agricultural reuse: effect of solar driven AOPs in the inactivation of multidrug resistant E. Coli strain, *Appl. Catal. B: Environ.* 178 (2015) 65–73.
- Forgetta V, H Rempel, F Malouin., R Vaillancourt., Jr., E Topp, K Dewar. Pathogenic and Multidrug-Resistant *Escherichia Fergusonii* from Broiler Chicken. *Poult Sci* 2012; 91: 512-525.
- Furtula V, EG Farrell., F Diarrassouba., H Rempel., J Pritchard., MS Diarra. Veterinary Pharmaceuticals and Antibiotic Resistance of *Escherichia Coli* Isolates in Poultry Litter from Commercial Farms and Controlled Feeding Trials. *Poult Sci* 2010; 89: 180-188.
- Ferroudj, N., Nzimoto, J., Davidson, A., Talbot, D., Briot, E., Dupuis, V., Abramson, S., 2013. Maghemite nanoparticles and maghemite/silica nanocomposite microspheres as magnetic Fenton catalysts for the removal of water pollutants. *App. Catal. B: Environ.* 136, 9–18.
- Glassmeyer, S.T., Furlong., E.T., Kolpin., D.W., Cahill., J.D., Zaugg, S.D., Werner, S.L., Meyer, M.T., Kryak, D.D., 2005. Transport of chemical and microbial compounds from known wastewater discharges: potential for use as indicators of human fecal contamination. *Environ. Sci. Technol.* 39, 5157–5169.
- Glassmeyer, S.T., Shoemaker, J.A., 2005. Effects of chlorination on the persistence of pharmaceuticals in the environment, *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology.* 74 (1): 24-31.
- Gros, Petrović M., Barceló D (2006). Development of a multi-residue analytical methodology based on liquid chromatography–tandem mass spectrometry (LC–MS/MS) for screening and trace level determination of pharmaceuticals in surface and wastewaters. *Talanta* 70, 678–690.
- Grenni, Valeria Ancona., Anna Barra Caracciolo, Ecological effects of antibiotics on natural ecosystems: a review, *Microchemical Journal* 136 (2018) 25–39

- Grey, D., Garrick, D., Blackmore, D., Kelman, J., Muller, M., Sadoff, C., 2013. Water security in one blue planet: twenty-first century policy challenges for science. *Philos. Trans. Roy. Soc. London A: Math., Phys. Eng. Sci.* 371, 20.120.406.
- Gonzalez Ronquillo M, JC Angeles Hernandez. Antibiotic and Synthetic Growth Promoters in Animal Diets: Review of Impact and Analytical Methods. *Food Control* 2017; 72, Part B: 255-267.
- Gubin, S.P., Koksharov, Y.A., Khomutov, G.B., Yurkov, G.Y.E., 2005. Magnetic nanoparticles: preparation, structure and properties. *Russ. Chem. Rev.* 74, 489–520.
- Goddard, A.F., Jessa, M.J., Barrett, D.A., Shaw, P.N., Idstrom, J.p., Cederberg, C., Spiller, R.C., 1996. Effect of omeprazole on the distribution of metronidazole, amoxicillin, and clarithromycin in human gastric juice. *Gastroenterology* 111, 358-367.
- Ghauch, A., Tuqan, A., Assi, H.A., 2009. Antibiotic removal from water: elimination of amoxicillin and ampicillin by microscale and nanoscale iron particles. *Environ. Pollut* 1626–1635.
- Gupta, V.K., Tyagi, I., Sadegh, H., Shahryari-Ghoshekand, R., Makhlof, A.S.H., Maazinejad, B., 2015. Nanoparticles as adsorbent; a positive approach for removal of noxious metal ions: a review. *Sci. Technol. Dev.* 34, 195.
- Ghauch, A Tuqan., H Assi. Antibiotic removal from water: Elimination of amoxicillin and ampicillin by microscale and nanoscale iron particles. *Environmental Pollution* 157 (2009) 1626–1635
- García-Sánchez, L., Garzón-Zúñiga, M.A., Buelna, G., Estrada-Arriaga, E.B., 2016. Tylosin effect on methanogenesis in an anaerobic biomass from swine wastewater treatment. *Water Sci. Technol.* 73 (2), 445–452.
- Göbel A, Thomsen A, McArdeell C S, Joss A, Giger W No Title.
- Hameed, B. H. ve Rahman, A. A., (2008), “Removal of Phenol from Aqueous Solutions by Adsorption onto Activated Carbon Prepared from Biomass Material”, *Journal of Hazardous Materials*, 160(2-3):576–581.
- Heberer, T., 2002. Occurrence, Fate, Removal of Pharmaceutical Residues in The Aquatic Environment: A Review of Recent Research Data. *Toxicology Letters*, 131: 5-17.
- H.R. Pouretedal, N. Sadegh, J. *Water Process Eng.* 1 (2014) 64.
- Harkins, W.D., Jura, G. 1944. *Journal Of Chemical Physics*, 66-73.

- Homem, L. Santos, Degradation and removal methods of antibiotics from aqueous matrices – a review, *J. Environ. Manage.* 92 (2011) 2304–2347.
- Halling-Sorensen, B., Nors Nielsen, S., Lanzky, P.F., Ingerslev, F., Holten Luthoft, H.C., Jorgensen, S.E., 1998. Occurrence, fate and effects of pharmaceutical substances in the environment—a review. *Chemosphere* 36 (2), 357–393.
- Homem, V., Santos, L., 2001. Degradation and removal methods of antibiotics from aqueous matrices-A review. *J. Environ. Manage* 92, 2304e2347.
- Hilal, N., Al-Zoubi, H., Darwish, N.A., Mohamma, A.W., Arabi, M.A., 2004. A comprehensive review of nanofiltration membranes: treatment, pretreatment, modelling, and atomic force microscopy. *Desalination* 170 (3), 281–308.
- Hu, H., Wang, Z., Pan, L., 2010. Synthesis of monodisperse Fe₃O₄-silica core-shell microspheres and their application for removal of heavy metal ions from water. *J. Alloys Compd.* 492, 656–661.
- Hu, J., Zhou, S., Zhou, P., Wu, Y., Tsang. Occurrence and fate of antibiotics in a wastewater treatment plant and their biological effects on receiving waters in Guizhou. *Process Safety and Environmental Protection* 113 (2018) 483–490
- Luo, Y., Guo, W., Ngo, H.H., Nghiem, L.D., Hai, F.I., Zhang, J., et al., 2014. A review on the occurrence of micropollutants in the aquatic environment and their fate and removal during wastewater treatment. *Sci. Total Environ.* 473: 619–641.
- Inyinbor, O. S. Bello., A. E. Fadiji., H. E. Inyinbor. Threats from antibiotics: A serious environmental concern, *Journal of Environmental Chemical Engineering* 6 (2018) 784–793
- İEİS (2017), Türkiye’de İlaç: 2017. İlaç Endüstrisi İşverenler Sendikası (İEİS), Ankara. (www.ieis.org.tr).
- Jorfi, Gelavizh Barzegar, Mehdi Ahmadi, Reza Darvishi Cheshmeh Soltani, Nemat alah Jafarzadeh Haghighifard, Afshin Takdastan, Reza Saeedi, Mehrnoosh Abtahi, Enhanced coagulation-photocatalytic treatment of Acid red 73 dye and real textile wastewater using UVA/synthesized MgO nanoparticles S. Jorfi et al. / *Journal of Environmental Management* 177 (2016) 111e118
- Jung, W.G. Kim, Y. Yoon, J.W. Kang, Y.M. Hong, H.W. Kim, *Sci. Total Environ.* 420 (2012) 160.-Utrilla, M. Sa´ nchez-Polo, M. A´ ngeles Ferro-Garci´ a, G. Prados-Joya, R. Ocampo-Pe´ rez, *Chemosphere* 93 (2013) 1268.

- J. Rivera-Utrilla, M. Sa' nchez-Polo, M. A' ngeles Ferro-Garci' a, G. Prados-Joya, R. Ocampo-Pe' rez, *Chemosphere* 93 (2013) 1268.
- Kümmerer, K., Al-ahmad, A., Mersch-sundermann, V. (2000). Biodegradability of Some Antibiotics, Elimination of the Genotoxicity and Affection of Wastewater Bacteria in A Simple Test, *Chemosphere*, 40: 701- 710.
- Kummerer, K., 2009. Antibiotics in the aquatic environment — a review — Part I, *Chemosphere* 75: 417-434.
- Ksü, Fourier Dönüşümlü İnfrared Spektrofotometre Analizleri (FTIR). (Erişim Tarihi: 23.04.2018). <http://faculty.ksu.edu.sa/Alomar/Documents/IR.ppt.pdf>
- Kassinis D, Vasquez M I., Kümmerer K. Transformation products of pharmaceuticals in surface waters and wastewater formed during photolysis and advanced oxidation processes – Degradation, elucidation of byproducts and assessment of their biological potency. *Chemosphere* 85, 693–709, 2011.
- Koçer, O., 2013. Zeytin Posası (Pirina) Üzerine Malaşit Yeşili' nin Sulu Çözeltiden Adsorpsiyonu. Yüksek Lisans Tezi, Kilis 7 Aralık Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Kilis.
- Kay, P.A. Blackwell, A.B. Boxall, Fate of veterinary antibiotics in a macroporous tile drained clay soil, *Environ. Toxicol. Chem.* 23 (2004) 1136–1144.
- Kuyumcu, Bayazit ., M Salam . Antibiotic amoxicillin removal from aqueous solution using magnetically modified graphene nanoplatelets. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry* 36 (2016) 198–205
- Karthikeyan K G, Meyer M T (2006). Occurrence of antibiotics in wastewater treatment facilities in Wisconsin, USA. *Sci. Total Environ.* 361, 196–207.
- Kayacan, S., 2007. Kömür ve koklarla sulu çözeltilerden boyar maddelerin uzaklaştırılması, Yüksek Lisans Tezi, Ankara Üniversitesi, Kimya Anabilim Dalı, Ankara.
- Koçkaya, 2016 . Anilin mavisinin atıksulardan uzaklaştırılmasında yeni bir adsorbent kullanımı. Yüksek Lisans Tezi. İstanbul Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü. İstanbul
- Kyzas, G.Z., Matis, K.A., 2015. Nanoadsorbents for pollutants removal: a review. *J. Mol. Liq.* 203, 159–168.
- Kolpin D., Furlong E., Meyer M., Thurman E., Zaugg S., Barber L., Buxton H. 2002. Pharmaceuticals, hormones and other organic wastewater contaminants in U.S.

- streams, 1999– 2000: a national reconnaissance, *Environ. Sci. Technol.* 36: 1202–1211.
- Kalfa, O.M., Yalçinkaya, O. , Türker, A.R., 2009. Synthesis of nano B₂O₃/TiO₂ composite material as a new solid phase extractor and its application to preconcentration and separation of cadmium. *J. Hazard. Mater.* 166, 455–461.
- Lindberg, R., Jarnheimer, P.A., Olsen, B., Johansson, M., Tysklind, M., 2004. Determination of antibiotic substances in hospital sewage water using solid phase extraction and liquid chromatography/mass spectrometry and group analogue internal standards. *Chemosphere* 57, 1479–1488
- Leung, H.W., Minh, T.B., Murphy, M.B., Lam, J.C., So, M.K., Martin, M., et al., 2012. Distribution, fate and risk assessment of antibiotics in sewage treatment plants in Hong Kong, South China. *Environ. Int.* 42: 1–9.
- Li, G.P. Sheng, Y.Z. Lu, R.J. Zeng, H.Q. Yu, Removal of antibiotic resistance genes from wastewater treatment plant effluent by coagulation, *Water Res.* 111 (2017) 204–212.
- Lindberg, Patrik Wennberg, Magnus I. Johansson, Mats Tysklind, and Barbro A. V. Andersson (2005). Screening of Human Antibiotic Substances and Determination of Weekly Mass Flows in Five Sewage Treatment Plants in Sweden. *Environ. Sci. Technol.* 39, 3421–3429.
- Li, G., Zhang, D., Wang, M., Huang, J., Huang, L., 2013. Preparation of activated carbons from *Iris tectorum* employing ferric nitrate as dopant for removal of tetracycline from aqueous solutions. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 98, 273-282.
- Lin A Y C, Yu T H, Lateef S K (2009). Removal of pharmaceuticals in secondary wastewater treatment processes in Taiwan. *J. Hazard. Mater.* 167, 1163–1169.
- Le-Minh N, Khan S J, Drewes J E, Stuetz R M (2010). Fate of antibiotics during municipal water recycling treatment processes. *Water Res.* 44, 4295–4323.
- Lewinsky, A.A., 2007, *Hazardous materials and wastewater: treatment, removal and analysis*, Nova Science Publishers, New York.
- Lin, Y., Xu, S., Li, J., 2013. Fast and highly efficient tetracyclines removal from environmental waters by graphene oxide functionalized magnetic particles. *Chem. Eng. J.* 225, 679-685.
- Lee , J., Jeon , J., Shin , H., Jang , S., Kim,M., Song , Y., Kim. Quantitative and qualitative changes in antibiotic resistance genes after passing through treatment processes in

- municipal wastewater treatment plants. *Science of the Total Environment* 605–606 (2017) 906–914
- Lucas , M., Fabregat ., Vicent ., Caminal ., Rodríguez-Mozaz ., Balcazar ., D. Barcel. Fungal treatment for the removal of antibiotics and antibiotic resistance genes in veterinary hospital wastewater . *Chemosphere* 152 (2016) 301-308
- Lau, W.J., Ismail, A., 2009. Polymeric nanofiltration membranes for textile dye wastewater treatment: preparation, performance evaluation, transport modelling, and fouling control – a review. *Desalination* 245, 321–348.
- Li, W., Zhang, Y., Tian, G., Xie, S., Xu, Q., Wang, L., Tian, J., Y., 2016. Fabrication of graphene-modified nano-sized red phosphorus for enhanced photocatalytic performance. *J. Mol. Catal. A: Chem.* 423, 356–364.
- Mohammadi, M. Kazemipour, H. Ranjbar, R.B. Walker, M. Ansari, Fuller. 23 (2015) Nanotub. *Carbon Nanostruct.* 165.
- Marx ,N., Günther ., S., Schubert , R., Oertel , M., Ahnert , P., Krebs , V., Kuehn . Mass flow of antibiotics in a wastewater treatment plant focusing on removal variations due to operational parameter. *Science of the Total Environment* 538 (2015) 779–788
- Mehrizad, A., Zare, K., Dashti Khavidaki, H., Dastmalchi, S., Khajeh, M., 2010. Silver nanoparticles for the adsorption of manganese from biological samples. *Biol. Trace Element Res.* 138, 337–345.
- Minh N.L., Khan S.J., Drewes J.E., Stuez R.M., 2010. Fate of antibiotics during municipal waste water recycling treatment processes, *Water Research.* 44: 4295-4323.
- Makowska, Class 1 integrase, sulfonamide and tetracycline resistance genes in wastewater treatment plant and surface water, *Chemosphere* 144 (2016) 1665–1673.
- Mustafaoğlu, D., 2011, Adsorpsiyon ve biyosorpsiyon yöntemiyle fenol giderimi, Yüksek Lisans Tezi, Atatürk Üniversitesi, Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı, Erzurum.
- NG, J. C. Y., Cheung, W. H., Mckay, G., 2003. Equilibrium Studies for the Sorption of Lead From Effluents Using Chitosan. *Chemosphere*, 52: 1021- 1030.
- Memon, C., Kavitha, D. 2002. Removal of Congo Red From Water by Adsorption onto Activated Carbon Prepared From Coir Pith, an Agricultural Solid Waste. *Dyes and Pigments*, 54: 47-58.
- Orya, G. Bricheux, A. Togola, J.L. Bonnet, F. Donnadiou-Bernard, L. Nakusi, C. Forestier, O. Traore, Ciprofloxacin residue and antibiotic-resistant biofilm bacteria in hospital effluent, *Environ. Pollut.* 214 (2016) 635–645.

- Özkal, Arıtılmış Evsel Atıksulardan İnce-Film Fotokataliz Prosesi İle Antibiyotik Ve Escherichia Coliforms Gideriminin Modellenmesi. Doktora Tezi. Namık Kemal Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü. Tekirdağ.266s(2017)
- Öden, M.K., (2015), Renkli Atıksulardan Endüstriyel Atık Malzeme (Liç Atığı) Kullanılarak Adsorpsiyon Sisteminde Boya Giderimi. (Doktora Tezi), Selçuk Üniversitesi
- Ouyang, X., Li, W., Xie, S., Zhai, T., Yu, M., Gan, J., Lu, X., 2013. Hierarchical CeO₂ nanospheres as highly-efficient adsorbents for dye removal. *New J. Chem.* 37 (3), 585–588.
- Pan, Y., Zhang, X.R., 2013. Four groups of new aromatic halogenated disinfection byproducts: effect of bromide concentration on their formation and speciation in chlorinated drinking water. *Environ. Sci. Technol.* 47 (3), 1265e1273.
- Petricic, I., Andersen, N.P.R., Sostar-Turk, S., Le Marechal, A.M., 2007. The removal of reactive dye printing compounds using nanofiltration. *Dyes Pigm.* 74, 512–518.
- Putra, R. Pranowo, J. Sunarso, N. Indraswati, S. Ismadji, *Water Res.* 43 (2009) 2419.
- Pan, L.M., Chu . Occurrence of antibiotics and antibiotic resistance genes in soils from wastewater irrigation areas in the Pearl River Delta region, southern China. *Science of the Total Environment* 624 (2018) 145–152
- Patrolecco, S. Capri., N. Ademollo. Occurrence of selected pharmaceuticals in he principal sewage treatment plants in Rome (Italy) and in the receiving surface waters, *Environ. Sci. Pollut. Res.* 22 (2015) 5864–5876.
- Qu, X., Brame, J., Li, Q., Alvarez, P.J., 2012. Nanotechnology for a safe and sustainable water supply: enabling integrated water treatment and reuse. *Acc. Chem. Res.* 46 (3), 834–843.
- Ronquillo, M.G., Hernandez, J.C.A., 2017. Antibiotic and synthetic growth promoters in animal diets: review of impact and analytical methods. *Food Control* 72: 255–267.
- Robinson, I., Junqua, G., Van Coillie, R., Thomas, O., 2007. Trends in the detection of pharmaceutical products, and their impact and mitigation in water and wastewater in North America. *Anal. Bioanal. Chem.* 387, 1143–1151.
- Rivera-Utrilla, J., Prados-Joya, G., Sanchez-Polo, M., Ferro- Garcia, M.A., Bautista-Toledo, I., 2009. Removal of nitroimidazole antibiotics from aqueous solution by adsorption/bioadsorption on activated carbon. *Journal of Hazardous Materials* 170 (1), 298-305.

- Richardson, M.L., Bowron, J.M., 1985. The Fate Of Pharmaceutical Chemicals in The Aquatic Environment. *J. Pharm. Pharmacol.* 37 (1), 1-12.
- Rivera-Utrilla, M. Sa´ nchez-Polo, M. A´ ngeles Ferro-Garci´ a, G. Prados-Joya, R. Ocampo-Pe´ rez, *Chemosphere* 93 (2013) 1268.
- Rizzo , Michael I., McArdeall C S, Manaia C M, Merlin C, Schwartz T, Dagot C, Fatta-Kassinos D (2013)a. Urban wastewater treatment plants as hotspots for the release of antibiotics in the environment: A review. *Water Res.* 47, 957–995.
- Rizzo, C. Manaia, C. Merlin, T. Schwartz, C. Dagot, M.C. Ploy, I. Michael, D. Fatta-Kassinos, Urban wastewater treatment plant as hotspots for antibiotic resistant bacteria and gene spread in the environment: a review, *Sci. Total Environ.* 447 (2013) 345–360.
- Roberts, Thomas K V (2006). The occurrence of selected pharmaceuticals in wastewater effluent and surface waters of the lower Tyne catchment. *Sci. Total Environ.* 356, 143–153.
- Rao, L.N., 2014. Nanotechnological methodology for treatment of wastewater. *Int. J. Chem. Tech. Res.* 6 (4), 2529.
- Rashidi, H.R., Sulaiman, N.N., Hashim, N.A., 2012. Batik industry synthetic wastewater treatment using nanofiltration membrane. *Proc. Eng.* 44, 2010–2012.
- Schwarzenbach, R.P., Gschwend, P.M., Imboden, D.M., 2006. *Environmental Organic Chemistry.* John Wiley And Sons, New Jersey.
- Smith, J.A., Galan, A., 1995, Sorption of non-ionic organic contaminants to single and dual organic cation bentonite from water, *Environ. Sci. Technol.* 29, 685–692.
- Shia, T.,Yeapa, S., Huanga, J., Chenb, H.,Nga. Pretreatment of saline antibiotic wastewater using marine microalga. *Bioresource Technology* 258 (2018) 240–246
- Şahinođlu, G., 2013, Perlit ve mangan oksit modifiye edilmiş perlit adsorbentleri kullanılarak sulu çözeltilerden sb(III) iyonlarının uzaklaştırılması işleminin fizikokimyasal parametrelerinin incelenmesi, Yüksek Lisans Tezi, Gaziosmanpaşa Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Anabilim Dalı,Tokat.
- Sadegh, H., Shahryari-Ghoshekandi, R., Kazemi, M., 2014. Study in synthesis and characterization of carbon nanotubes decorated by magnetic iron oxide nanoparticles. *Int. Nano Lett.* 4, 129–135.
- Saliby, I.J., Shon, H., Kandasamy, J., Vigneswaran, S., 2008. Nanotechnology for wastewater treatment: in brief. *Encyclopedia of Life Support Syst. (EOLSS)*.

- Sabria, H., Schmittb, B., V., Zaanc, H.W., Gerritsend, T., Zuidemad, H.H.M., Rijnaartsa, A.A.M., Langenhoffa. Prevalence of antibiotics and antibiotic resistance genes in a wastewater effluent-receiving river in the Netherlands *Journal of Environmental Chemical Engineering*. 2213-3437/ © 2018
- Sadık E., 2011. MR Uygulamalarının Dental Amalgamdaki Faz Değişiklikleri ve Cıva Buharlaştırması Üzerine Etkilerinin XRD ve XPS Yöntemleri İle İncelenmesi. Doktora Tezi, Gazi Üniversitesi Sağlık Bilimleri Enstitüsü, Ankara.
- Silva, L.A. Sitta., Fragal., Thelma S.P. Cellet, Marcos R. Mauricio, Francielle P. Garcia, Celso V. Nakamura, Marcos R. Guilherme, Adley F. Rubira, Marcos H. Kunita, Covalent TiO₂/pectin microspheres with Fe₃O₄ nanoparticles formagnetic field-modulated drug delivery. *International Journal of Biological Macromolecules* 67 (2014) 43–52
- Sönmez, N.A., .2014. Sulardan adsorpsiyon yöntemi ile bor giderimi . Yüksek Lisans Tezi. Pamukkale Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü. Denizli
- Tosun, İ., 2009. Alünit-Potasyum Klorür Karışımı Termal Bozunma Ürününün Sulu Çözeltilerden Boya ve Fosfat Gideriminde Kullanılabilirliği. Doktora Tezi, Eskişehir Osmangazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Eskişehir.
- Theron, J., Walker, J.A., Cloete, T.E., 2008. Nanotechnology and water treatment: applications and emerging opportunities. *Crit. Rev. Microbiol.* 34, 43–69.
- Tiwari., Sellamuthu B., Ouarda Y., Drogui P., Tyagi R. D. , Buelna G., 2017. Review on fate and mechanism of removal of pharmaceutical pollutants from wastewater using biological approach. *Bioresource Technology* 224:1-12.
- Verlicchi, M. Al Aukidy, E. Zambello, 2015 What have we learned from worldwide experiences on the management and treatment of hospital effluent? — an overview and a discussion on perspectives, *Sci. Total Environ.* 467–491.
- Vasquez, A. Lambrianides, M. Schneider, K. Kümmerer, D. Fatta-Kassinos, J. Hazard. *Mater.* 279 (2014) 169.
- Välitalo P., Antonina Kruglova A., , Mikola A., Riku Vahala R., Toxicological impacts of antibiotics on aquatic micro-organisms: Amini-review 2017. *International Journal of Hygiene and Environmental Health* (in press).
- WHO(World Health Organization), 2015. Drinking-water: Fact sheet No. 391 www.who.int/mediacentre/factsheets/fs391/en/.pdf.
- Weng, W. Cai, S. Lin, Z. Chen. Degradation mechanism of amoxicillin using clay supported nanoscale zerovalent iron. *Applied Clay Science* 147 .(2017) 137–142

- Weng, Z. Chena., Zuliang Chena, Mallavarapu Megharaj, Ravendra Naidu. Clay supported bimetallic Fe/Ni nanoparticles used for reductive degradation of amoxicillin in aqueous solution: Characterization and kinetics. *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects* 443 .(2014) 404– 409
- Weng, W. Cai., Ruifang Lan , Qian Sun, Zuliang Chen. Simultaneous removal of amoxicillin, ampicillin and penicillin by clay supported Fe/Ni bimetallic nanoparticles. *Environmental Pollution* 236 .(2018) 562-569
- Watkinson ,A J., Murby E J., Costanzo S D (2007). Removal of antibiotics in conventional and advanced wastewater treatment: Implications for environmental discharge and wastewater recycling. *Water Res.* 41, 4164–4176.
- Waranusantigu L, P., Pokethitayook, P., Kruatrachue, M., Upatham, E. S., 2003. Kinetics Of Basic Dye (Methylene Blue) Biosorption By Giant Duckweed (*Spirodela polyrrhiza*). *Environmental Pollution*, 125:385-392.
- Wong, Y. C., Szeto, Y. S., Cheung, W.H., McKay, G., 2004. Adsorption of Acid Dyes On Chitosan –Equilibrium Isotherm Analyses. *Process Biochem.*,39:693-702.
- Weber, W.J., and Morris, J.C., 1964, Kinetics of adsorption on carbon from solution, *J. Saint Eng Div Am Soc Civ Eng.*, 89: 31-39.
- Wei, J., Liang, P. & Huang, X. Recent progress in electrodes for microbial fuel cells. *Bioresour. Technol.* 102, 9335-9344 Article .Literature Review in *Bioresource Technology* 102(20):9335-
- Xu, W.H., Zhang, G., Zou, S.C., Li, X.D., Liu, Y.C., 2007. Determination of selected antibiotics in the Victoria Harbour and the Pearl River, South China using highperformance liquid chromatography-electrospray ionization tandem mass spectrometry. *Environ. Pollut.* 145, 672-679.
- Y. Luo, Q., Wang, Q. Lu, Q. Mu, D. Mao, An ionic liquid facilitates the proliferation of antibiotic resistance genes mediated by class I Integrons, *Environ. Sci. Technol. Lett.* 1 (5) (2014).
- Yang S, Carlson K (2004). Solid-phase extraction–high-performance liquid chromatography–ion trap mass spectrometry for analysis of trace concentrations of macrolide antibiotics in natural and waste water matrices. *J. Chromatogr. A* 1038, 141–155.
- Yasojima M, Nakada N, Komori K, Suzuki Y, Tanaka H (2006). Occurrence of levofloxacin, clarithromycin and azithromycin in wastewater treatment plant in Japan. *Water Sci. Technol.* 53, 227–233.

- Yener, J. 1997. Atık Sulardaki Fenol ve Klorofenollerin Adsorpsiyon Yöntemi ile Giderilmesi, Yüksek lisans tezi. Hacettepe Üniversitesi, 108 s., Ankara.
- Zare, K., Najafi, F., Sadegh, H., 2013. Studies of ab initio and Monte Carlo simulation on interaction of fluorouracil anticancer drug with carbon nanotube. J. Nanostruct. Chem. 3, 1–8.
- Zha, Y. Zhou., X. Jin., Z. Chen . The removal of amoxicillin from wastewater using organobentonite. Journal of Environmental Management 129 (2013) 569-576
- Hameed, B. H., El-Khaiary, M. I., 2008, “Batch Removal of Malachite Green from Aqueous Solutions by Adsorption on Oil Palm Trunk Fibre: Equilibrium Isotherms and Kinetic Studies”, Journal of Hazardous Materials, Vol. 154 (1-3), pp. 237–244.
- Tasmakıran, A.F., 2010. Zirai yan ürünlerin modifiye edilerek yeni adsorbanların hazırlanması ve boyaların adsorpsiyonu. Yüksek Lisans Tezi. Selçuk Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü. Konya.

ÖZGEÇMİŞ

Kişisel Bilgiler

Adı, soyadı : Esin KAYAN
Uyruğu : T.C.
Doğum tarihi : 22.07.1990
Medeni hali : Bekar
e-posta : esinkayan_46@hotmail.com

Eğitim

Derece	Eğitim Birimi	Mezuniyet tarihi
Yüksek lisans	KSÜ / Çevre Mühendisliği Bölümü	2018
Lisans	KSÜ/ Çevre Mühendisliği Bölümü	2014
Lise	Kahramanmaraş Anadolu Lisesi	2008

İş Denevimi

Yıl	Yer	Görev
2018	PAKSOY TMGDK	Tehlikeli Madde Güvenlik Danışmanı

Yabancı Dil

İngilizce