



T.C.  
EGE ÜNİVERSİTESİ  
Fen Bilimleri Enstitüsü



# SEPIYOLİT KATKILI BİYOKOMPOZİTLERİN SENTEZLENMESİ VE STRONSIYUM GİDERİMİNDE KULLANIMININ İNCELENMESİ

Yüksek Lisans Tezi

Yasemin Demet ÖZCAN

Nükleer Bilimler Anabilim Dalı

İzmir  
2025

T.C.  
EGE ÜNİVERSİTESİ  
Fen Bilimleri Enstitüsü

**SEPIYOLİT KATKILI BİYOKOMPOZİTLERİN  
SENTEZLENMESİ VE STRONSIYUM GİDERİMİNDE  
KULLANIMININ İNCELENMESİ**

Yasemin Demet ÖZCAN

Danışman: Prof. Dr. Şule AYTAS

Nükleer Bilimler Anabilim Dalı

Nükleer Teknoloji Yüksek Lisans Programı

Bornova-İzmir

2025

## EGE ÜNİVERSİTESİ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

### ETİK KURALLARA UYGUNLUK BEYANI

EÜ Lisansüstü Eğitim ve Öğretim Yönetmeliğinin ilgili hükümleri uyarınca Yüksek Lisans Tezi olarak sunduğum “Sepiyolit Katkılı Biyokompozitlerin Sentezlenmesi ve Stronsiyum Gideriminde Kullanımının İncelenmesi” başlıklı bu tezin kendi çalışmam olduğunu, sunduğum tüm sonuç, doküman, bilgi ve belgeleri bizzat ve bu tez çalışması kapsamında elde ettiğimi, bu tez çalışmasıyla elde edilmeyen bütün bilgi ve yorumlara atıf yaptığımı ve bunları kaynaklar listesinde usulüne uygun olarak verdiğimi, tez çalışması ve yazımı sırasında patent ve telif haklarını ihlal edici bir davranışımın olmadığını, bu tezin herhangi bir bölümünü bu üniversite veya diğer bir üniversitede başka bir tez çalışması içinde sunmadığımı, bu tezin planlanmasından yazımına kadar bütün safhalarda bilimsel etik kurallarına uygun olarak davrandığımı ve aksinin ortaya çıkması durumunda her türlü yasal sonucu kabul edeceğimi beyan ederim.

03 / 02 / 2025

İmza

Yasemin Demet ÖZCAN

**ÖZET****SEPIYOLİT KATKILI BİYOKOMPOZİTLERİN  
SENTEZLENMESİ VE STRONSIYUM GİDERİMİNDE  
KULLANIMININ İNCELENMESİ**

ÖZCAN, Yasemin Demet

Yüksek Lisans Tezi, Nükleer Bilimler Anabilim Dalı

Tez Danışmanı: Prof. Dr. Şule AYTAŞ

Şubat 2025, 66 sayfa

Yüksek lisans tez çalışmasında, aljinat biyopolimeri ile desteklenmiş sepiyolit kili doğal malzemesinden biyokompozit adsorban elde edilmiştir. Hazırlanan biyokompozit adsorbanın sulu çözeltilerinden Sr (II) iyonlarının giderimindeki kullanımı ele alınmıştır. Oluşan biyokompozit adsorbanın bileşenlerinin karakteristik özelliklerinin incelenmesinden dolayı ICP-OES, FT-IR, XRD, SEM, SEM-EDX, XRF ve BET analiz metotları kullanılmıştır.

Biyokompozit adsorban ile Sr (II) iyonlarının giderimini sağlamak sebebiyle kesikli(batch) proses yöntemi kullanılmıştır. Çözelti başlangıç pH'si, sıcaklık, temas süresi, Sr konsantrasyonu ve v/m oranı gibi parametrelerin Sr (II) iyonlarının ortamdan gideriminde etkileri araştırılmış bununla birlikte optimum alım koşulları bulunmuştur. Biyokompozit adsorbanın Sr giderimindeki varlığının belirlenmesi için % adsorpsiyon verimi bulunmuştur.

Stronsiyumun, sepiyolit katkı aljinat adsorbanındaki adsorpsiyon olayının, Freundlich, Langmuir ve Dubinin-Radushkevich (D-R) izotermine uyumluluk durumu incelenmiştir. Ayrıca adsorban için sıcaklık ile değişkenlik gösteren termodinamik değerler;  $\Delta G^\circ$ ,  $\Delta S^\circ$  ve  $\Delta H^\circ$  hesaplanmış ve adsorpsiyonun ekzotermik karakterde olduğu belirlenmiştir.

**Anahtar sözcükler:** Sepiyolit, stronsiyum, adsorpsiyon, sodyum aljinat.

**ABSTRACT**

**SYNTHESIS OF SEPIOLITE DOPED BIOCOMPOSITES**

**AND**

**INVESTIGATION OF THEIR USE IN STRONTIUM REMOVAL**

ÖZCAN, Yasemin Demet

MSc in Department of Nuclear Sciences

Supervisor: Prof. Dr. Şule AYTAŞ

February 2025, 66 pages

In the master's thesis study, a biocomposite adsorbent was obtained from the natural material sepiolite clay supported with alginate biopolymer. The use of the prepared biocomposite adsorbent in the removal of Sr (II) ions from aqueous solutions is discussed. ICP-OES, FT-IR, XRD, SEM, SEM-EDX, XRF and BET analysis methods were used to examine the characteristics of the components of the resulting biocomposite adsorbent.

Batch process method was used to ensure the removal of Sr (II) ions with biocomposite adsorbent. The effects of parameters such as solution initial pH, temperature, contact time, Sr concentration and v/m ratio on the removal of Sr (II) ions from the environment were investigated, and optimum uptake conditions were found. % adsorption efficiency was found to determine the presence of the biocomposite adsorbent in Sr removal.

The compatibility of the adsorption of strontium in sepiolite-doped alginate adsorbent with Freundlich, Langmuir and Dubinin-Radushkevich (D-R) isotherms was examined. In addition, thermodynamic values for the adsorbent that vary with temperature;  $\Delta G^\circ$ ,  $\Delta S^\circ$  and  $\Delta H^\circ$  were calculated and it was determined that the adsorption was exothermic.

**Keywords:** Sepiolite, strontium, adsorption, sodium alginate.

## ÖNSÖZ

Günümüzde artan çevre kirliliğini önlemek amacıyla yoğun bir şekilde arařtırmalar yürütölmektedir. Farklı sektörlerden kaynaklanarak çevresel sorunlara yol açan ağır metallerin, nükleer endüstrilerden çıkan atıkların arıtılması/iřlenmesi ve dekontaminasyonu, nükleer yakıt teknolojisinden kaynaklanan radyoaktif elementlerin arıtılması, ayrıştırılması ve yoğunlaştırılması konularında ekonomik yöntemler geliştirilmesi, çevre dostu, düşük maliyetli ve teknolojik bakımdan uygulanabilir malzemelere ve yöntemlere ihtiyaç duyulmaktadır. Endüstriyel atıkların arıtılmasında en genel kullanılan metotlar arasında elektrokimyasal teknikler, çöktürme, iyon deęiřimi, adsorpsiyon ve membran süreçleri bulunmaktadır. Bu yöntemlere alternatif olarak, biyolojik malzeme (biyokütle) kullanılarak gerçekleştirilen adsorpsiyon, dięer bir deyiřle biyosorpsiyon, son yıllarda geliřen yenilikçi bir teknik olarak öne çıkmaktadır.

Nükleer atıkların güvenli yönetimi, uzun yarı ömürlü ve yüksek aktiviteye sahip izotopların seçici olarak ayrılmasını gerektirir. Bunun için termal, kimyasal ve radyasyona dayanıklı, yüksek kapasiteli sorbentlere ihtiyaç duyulmaktadır. Atıklar arasında en önemli radyonüklitler, yüksek aktiviteye sahip fisyon ürünleridir. Bu nedenle, fisyon ürünlerinin ortamdaki ayrılarak katılařtırılması kritik öneme sahiptir. Atık içinde çeřitli radyonüklitler bulursa da özellikle sezyum ve stronsiyum en önemli fisyon ürünleri olarak öne çıkmaktadır.

Aljinat biyopolimeri ile desteklenmiř sepiyolit kili doęal malzemesinden oluřan biyokompozitlerin sentezlenerek yapısal özelliklerinin incelenmesi ve stronsiyum iyonlarının sulu ortamdaki gideriminde kullanılabilirlięinin incelenmesi amaçlanmıřtır. Bu amaçla doęal, güvenli, çevre dostu, sepiyolit kili kullanılarak aljinat ile biyokompozitlerin sentezlenmesi, karakterizasyon ve yapısal özelliklerinin incelenmesi ve stronsiyum iyonlarının gideriminde kullanılabilmesi planlanmıřtır. Bu noktadan hareketle bu yüksek lisans tez projesi, biyokompozit sorbent hazırlama ve uygulama sahası açısından özgün bir deęer taşıyacaktır.

Bu çalışmanın konusunu belirleme hususunda bana yardımcı olan, tez yazım sürecinde bana yol gösteren, benden sabrını, vaktini ve desteęini esirgemeyen kıymetli danıřmanım ve saygıdeęer hocam Prof. Dr. řule Aytař'a sonsuz teřekkürlerimi sunar; ayrıca bu süreçte her daim yanımda olan desteklerini hep üzerimde hissettięim canım aileme teřekkür ederim.

İZMİR

03/02/2025

Yasemin Demet ÖZCAN

**İÇİNDEKİLER**

	<u>Sayfa</u>
İÇ KAPAK .....	ii
KABUL ONAY SAYFASI .....	iii
ETİK KURALLARA UYGUNLUK BEYANI.....	v
ÖZET .....	vii
ABSTRACT .....	viii
ÖNSÖZ .....	ix
İÇİNDEKİLER DİZİNİ.....	x
ŞEKİLLER DİZİNİ .....	xv
ÇİZELGELER DİZİNİ.....	xvii
SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ .....	xviii
1.GİRİŞ.....	1
2.GENEL BİLGİLER.....	3
2.1 Stronsiyum ve Özellikleri.....	3
2.1.1 Stronsiyum izotopları .....	3
2.1.2 Radyoaktif Stronsiyum-90.....	4
2.2 Sepiyolit ve Özellikleri.....	5
2.2.1 Fiziksel özellikleri .....	8

**İÇİNDEKİLER (devam)**

	<u>Sayfa</u>
2.2.2 Fizikokimyasal özellikleri .....	8
2.2.3 Katalitik özelliği .....	10
2.2.4 Reolojik özelliği .....	10
2.3 Aljinat .....	11
2.3.1 Aljinat molekülünün kimyasal yapısı .....	11
2.3.2 İki değerlikli katyonlarla aljinatın jel oluşturması.....	12
2.4 Biyokompozit Malzemeler .....	14
2.4.1 Kompozit-Biyokompozit malzemeler .....	14
2.4.2 Hidrojeller ve hidrojel kompozitler .....	15
2.5 Adsorpsiyon.....	16
2.5.1 Adsorpsiyon izotermi .....	16
2.5.1.1 Langmuir izotermi .....	17
2.5.1.2 Freundlich izotermi .....	19
2.5.1.3 Dubinin-Radushkevich(D-R) izotermi .....	20
2.5.2 Adsorpsiyon termodinamiği .....	21
2.5.3 Adsorpsiyonu etkileyen faktörler .....	22
2.5.3.1 pH .....	22

**İÇİNDEKİLER (devam)**

	<u>Sayfa</u>
2.5.3.2 Sıcaklık .....	23
2.5.3.3 Yüzey alanı .....	24
2.5.3.4 Adsorplanan maddenin yapısı .....	24
3. MATERYAL VE YÖNTEM.....	26
3.1 Yöntem .....	26
3.1.1 Sodyum aljinat, sepiyolit ve hidrojel küreciklerin hazırlanması. ....	27
3.2 Kullanılan Cihazlar ve Karakterizasyon Teknikleri .....	31
3.2.1 ICP-OES (İndüktif eşleşmiş plazma optik emisyon spektrometresi). ....	31
3.2.2 FTIR (Fourier dönüşümlü kızılötesi) spektroskopisi.....	32
3.2.3 XRD (X-ışını kırınımı). ....	33
3.2.4 SEM (Taramalı elektron mikroskobu).....	34
3.2.5 XRF (X-ışını Floresansı) .....	35
3.2.6 BET (Yüzey alanı ölçüm cihazı) .....	35
3.3 Stronsiyum Alım Denemeleri.....	36
3.4 Uygulamalar .....	37
3.4.1 Matriks iyonlar olan ortamda adsorpsiyon davranışının incelenmesi .....	37
4. BULGULAR VE TARTIŞMA.....	38

**İÇİNDEKİLER (devam)**

	<u>Sayfa</u>
4.1 Adsorbanların Yapısal Karakterizasyonları.....	38
4.1.1 FT-IR spektrumundan elde edilen bulgular.....	38
4.1.2 XRD (X-ışını kırınımı) sonuçları .....	39
4.1.3 XRF (X-ışını Floresansı) sonuçları .....	40
4.1.4 BET (yüzey alanı ölçümü) sonuçları.....	41
4.1.5 SEM (Taramalı elektron mikroskopu) ve SEM-EDX sonuçları .....	41
4.2 Stronsiyum Adsorpsiyon Koşullarının Araştırılması .....	43
4.2.1 pH etkisi.....	43
4.2.2 Stronsiyum derişiminin etkisi.....	44
4.2.3 Çalkalama süresinin etkisi.....	45
4.2.4 Biyokütle dozunun (V/m oranı) etkisi.....	46
4.2.5 Sıcaklığın etkisi .....	47
4.2.6 Yabancı iyon etkisi .....	47
4.3 Uygun Sr (II) Adsorpsiyon Koşulları .....	48
4.4 Sr (II) Adsorpsiyonunda Termodinamik Özellikler .....	49
4.5 Adsorpsiyon İzotermi.....	50
4.5.1 Langmuir izotermi .....	50

**İÇİNDEKİLER (devam)**

	<u>Sayfa</u>
4.5.2 Freundlich izotermi .....	52
4.5.3 Dubinin-Radushkevich izotermi.....	53
5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER .....	55
KAYNAKLAR DİZİNİ.....	58
TEŞEKKÜR .....	65
ÖZGEÇMİŞ.....	66

## ŞEKİLLER DİZİNİ

<u>Şekil</u>	<u>Sayfa</u>
2.1 Sepiyolitın elektron mikroskobundaki görünümü .....	6
2.2 Sepiyolitın yapısı .....	7
2.3 Tekrarlanan aljinat birimleri .....	12
2.4 Aljinat molekülünün yumurta kutusu modeli .....	13
2.5 Hidrojelin basit yapısı .....	15
3.1 Kullanılan sepiyolit, CaCl <sub>2</sub> ve NaAlg. ....	27
3.2 Manyetik karıştırıcıda oluşan hidrojel kürecikler .....	28
3.3 Çap ölçüm örneği .....	28
3.4 Islak hidrojel kürecikler .....	29
3.5 Süzme işlemi örneği .....	30
3.6 pH değerinin etkisi .....	30
3.7 X-ışını kırınımı tekniği .....	34
3.8 Alan emisyon SEM cihazı (QUANTA 400F) .....	34
4.1 Sepiyolit örneğinin FT-IR spektrumu .....	38
4.2 Sepiyolit katkılı aljinat örneğinin FT-IR spektrumu .....	38
4.3 Sepiyolit örneğinin XRD grafiği .....	39
4.4 Sepiyolit örneğine ilişkin XRD patternleri .....	40

**ŞEKİLLER DİZİNİ (devam)**

<u>Şekil</u>	<u>Sayfa</u>
4.5 Sepiyolit örneğine ait SEM görüntüleri.....	42
4.6 Sepiyolit-aljinat örneğine ait SEM görüntüleri .....	42
4.7 Sepiyolite ait EDX sonuçları .....	43
4.8 Sr (II) adsorpsiyonuna pH'nin etkisi .....	44
4.9 Sr (II) iyonu adsorpsiyonunda derişimin etkisi .....	45
4.10 Sr adsorpsiyonuna çalkalama süresinin etkisi .....	45
4.11 Sr adsorpsiyonuna V/m oranının etkisi .....	46
4.12 Sr adsorpsiyonuna sıcaklığın etkisi .....	47
4.13 Adsorpsiyona metal iyonların etkisi.....	48
4.14 Sr (II) adsorpsiyonu lnKd- 1/T grafiđi .....	49
4.15 SKA- Sr (II) adsorpsiyonu Langmuir adsorpsiyon izotermi .....	51
4.16 SKA- Sr (II) adsorpsiyonu Freundlich izotermi.....	52
4.17 SKA- Sr (II) adsorpsiyonu D-R izotermi.....	53

**ÇİZELGELER DİZİNİ**

<u>Çizelge</u>	<u>Sayfa</u>
2.1 Sr-90 ve Y-90'ın radyoaktif özellikleri.....	5
4.1 Sepiyolit için EDXRF sonuçları .....	40
4.2 BET analiz neticeleri .....	41
4.3 Sr (II) adsorpsiyonu için en iyi sonuçlar .....	48
4.4 Sr (II) adsorpsiyonu termodinamik parametreleri .....	50
4.5 SKA- Sr (II) adsorpsiyonuna ilişkin Langmuir, Freundlich ve D-R sabitleri..	54

**SİMGE VE KISALTMALAR DİZİNİ**

<u>Simgeler</u>	<u>Açıklama</u>
$Q_{en}$	gram adsorbanın adsorpladığı iyon miktarı.
$\Delta H$	Entalpi
$\Delta S$	Entropi
$\Delta G$	Gibbs serbest enerjisi.

Kısaltmalar

TAEK	Türkiye Atom Enerjisi Kurumu.
DPT	Devlet Planlama Teşkilatı.
FAO	Food and Agriculture Organization.
MTA	Maden Tetkit ve Arama Enstitüsü.
U.S.EPA	United States Environmental Protection Agency.
SKA	Sepiyolit Katkılı Aljinat.
UNLV	Nevada Üniversitesi, Las Vegas.

## 1.GİRİŞ

Günümüzde artan çevre kirliliğini önlemek amacıyla yoğun bir şekilde arařtırmalar yürütölmektedir. Farklı sektörlerden kaynaklanarak çevresel sorunlara yol açan ağır metallerin, nükleer endüstrilerden çıkan atıkların arıtılması/işlenmesi ve dekontaminasyonu, nükleer yakıt teknolojisinden kaynaklanan radyoaktif elementlerin arıtılması, ayrıştırılması ve yoğunlaştırılması konularında ekonomik yöntemler geliştirilmesi, çevre dostu, düşük maliyetli ve teknolojik bakımdan uygulanabilir malzemelere ve yöntemlere ihtiyaç duyulmaktadır. Radyoaktif elementlerin ve metallerin yoğunlaştırılması amacıyla ekstraksiyon, iyon deęiřimi, yüzey tutunumu ve birlikte çöktürme gibi metotlar geleneksel sıklıkla tercih edilmektedir.

Endüstriyel atıkların arıtılmasında en genel kullanılan metotlar arasında elektrokimyasal teknikler, çöktürme, iyon deęiřimi, adsorpsiyon ve membran süreçleri bulunmaktadır. Bu yöntemlere alternatif olarak, biyolojik malzeme (biyokütle) kullanılarak gerçekleştirilen adsorpsiyon, dięer bir deyiřle biyosorpsiyon, son yıllarda gelişen yenilikçi bir teknik olarak öne çıkmaktadır. Genel anlamda, bir çözeltiden metallerin biyokütle kullanılarak giderilmesi biyosorpsiyon olarak ifade edilmektedir.

Nükleer atıkların güvenli yönetimi, uzun yarı ömürlü ve yüksek aktiviteye sahip izotopların seçici olarak ayrılmasını gerektirir. Bunun için termal, kimyasal ve radyasyona dayanıklı, yüksek kapasiteli sorbentlere ihtiyaç duyulmaktadır. Atıklar arasında en önemli radyonüklitler, yüksek aktiviteye sahip fisyon ürünleridir. Bu nedenle, fisyon ürünlerinin ortamdaki ayrılarak katılařtırılması kritik öneme sahiptir. Atık içinde çeřitli radyonüklitler bulunsada özellikle sezyum ve stronsiyum en önemli fisyon ürünleri olarak öne çıkmaktadır.

<sup>90</sup>Sr, dokulara nüfuz ettięinde kalsiyumla benzer şekilde reaksiyon göstererek iskelet sisteminde ve diř yapısında kolayca birirmektedir. Bu birikim, hassas dokularda radyasyon etkisiyle kanser gibi hücresel deformasyonlara yol açma riskini artırmaktadır. Bu sebeple, beklenmedik bir kontaminasyon durumunda, özellikle içme suyu kaynaęı olarak kullanılan yüzey sularından bu radyonüklitlerin hızlı ve etkili bir şekilde uzaklařtırılması hayati önem taşımaktadır.

Son yıllarda biyolojik karakterli, toksik olmayan doęal polimerlerin kullanıldığı biyokompozit ve nanokompozitlerin tasarlanması, sentezlenmesi ve ağır metallerin/radyoaktif elementlerin giderilmesinde kullanılmasına ilişkin çalışmalar oldukça önem kazanmış durumdadır. Yakın bir zamanda nükleer güç santrali ile nükleer teknolojiye geçecek olan ölkemizde, herhangi bir nükleer kontaminasyon kontrolünde kullanılmak üzere radyonüklit giderme ve immobilizasyon ajanlarının (çevre dostu, etkili, güvenli, ekonomik, hızlı reaksiyon veren ve toksik olmayan) hazırlanması ve uygulanması hayati bir öneme sahiptir.

Bu yüksek lisans araştırmasından, aljinat biyopolimeri ile desteklenmiş sepiyolit kili doğal malzemesinden oluşan biyokompozitlerin sentezlenerek yapısal özelliklerinin incelenmesi ve stronsiyum iyonlarının sulu ortamdan gideriminde kullanılabilirliğinin incelenmesi amaçlanmıştır. Bu amaçla doğal, güvenli, çevre dostu, sepiyolit kili kullanılarak, aljinat ile biyokompozitlerinin sentezlenmesi, karakterizasyon ve yapısal özelliklerinin incelenmesi ve stronsiyum iyonlarının gideriminde kullanılabilmesi planlanmıştır. Bu noktadan hareketle bu yüksek lisans tez projesi, biyokompozit sorbent hazırlama ve uygulama sahası açısından özgün bir değer taşıyacaktır.

Sepiyolit-aljinat kompozit adsorbanın yapısal özellikleri ve yapı analizi, FTIR (Fourier dönüşümlü kızılötesi spektroskopisi), ICP-OES (İndüktif eşleşmiş plazma optik emisyon spektrometresi), XRF (X-Işını floresans yöntemi), BET (Yüzey alanı analizi), XRD (X-ışını kırınım yöntemi), SEM (Elektron mikroskobu tarama sistemi) ve SEM-EDX cihazları kullanılarak detaylı bir şekilde incelenmiştir.

Sepiyolit ve alginattan oluşan kompozit adsorban kullanılarak Sr (II) iyonlarının sulu çözeltilerden uzaklaştırılma etkinliği kesikli bir prosesle değerlendirilmiştir. Çalışmada, farklı deneysel parametrelerin etkileri incelenerek maksimum yüzeye tutunma koşulları belirlenmiştir. Ayrıca, enerji dönüşüm parametreleri matematiksel olarak belirlenmiştir ve adsorpsiyon izotermine uygun olup olmadığı incelenmiştir.

## 2.GENEL BİLGİLER

### 2.1 Stronsiyum ve Özellikleri

Stronsiyum elementinin kimyasal özellikleri kalsiyuma oldukça benzerlik gösterir. Az miktarlarda bulunsa da doğada yaygın bir element olan stronsiyum, volkanik kayaç minerallerindeki kalsiyum ve potasyumun yerine geçebilir (Hem et al, 1985).

Doğal olarak oluşan, havada hızla sarımsı hale gelen gümüş renkli bir metal olan Stronsiyum (Sr) radyoaktif değildir. En yaygın nükleer tıp ve endüstride kullanılan, insan yapımı olan Stronsiyum-90 radyoaktif formdadır. Ayrıca 1950'lerde ve 1960'larda gerçekleşen nükleer testlerden, çevrede ve nükleer reaktör atıklarında Stronsiyum-90 bulunmuştur. Stronsiyum-90, 1950'li ve 1960'lı yıllarda nükleer silahların atmosferik denemeleri sonucu çevreye ve besin zincirine yaygın olarak dağılmıştır. Kirlenmiş toprakta veya yakınında yetişen bitkiler ve mahsuller topraktan az miktarda Sr-90 alabilir. Testlerden elde edilen mevcut seviyeler o zamandan beri stronsiyum aktivitesinin yavaş yavaş azaldığını göstermektedir. Stronsiyum-90 solunabilir ancak yiyecek ve su yoluyla bünyeye alınması en büyük sağlık endişesidir. Vücuda girdiğinde, Sr-90 kalsiyum gibi davranarak kemiklere ve dişlere kolayca dahil olur sonucunda kemik, kemik iliği ve kemik etrafındaki yumuşak dokularda kansere neden olabilir (U.S.EPA, 2024).

Sr-90, sağlık ve tarım alanlarında radyoaktif dedeksiyon ajanı olarak değerlendirilmektedir. Radyoaktif bozunma sırasında açığa çıkan ısı enerjisi, dayanıklı ve taşınabilir enerji kaynakları için elektrik enerjisine çevrilebilir. Bu tür enerji kaynakları çoğunlukla deniz fenerleri, meteoroloji istasyonları ve uzay araçları gibi erişimi zor bölgelerde tercih edilmektedir. Bunun yanı sıra, Sr-90 elektron lambalarında, göz rahatsızlıklarının tedavisinde ve sanayi sektöründe kalınlık ölçüm cihazlarında radyasyon kaynağı olarak kullanılmaktadır. Sınırlı miktarlarda da olsa, kemik kanseri tedavisinde uygulamaları bulunmaktadır (U.S.EPA, 2024).

#### 2.1.1 Stronsiyum izotopları

Stronsiyumun, doğada 4'ü stabil izotop olmak üzere toplam 16 izotopu tespit edilmiştir. Doğada en çok bulunan stronsiyum izotopu, %83 oranında tespit edilen Sr-88'dir. Sr-89, nükleer santrallerin çevresinde bulunabilirken, Sr-85 sanayi ve farmakoloji endüstrisinde kullanılmaktadır. Ancak, Sr-90 doğada temel radyoizotop olarak kabul edilmektedir (UNLV, 2006).

### 2.1.2 Radyoaktif Stronsiyum-90

Stronsiyum, 1940'larda atom bombası projeleri kapsamında gerçekleştirilen nükleer testler sırasında tanımlanmıştır. Bu izotopun, nükleer reaktörlerde ve silahlarda kullanılan uranyum ve plütonyumun fisyon süreçlerinden kaynaklanan bir yan ürün olduğu ifade edilmiştir. Sr-90, nükleer atıklarda sık rastlanan ve en riskli bileşenlerden biri olarak kabul edilmiştir. Reaktörlerdeki fisyon süreçlerinden kaynaklanan Sr-90'ın, sistem bileşenlerini ve dolaşımdaki akışkanları kirletme potansiyeline sahip olduğu belirtilmiştir. Sonuç olarak, Sr-90'ın kökeni, yayılma yolları ve çevre ile insan sağlığı üzerindeki tehlikeleri açıklanmıştır. Özellikle nükleer atıklarla ilişkili risk faktörü olduğu vurgulanmıştır (U.S.EPA, 2024).

Sr-90 özellikle 1900'lü yıllarda gerçekleştirilen nükleer silah testleri sonucunda geniş coğrafyalara yayılmıştır. Ancak, bu yayılım oldukça yavaş gerçekleşmiş ve günümüzde yayılımdan kaynaklanan radyasyon düzeyleri bir hayli düşük düzeylerde ölçülmüştür. 1986 senesinde Çernobil Nükleer Santrali'nin dördüncü reaktöründe yaşanan olay ise çevreye önemli seviyede Sr-90 salınımına neden olmuştur. Bu izotopun büyük bir bölümü Sovyetler Birliği topraklarında birikirken, kalan kısmı Kuzey Avrupa ve diğer bölgelere serpinti şeklinde yayılmıştır. Buna karşılık, Amerika Birleşik Devletleri'nde ölçülebilir bir Sr-90 birikimi olmamıştır (TAEK, 2007).

Sr-90 beta ışıması gerçekleştirdiğinde Y-90 (İtriyum) ürününe, Y-90 ise beta ışıması gerçekleştirerek zirkonyum elementine dönüşmektedir. Sr-90 elementinin 29,1 yıllık yarılanma ömrü varken, Y-90'ın yarılanma ömrü yalnızca 64 saat gibi kısa bir süreyi kapsar. Sr-90'ın beta ışınları orta enerjili elektronlardan oluşurken, Y-90'ın beta parçacıkları daha yüksek enerjili elektronlardan meydana gelmektedir. Sr-90'ın potansiyel tehlikesi, esas olarak Y-90 tarafından yayılan yüksek enerjili beta radyasyonundan kaynaklanmaktadır (UNLV, 2006).

Sr-90; halojenler, oksitler ve sülfidler gibi çeşitli kimyevi formlarda olabilmektedir. Bunun sonucunda çevrede kolayca hareket ederek geniş bir alana yayılabilmektedir. Bu izotop hem çevrede hem de besin zincirinde geniş bir alana yayılabilme özelliğine sahip olduğundan, insanlar az da olsa Sr-90'nın etkisine uğramış olabilir. Nükleer silah denemelerinin son 30 yılda durdurulması, diyetle alınan Sr-90 miktarının düzenli bir şekilde azalmasını sağlamıştır. Bununla birlikte, nükleer tesislerde çalışanlar ya da bu tesislerin çevresinde yaşayan kişiler, daha yüksek düzeylerde Sr-90'a maruz kalmış olabilir. En büyük risk ise bir nükleer reaktör kazası veya yüksek seviyeli nükleer atıklarla bağlantılı bir olay sonrasında ortaya çıkabilir. Sr-90, kontamine olmuş tozların solunmasıyla vücuda alınabileceği gibi, esas olarak kontamine yiyeceklerin tüketilmesi veya suyun içilmesi yoluyla da alınabilir (U.S.EPA, 2024).

İnsanlar Sr-90'ı yiyecek veya içecek yoluyla vücutlarına aldıklarında, yaklaşık %70-80'i vücut içinde dolaşım gösterir. Kalan %20-30'luk kısmın büyük bir bölümü ise kemiklere yerleşerek burada depolanır. Küçük bir kısmı, yaklaşık %1'i, kan hacmi, hücre dışı sıvılar, bazı dokular ve kemik yüzeyleri içinde dağılır. Bu bölgelerde kalan Sr-90 ya bozunuma uğrar ya da zamanla vücuttan atılabilir (Carol, 2011).

Sr-90 ve Ca'un kimyasal özellikleri birbirine benzediği için, iskelet sisteminde ve kemik iliği gibi dokularda birikme eğilimindedirler. Bu nedenle Sr-90, genellikle literatürde "bone tracer" diye isimlendirilir. Sr-90'a bağlı iç ışınlamaya maruz kalmak, kemik kanseri, yumuşak doku kanseri ve lösemi gibi hastalıklara yol açabilir. Sr-90'a maruziyet düzeyi yükseldikçe bu hastalıkların görülme ihtimali de yükselir. Bu ihtimal, Sr-90'ın çevredeki yoğunluğuna ve maruziyet durumlarına bağlı olarak değişiklik gösterebilir (U.S.EPA, 2024).

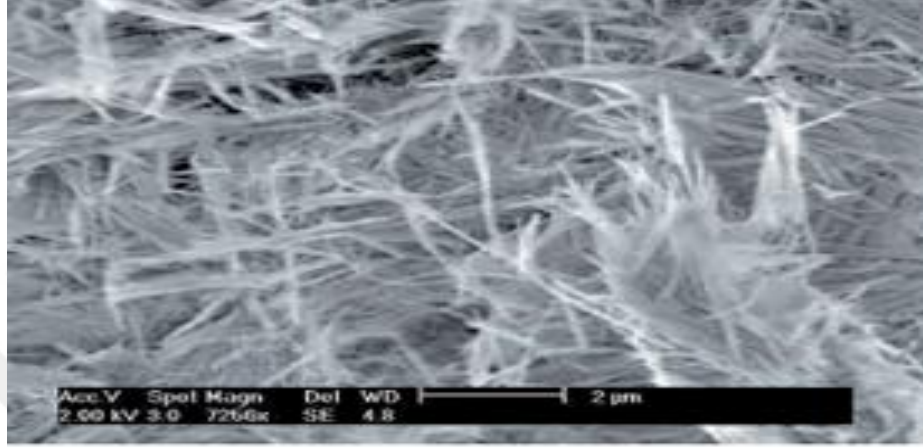
Çizelge 2.1 Sr-90 ve Y-90'ın radyoaktif özellikleri.

İzotopun ismi	Yarıömür değeri	Spesifik Aktivite Değeri (Ci/g)	Bozunma Şekli	Radyasyon Enerji Çeşidi (MeV)		
				Alfa ( $\alpha$ )	Beta ( $\beta$ )	Gama ( $\gamma$ )
Sr-90	29,1 yıl	140	Beta	—	0.20	—
Y-90	64 saat	550,000	Beta	—	0.94	< 0.001

## 2.2 Sepiyolit ve Özellikleri

Sepiyolit, yapısal olarak fillosilikat grubuna ait olan ve doğal oluşumlu bir kil minerali olarak bilinir. Glocker 1847 tarihinde ilk kez sepiyoliti tanımlanmıştır. İsmi Yunanca'da "mürekkep balığı" olarak bilinen bir ifadeden üretmiştir (Glocker, 1847). Sepiyolit kimyasal bileşimi üzerine yapılan ilk kapsamlı araştırmalar, 20. yüzyılın başlarına kadar uzanmaktadır ve bu çalışmalar, mineralin yapısal ve kimyasal özelliklerinin anlaşılmasına yönelik önemli adımlar atmıştır. Bu alandaki en dikkat çekici araştırmalar ise Vivaldi ve çalışma arkadaşları tarafından gerçekleştirilmiştir. Martin Vivaldi ve Cano Ruiz, İspanya'da bulunan sepiyolit beş farklı türüne ilişkin kimyasal özellikleri detaylı olarak raporlamışlardır (Vivaldi et al., 1955). Sepiyolit kimyasal bileşimi üzerine yapılan en detaylı araştırma, 1987 yılında Paquet ve çalışma arkadaşları tarafından gerçekleştirilmiştir. Bu çalışma, elektron mikroskobu kullanılarak sepiyolit yapısal özelliklerinin derinlemesine incelenmesini sağlamıştır (Paquet et al., 1987).

Sepiyolitın elektron mikroskopundaki görünümü Şekil 2.1’de gösterilmektedir. Sepiyolitın nadir bulunması ve yalnızca bazı koşullarda yataklanması, dikkat çekici bir hammadde olmasının temel nedenlerindedir. Dokusal özellikleri, kristal yapısındaki süreksizliklere bağlı olarak oluşan kanalların sağladığı emilim potansiyeli, gözeneklilik, kristal biçimi ve fizikokimyasal özellikleri, bu minerale olan talebin dünya genelinde giderek artmasına katkıda bulunmaktadır (Galan, 1996).



Şekil 2.1 Sepiyolitın elektron mikroskopundaki görünümü (Galan, 1996).

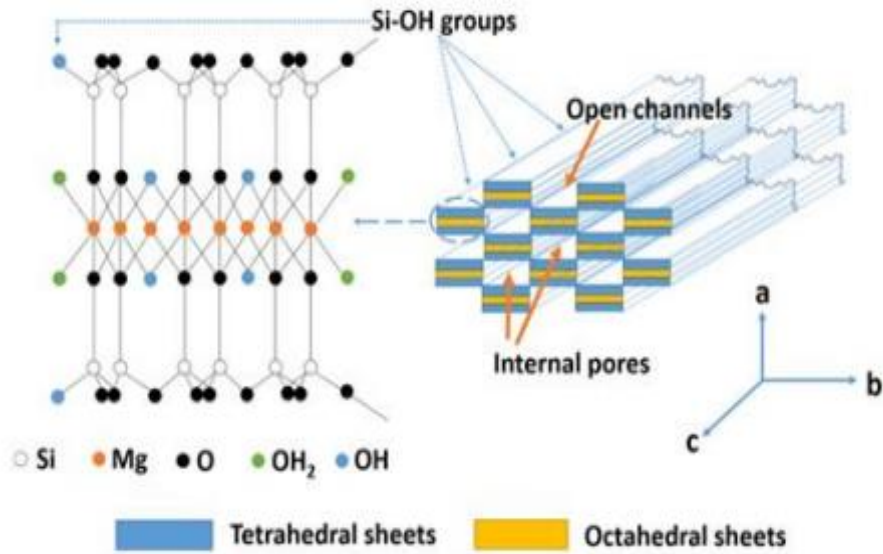
Sepiyolit adı altında yer alan ticari killer, genellikle iki ana grupta sınıflandırılmaktadır: lületaşı ve sepiyolitik kil (Can, 1992).

**Lületaşı:** Tabiatta kompakt yapıda olan ayrıca farklı ebatlarda masif yumru halinde bulunan, dış görünümü denizde oluşan köpüğü anımsattığından "Meerschäum" diye adlandırılan sepiyolit türü, 1913’te Fersman’ın deyişiyle " $\alpha$ -sepiyolit" ismiyle de tanımlanmıştır (Fersmann, 1913). Lületaşı, ülkemizde Eskişehir bölgesi ve Konya'nın Yunak çevresinde yoğun olarak bulunur. Çoğunlukla süs eşyası, pipo ve biblo yapımı için tercih edilen bu değerli malzeme, estetik ve işlenebilirlik açısından büyük önem taşır.

**Sepiyolitik Kil:** Tabakalı sepiyolit tipi, küçük, yassı ve yuvarlak partiküler yapıda ya da amorf formda bulunur ve bu tür genellikle  $\beta$ -sepiyolit olarak adlandırılır (Sarıöz ve Nuhoglu, 1992).  $\beta$ -sepiyolit oluşma özellikleri ve kullanıldığı alanlar açısından  $\alpha$ -sepiyolit ile farklılık göstermektedir.  $\beta$ -sepiyolitın bilinen diğer isimleri sanayi sepiyoliti, tabakalı sepiyolit ve sedimanter sepiyolittir (Sabah ve Çelik, 1998). Sepiyolit oluşumları, Türkiye’de ağırlıklı olarak Eskişehir’in Sivrihisar ve Mihaliççık Yunus Emre bölgelerinde görülmektedir. Bunun yanı sıra, Çanakkale, Isparta, Kütahya ve Bursa’da da sepiyolit yatakları görülmektedir (DPT, 2001).

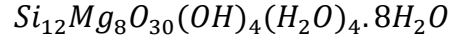
Sürdürülebilir bir yaşamın sağlanabilmesi için atık suyun arıtılması artık bir gereklilik olmuştur (Demir ve Kalpaklı, 2020). Bu sebep ile pek çok araştıran, az maliyetli ve fazla artık üretmeyen arıtma sistemi geliştirmek amacıyla çalışmalarını sürdürmektedir. Artık su arıtımında biyolojik arıtma metotları dahil olmak üzere çok çeşitli tekniklerden yararlanılmaktadır (Cırık vd., 2013). Kil ve kil mineralleri, tarımdan mühendisliğe, jeolojiden çevre bilimlerine kadar birçok endüstriyel alanda kullanılmakta olan, az bütçeli ve tabii malzeme çeşitleridir. Sepiyolit, benzersiz fizikokimyasal nitelikleri, ekonomik avantajları ve kirleticilere karşı yüksek adsorpsiyon kapasitesi sayesinde büyük bir ilgi odağı olmuştur (Gaber et al., 2018). Sepiyolit, çevredeki doğal ve yaygın bulunabilirliği sayesinde çevre dostu bir malzeme olarak değerlendirilmiş ve yeşil teknoloji kapsamında kabul görmüştür (Hamid vd., 2021).

Sepiyolit, trioktahedral fillosilikatlar grubuna dahil olan ve sulu magnezyum silikat bileşimine sahip doğal bir kil mineralidir. İki boyutlu sürekli tetrahedral tabakalardan oluşan yapısı ile fillosilikatlar arasında yer alır. Ancak, süre gelen oktahedral tabakanın bulunmaması sebebi ile diğer tabakalı silikatlardan farklılık göstermektedir (Galan, 1996). Sepiyolit'in temel yapısı, c-ekseni yönünde (fiber eksen) blokların ve tünellerin ardışık bir şekilde sıralanmasıyla oluşmaktadır (Duman vd., 2015). Sepiyolit, 2 ye 1 tabakalı bir yapıya sahip olan bir kil mineralidir (Murray, 2006; Nurul vd., 2017). Tüm bloklar, iki tetrahedral silika tabakası ile magnezyum içermekte olup merkezi bir oktahedral tabakadan meydana gelir. Silika tabakalarının süreksiz yapısı nedeniyle, silikat taneciklerinin dışındaki yapıda silanol grupları (Si-OH) bulunur (Duman vd., 2015). Sepiyolit'in yapısal düzeni, Şekil 2.2 ile detaylı olarak sunulmaktadır.



Şekil 2.2 Sepiyolit'in yapısı (Liu ve diğ., 2020).

Sepiyolitin yapısal denklemi, Brauner ve Preisinger tarafından önerilen model ile tanımlanmıştır (Brauner and Preisinger, 1956).



Sepiyolitin gözenekli yapısında, mikropor çapı ortalama olarak 15 Å, mezopor çapı değeri ise 15 ile 1545 Å değer aralığında değişiklik göstermektedir. Özağırlık değeri genellikle 2-2,3 g/cm<sup>3</sup> olup yüksek gözenekliliğe sahip çeşitlerinde bu değer 1 g/cm<sup>3</sup>'ün altına düşebilmektedir (Sabah vd., 1998).

### 2.2.1 Fiziksel özellikleri

Tabakalı sepiyolit, kaygan bir görünüme sahip, ufak taneleri olan ve yapı olarak toprağa benzer bir özelliğe sahiptir. Rengi beyaz, pembe, gri ya da krem olabilmekte birlikte, kahverengi ile siyah arasındaki tonlarda da görülebilmektedir. Sivrihisar'ın güney bölgesindeki Neojen yatağındaki çeşitlerde bu renkler gözlemlenmiştir. Madagaskar'daki Ampandrandawa ve Çin sepiyolitlerine benzer uzun lif benzer yapısı olanlar beyaz ve açık sarı renklere sahiptir. Tortuya benzer yapıda, uzun lif demeti halinde olan alfa sepiyolitin lif uzunluk değeri 100 Å ile 3-5 mikrometre arasında değişebilirken, genişlik değeri 100-300 Å ile kalınlık değeri ise 50-100 Å aralığında değişkenlik göstermektedir. Ancak, bu tür lif boyutları sabit olmayarak dünya genelindeki sepiyolit türlerinde farklılıklar gözlenmektedir (Jones and Galan, 1988).

MTA Genel Müdürlüğü ile Sepiyolit Projesi dahilinde elde edilen taramalı elektron mikroskopunun analizleri, Türk sepiyolitlerinin (Eskişehir-Sivrihisar ile Ankara-Polatlı bölgelerindeki sepiyolit yatakları) lif uzunluğunun 2-5 µm aralığında değiştiğini ortaya koymuştur (DPT, 2001).

### 2.2.2 Fizikokimyasal özellikleri

Sepiyolitin yapısal özellikleri, yüzey alanı ve porozitesinin yanı sıra kimyasal kompozisyonu, bu malzemenin farklı alanlardaki potansiyel kullanımını etkileyen önemli faktörler arasında yer almaktadır. Minerallerinin fizikokimyasal özellikleri, mikroyapısal düzenleri ile doğrudan ilişkilidir ve bu özellikler, jeoteknik davranışları üzerinde belirleyici bir rol oynamaktadır. Yüzey yapısı, gözenekliliği ve kimyasal özellikleri, çevresel koşullara verdiği tepkileri ve mühendislik uygulamalarındaki performanslarını büyük ölçüde etkilemektedir. Özelliklerinin ayrıntılı bir şekilde incelenmesi, farklı çevresel koşullara verdikleri tepkilerin doğru bir şekilde tahmin edilmesinde önemli bir rol oynar ve bu minerallerin teknolojik uygulamalarda etkin bir şekilde kullanılabilmesi için temel bir referans sağlar.

Sepiyolitin sorptif özellikleri, yüzey alanı modifikasyonları ve diğer ilgili parametreler ayrı ayrı başlıklar altında incelenmiş olup, bu konulara ilişkin detaylar aşağıda açıklanmıştır.

**Sorptif özelliği:** Killerin yüzeyleri ile doğrudan ilişkili temel nitelikleri adsorpsiyon (yüzeğe tutunma) ve absorpsiyon(emme) olayıdır. Absorpsiyon, sıvı haldeki moleküllerin katı yapıların içine girmesini ifade eder. İki kavram da genel anlamda sorptif süreçlerin bir parçasıdır. Zincir özellikteki minerallere ait kristal yapılarında üç farklı aktif absorpsiyon noktası bulunmaktadır:

1. Tabakalar üzerinde bulunan oksijenler,
2. Şerit kenarlarındaki magnezyum iyonuna bağlı su molekülü,
3. Lif eksenin içinde uzanmakta olan silanol (SiOH) grupları (Serratos,1978).

Sepiyolit, kendisine özgü yapısal özelliği nedeniyle oldukça fazla olan absorpsiyon yetisi bulundurmaktadır ve ağırlık değerinin 200-250 kat ölçüsünde su tutabilme yeteneği gösterir. Ancak, ısı işlem uygulanması, mikroporların yapısında bozulmalara neden olarak mineralin absorpsiyon özelliğini olumsuz etkiler. Örnek vermek gerekir ise 300°C'nin üzerindeki sıcaklıklarda mineralin yapısal değişikliğe uğraması ve gözeneklerin zarar görmesi sonucunda absorpsiyon kapasitesi belirgin şekilde azalır. Bunun yanı sıra, sepiyolitin genleşme özelliği bulunmamaktadır (Sabah vd., 1998).

Sepiyolitin sorptif uygulamalarının düzenlenmesi sırasında, kil minerallerine özgü yüzey alanı ve emilim noktaları gibi temel özellikler dikkate alınmalıdır. Bunun yanı sıra, taneciğin büyüklüğü, granüllerin mekanik dayanımı, özkütle, viskozite vb. fiziksel özellikler de önemli bir rol oynamaktadır. Ayrıca, adsorpsiyon sürecinde etkili olan moleküllerin boyutu, şekli ve polaritesi gibi faktörler de göz önünde bulundurulmalıdır. Düşük polariteye sahip çok küçük veya çok büyük moleküller, sepiyolitin kanal yapısına nüfuz edememektedir (Galan, 1996).

**Yüzey alanı:** Sepiyolitin yapısı gözönünde bulundurulduğunda, kristal yapısındaki süreksizliklerden kaynaklanan kanalların  $3,6 \times 10,6 \text{ \AA}^2$ 'lik kesit alanına karşılık gelen toplam yüzey alanı yaklaşık  $800-900 \text{ m}^2/\text{g}$  olarak hesaplanmıştır (Alvarez, 1984). Bu teorik yüzey alanının yaklaşık  $400 \text{ m}^2/\text{g}$  'lik kısmı dış yüzeğe, geri kalan  $500 \text{ m}^2/\text{g}$  'lik kısmı ise iç yüzey alanına denk gelmektedir (Serna and Van Scoyoc, 1978).

Sepiyolitin yüzey alanı ve gözenek yapısı ısı ve/veya asit aktivasyonu kullanılarak değiştirilebilmektedir. Örneğin, 100-150°C aralığındaki sıcaklık değerlerinde ısıtıldığında sepiyolit, zeolitik su miktarının yaklaşık %10'u kadarını kaybeder ve 320-400  $\text{m}^2/\text{g}$  aralığında

en yüksek BET yüzey alanına ulaşır. Ancak, sıcaklık 200-400°C'ye çıktığında mikropor yapısında meydana gelen bozulmalar nedeniyle yüzey alanında keskin bir azalma gözlenmiştir. Bu durum, ısı işlem sırasında mikroporların büyük bir kısmının zarar görmesiyle açıklanmaktadır. Asit aktivasyonu, sepiyolit yüzey alanını artırmanın etkili bir yöntemi olarak kullanılmaktadır, ancak bu süreç genellikle mineralin amorf hale gelmesine yol açar. Yüksek asitlik seviyelerinde yapılan aktivasyon işlemleri, sepiyolit kristal yapısına zarar verebilir, çünkü bu mineraller hidrojen iyonlarına karşı oldukça duyarlıdır. Bununla birlikte, asit işlemi sepiyolit ısı kararlılığını artırabilir (Balcı, 1995; Alvarez, 1972). Örneğin, %5 HCl çözeltiyle birlikte yapılan bir çalışmada, sepiyolit elementinin yapısında 10 Å'den az gözeneklerin zarar gördüğü, buna karşın 10-50 Å aralığındaki gözeneklerin oranının arttığı ve sonuç olarak yüzey alanı büyüklüğünde gözle görülür bir artış meydana geldiği raporlanmıştır (Alvarez, 1984). Başka bir çalışmada, Gonzalez (1984) ile Comejo ve Hermosin (1986), sepiyolit 6N HCl ile aktif edilen magnezyum iyonları tamamen çözelti içine alındığını ve yapılan işlem sonucunda tahmini 500 m<sup>2</sup>/g yüzey alanına sahip ve yüksek gözenekliliği olan amorf ürünlerin oluştuğunu bildirmişlerdir (Jones ve Galan, 1988).

### 2.2.3 Katalitik özelliği

Son zamanlarda, sepiyolit granülleri, geniş yüzeyi, mekanik dayanıklılığı ve ısı kararlılığı sayesinde taşıyıcı katalizör olarak bazı minerallerin yerine seçilmektedir. Sepiyolit katalitik süreçlerin yanı sıra çeşitli uygulamalarda Ni, Co, Fe, Mo, Cu, Al ve Mg vb. metallerin katalizör özelliği sebebiyle yaygın bir şekilde kullanılmaktadır (DPT, 2001).

Kil minerallerinin katalitik aktivitesi, yüzeylerindeki aktif bölgelerin özelliklerine bağlı olarak şekillenmektedir. Sepiyolit parçacıklarının yüzeyindeki silanol (Si-OH) grubu, belirli asidik karakter sergileyerek katalizör veya reaksiyon merkezi olarak işlev görebilir (Galan, 1996). Sepiyolit en yüksek katalitik etkinliğini gösterdiği ısı aktif sıcaklık değeri 500-600°C aralığında belirlenmiştir. Asidik ve bazik merkezleri olması sebebiyle sepiyolit, asit-baz olarak çift fonksiyonu olan bir katalizör olarak öne çıkmaktadır (Çetişli, 1985).

### 2.2.4 Reolojik özelliği

Sepiyolit, jel oluşturabilme yeteneğiyle öne çıkan değerli bir kil mineralidir ve başka kil minerallerine kıyasla su ya da farklı sıvılar ile yoğun viskoziteli ve kararlı karışımlar oluşturabilir. Tikotropik özelliklere sahip olan sepiyolit süspansiyonları, kozmetik ürünlerde, yapııştırıcılarda ve gübre süspansiyonlarında kalınlaştırıcı olarak yaygın bir şekilde kullanılmaktadır (Galan, 1996).

Sepiyolit mineral örneklerinde, iğne yığınları şeklinde gözlemlenen topaklaşma etkisi önemli bir özellik olarak öne çıkar. Sepiyolit iğneleri, özel bir işlem uygulanarak tiksotropik özellik kazandırılabilir ve bu sayede topaklanma etkisi etkili bir şekilde engellenebilir. Sepiyolit kendine özgü yapısı, emici ve kolloidal özellikleri gibi birçok avantajlı niteliğini belirler ve bu özellikler geniş bir uygulama yelpazesinde fayda sağlar (Alvarez ve Perez, 1982).

### 2.3 Aljinat

Bu çalışmada biyokompozit hazırlanmasında kullanılacak olan aljinat, bir biyopolimer olup aljinik asit türevlerinin genel adı olarak bilinmektedir. Aljinik asit, hidrofilik bir yapıya sahip, doğal polisakkarit olup, kimyasal formülü  $[(C_6H_8O_6)_n]$  ile gösterilir ve  $\beta$ -D-mannuronik asit (M) ile  $\alpha$ -L-glukuronik asit (G) gruplarını içerir. Aljinat, doğal biyopolimer olarak (-M-) n, (-G-) n veya (-MG-) n bloklarından oluşan bir yapıya sahiptir (FAO, 2010).

19. yüzyılın ilk kısmında Fransızların deniz yosunlarından iyot elde etmeye başlamaları, kimyada yeni dönemin başlangıcı olarak kabul edilir. Deniz yosunu konusunda önemli bir diğer gelişim ise suda çözünebilir polisakkaritlerin ekstrakte edilmesi olmuştur. Örneğin, aljinat polisakkaridi (aljinik asidin sodyum tuzu) kahverengi deniz yosunlarından oluşurken, agar ile karragenan polisakkariti kırmızı deniz yosunlarından ekstrakte olmaktadır. Aljinik asit üretimi ilk olarak 1881 yılında İngiltere’de başlamış ve 1900’lerin ortalarında aljinat üretimiyle süre gelmiştir. Bugünlerde kahverengi deniz yosunundan ağırlıklı olarak Çin’de ham madde üretimi gerçekleştirilmektedir (Ray et al., 1993).

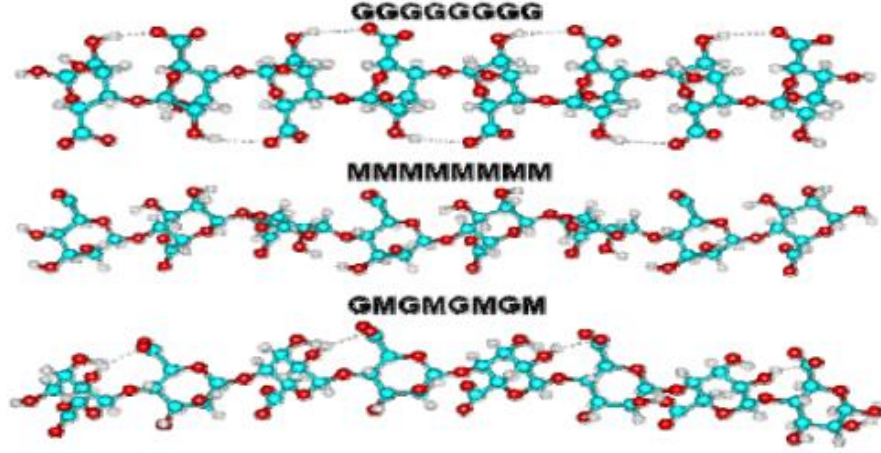
Ticari üretimde kullanılacak deniz yosunu türü, üretim maliyetinin yanı sıra içerdiği aljinik asit miktarına ve tipine bağlı olarak seçilmektedir. Aljinatın oluşturmakta olduğu jel özellikleri deniz yosununun türüne göre farklılık gösterebilir. Aljinat üretimi, birden fazla basamaktan oluşan bir süreçtir. İlk aşama olarak deniz yosunu kurutulur, ardından su ve alkali çözeltiler ile yıkanma işlemi gerçekleştirilir. Bu işlemleri çöktürme, saflaştırma ve kalsiyum karbonat  $[(CaCO_3)]$  çözeltisi ile yıkama işlemi izler. Son olarak kurutma ve karıştırma işlemi ile sodyum aljinat elde edilir (Ray et al., 1993).

#### 2.3.1 Aljinat molekülünün kimyasal yapısı

Aljinat, Mannuronik Asit (M) ve Guluronik Asit (G) monomerlerinden oluşur. Bu yapı, biyobozunabilir özellikte lineer bir polisakkarit kopolimeri oluşturur.

Aljinatın kopolimer bloğu, Şekil 2.3'te gösterilmekte olup farklı grupların yinelenmesiyle oluşur. Bu yapı, yalnızca polimannuronik asitten meydana gelen M-blokları ve yalnızca poliguluronik asitten oluşmuş G-bloklarının ardışık bir şekilde tekrar edilmesiyle

(MMMMGGGG) homopolimerik bir yapıda oluşabilir. Mannuronik ile guluronik asitlerin alternatif sıralandığı (MGMGMGMG) ardışık bir kopolimer şeklinde de bulunabilir. Polimerin geometrisi, M-bloklarının ve G-bloklarının zincirdeki sıralanışına bağlı olarak farklılık gösterebilir.



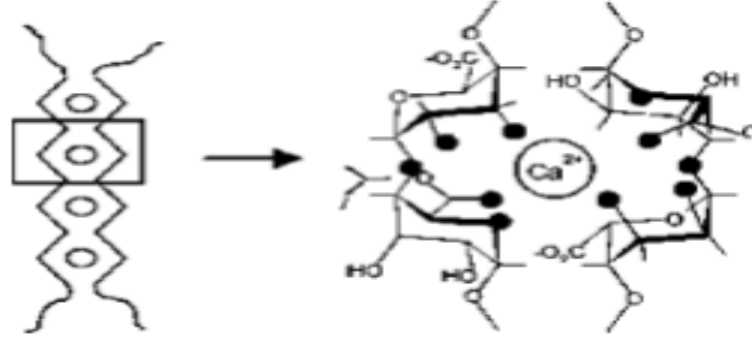
Şekil 2.3 Tekrarlanan aljinat birimleri (Zactiti et al., 2006).

Aljinatın polimer moleküler yapısı, yosunların yetişmekte olduğu çevrenin koşullarına göre farklılık gösterir ve bu durum çeşitli aljinat türlerinin oluşmasına yol açar. Farklı bir deyişle, polimerde olan monomer oranı ve sıralanışı, farklı kahverengi deniz yosunlarından oluşan aljinatın özelliğini belirleyen temel faktörlerdir. Örnek vermek gerekirse, G-blok gruplarının yapıda çokça bulunması aljinatın jel oluşturma kapasitesini artırırken, M-blok gruplarının baskın olma durumu bu kapasitenin azalmasına neden olur.

### 2.3.2 İki değerlikli katyonlarla aljinatın jel oluşturma

Aljinatın belirgin özelliğinden biri de yapısında bulunmakta olan karboksil gruplarının katyonlar ile reaksiyona girerek jel yapılar oluşturabilme kapasitesidir. Bu özellik, aljinatın çeşitli uygulama alanlarında kullanımını mümkün kılmaktadır. Metal iyonlarının aljinatla jel oluşturma hız değerleri  $Pb > Cu > Cd > Ba > Ca > Ni > Zn$  sıralamasıyla değişmektedir ve bu sıralama, katyonların aljinatla etkileşim gücüne bağlıdır.

Özellikle kalsiyum iyonlarının, aljinat molekülündeki karboksilat grupları ile bağlanması sonucunda üç boyutlu ağ yapısı oluşur. Bu jeller, literatürde “yumurta kutusu” (egg-box) modeli ile adlandırılmaktadır. Bu model, kalsiyum iyonlarının aljinat zincirleri arasında köprüler oluşturma ve stabil bir ağ yapısının ortaya çıkmasını açıklayan önemli bir mekanizmadır (Zactiti et al., 2006).



Şekil 2.4 Aljinat molekülünün yumurta kabuğu modeli (Liangbin et al., 2007).

Aljinatın jel yapısı, yapısındaki Na iyonları ile Ca iyonlarının değişirmesi sonucunda, zincirlerin birbirine sıkıca bağlanmasıyla oluşur. Bu süreç, diğer birçok polisakkarit jelin aksine, ısı gerektirmeyen bir reaksiyon olarak öne çıkar. Örneğin, agar jel hazırlama süreci ısı gerektirir; agar çözeltisi 80 °C değerine kadar ısıtılmalı ve ardından 40 °C değerine soğutulduğu zaman jel formu alabilir (McHugh, 2003). Aljinatın bu avantajı, özellikle ısı işlem gerektirmeyen uygulamalarda tercih edilmesini sağlamaktadır.

Aljinat, iki değerlikli katyonlarla oluşturduğu çapraz bağlar sayesinde güçlü ve suda çözünmez jel yapılar oluşturur. Katyon konsantrasyonu, bu jel yapılarının mekanik dayanıklılığı ve stabilitesinde belirleyici bir rol oynar (McHugh, 2003). Jelleşme koşulları, mekanik özellikleri doğrudan etkiler ve sıcaklık bu süreçte kritik bir faktördür. Örneğin, düşük sıcaklıklarda kalsiyum iyonlarının difüzyon hızı azalır, bu da daha yavaş çapraz bağlanma ile sonuçlanır. Ancak, bu durum jelin daha sıkı bir yapıya kavuşmasını sağlayarak mekanik dayanıklılığı artırır. Yüksek sıcaklıklarda ise jelleşme süresi hızlanabilir, ancak oluşan yapı daha gevşek olabilir. Bu özellikler, aljinatın endüstriyel ve biyoteknolojik uygulamalarda kullanımını genişleten önemli avantajlardır.

Aljinatın jel yapısı, moleküler yapısındaki M/G monomer oranına bağlı olarak değişiklik gösterir. Literatürde, G-blokları baskın olan aljinatların, jel yapılarının daha güçlü olduğu gösterilmiştir. G-blokları, çapraz bağlanmayı kolaylaştırarak daha dayanıklı bir ağ yapısı oluştururken, M-bloklarının ağırlıklı olduğu yapılar nispeten zayıf jeller meydana getirir. Bunun yanında, çözeltiliye eklenen kalsiyum iyonlarının miktarı da jel yapısının özelliklerini etkiler. Yüksek kalsiyum konsantrasyonu, daha sağlam ve dayanıklı bir jel yapısı sağlarken, düşük konsantrasyonlu çözeltilerde daha gevşek bir ağ oluşabilir (Ray et al., 1993). Bu özellikler, aljinatın çeşitli endüstriyel ve tıbbi uygulamalarda esnek bir malzeme olarak tercih edilmesini sağlar.

Biyobozunabilir ve çevre dostu bir polisakkarit olan aljinat, aynı zamanda film oluşturma yeteneğine sahiptir. Aljinat filmleri, ortamdaki iyon varlığına bağlı olarak tersinir bir yapı sergiler. Örneğin, suda çözülen aljinat filmleri, iki değerli katyon çözeltileri ile işlenerek suya dayanabilen bir hale getirilebilir. Aynı şekilde, suya dayanıklı Ca-aljinat filmleri, tuz çözeltisi ya da zayıf alkali çözelti ile muamele edilerek eski, suda çözünebilen hallerine dönüşebilir (Ray et al., 1993). Bu özellik, aljinat filmlerinin hem tıbbi uygulamalarda hem de çevresel teknolojilerde geniş bir kullanım alanı bulmasını sağlamaktadır.

## **2.4 Biyokompozit Malzemeler**

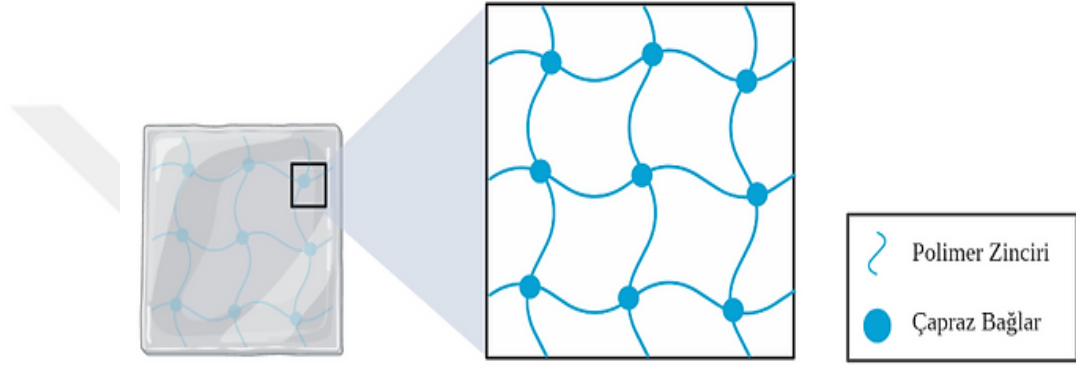
### **2.4.1 Kompozit-Biyokompozit malzemeler**

Farklı türden materyallerin geniş bir alanda bir araya getirilmesi ile oluşan ve yeni nitelikler kazanan malzemelere "Kompozit Malzeme" denmektedir. Bu malzemelerin birleştirilmesiyle her bir bileşenin bireysel özelliklerinden yararlanılır ve ortaya çıkan yapı, tek bir materyalin sağlayabileceğinden daha üstün özellikler sunar. Kompozit malzeme üretiminin temel amacı, mekanik, fiziksel ve termal açıdan dayanıklı ve sağlam yapıların oluşturulmasıdır. Bu özellikler, bileşenlerin bir araya getirilmesiyle sağlanan sinerjik etkileşimlerden kaynaklanır ve genellikle inşaat, otomotiv, havacılık, biyomedikal ve enerji gibi birçok alanda kullanılmaktadır. Sonuç olarak, kompozit malzemeler, mühendislik ve teknolojinin ihtiyaçlarına cevap veren yenilikçi çözümler sunarak, gelişmiş performans gerektiren uygulamalarda önemli bir rol oynamaktadır.

Kompozit malzemeler, aynı ya da farklı malzeme gruplarından iki veya daha fazla materyalin belirli yöntemlerle bir araya getirilmesi sonucu oluşturulan ve bileşenlerin bireysel özelliklerinden daha fazla kimyasal, fiziksel ve mekanik özellik değerlerine sahip olan yeni malzeme grubunu ifade eder. Bu tür malzemeler, birçok alanda gelişmiş performans sağlayan çözümler sunar. Kompozit malzemelerin yapısını oluşturan temel bileşenler, matris fazı ve takviye fazı olarak adlandırılır. Matris fazı genellikle hacimsel olarak daha büyük bir alan kaplarken, takviye fazı malzemenin mekanik dayanım ve işlevsellik gibi özelliklerini geliştirmede rol oynar. Eğer bu bileşenlerden en az biri biyolojik kaynaklı ya da biyolojik olarak parçalanabilir bir malzeme ise, üretilen kompozit malzeme "biyokompozit" olarak adlandırılır (John et al., 2019). Biyokompozitler, çevresel sürdürülebilirlik ve biyolojik uyumluluk açısından önemli avantajlar sunan yenilikçi malzemelerdir. Hem endüstriyel hem de çevresel uygulamalarda artan bir şekilde kullanılmaları, bu malzemelerin gelişen teknolojilerdeki potansiyelini ortaya koymaktadır.

## 2.4.2 Hidrojeller ve hidrojel kompozitler

Hidrojeller, suda şişme özelliğine sahip üç boyutlu olan polimer yapılarıdır. Bu yapılar, büyük miktarda sıvıyı absorbe ederek bünyelerinde tutabilme kapasitesine sahiptir. Üç boyutlu ağ yapıları, çapraz bağlanmış polimer zincirlerinden oluşur ve bu sayede sıvılar içinde çözünmeden, şekil ve mekanik özelliklerini koruyabilirler. Hidrojeller, ağırlıklarının %20 ile %100 katı arasında sıvıyı absorblayarak şişebilir. Bununla birlikte, “süperabsorban” olarak adlandırılan özel hidrojel türleri, %100 şişme kapasitesinin çok üstüne çıkarak daha çok sıvıyı içerilerinde tutma yeteneğine sahiptir (Byrne et al., 2000). Bu özellikleri, hidrojelleri hem biyomedikal uygulamalarda hem de çeşitli endüstriyel alanlarda oldukça değerli kılmaktadır.



Şekil 2.5 Hidrojelin basit yapısı (Peppas, N. A., & Hoffman, A. S., 2020).

Hidrojellerin biçimdeki kararlılık durumu ve çözünmeme özellikleri, üç boyutlu ağ yapısından kaynaklanır. Ağ yapısı, hidrofilik grubun su moleküllerini bağlamasıyla hacim ve kütlede artışa neden olur, böylece hidrojeller şişme kapasitesine ulaşır. Hidrojellerin oluşumunda doğal ve sentetik polimerler kullanılabilir ve bu polimerler, hidrojin mekanik ve fiziksel özelliklerini belirler (Lin and Metters, 2006). Hidrojellerin kurutulmuş hali "kuru jel" olarak adlandırılır. Kuruma sırasında suyun buharlaşması, yüzey gerilimi ile birlikte büzüşmeye neden olur ve jelin yapısı sıkılaşır (Park et al., 1993). Bu özellikleri, hidrojelleri biyomedikal uygulamalardan tekstil ve çevresel teknolojilere kadar birçok alanda tercih edilen malzemelerden biri haline getirmektedir.

Hidrojeller, çevresel koşullara duyarlılıkları sayesinde çeşitli uyarılara tepki verebilir. Çevresel değişimlere bağlı olarak hacimlerinde ani değişiklikler gözlemlenebilir. Kimyasal uyarılar arasında iyon kuvveti, çözücünün bileşimi ve pH yer alırken, fiziki uyarılar ışık, elektrik, manyetik alan ve basınç gibi faktörleri içerir (Ahmed, 2015). Bu kontrol edilebilir şişme ve hassasiyet özellikleri, hidrojellerin ilaç salımı, sensör teknolojisi ve su arıtımı gibi alanlarda kullanılmasına olanak tanımaktadır. Özellikle çevresel duyarlılığı yüksek sistemler için uygun malzemeler sunan hidrojeller, geniş bir uygulama potansiyeline sahiptir.

## 2.5 Adsorpsiyon

Adsorpsiyon, çözeltili içindeki gaz ya da sıvı moleküllerinin, sıvı ya da katı bir adsorbanın yüzeyinde birikerek moleküler ya da atomik bir film oluşturmasıyla gerçekleşen bir süreçtir. Bu süreç, bir maddenin bir katı ya da sıvı içine nüfuz ettiği absorpsiyon işleminden farklıdır. Sorpsiyon terimi hem adsorpsiyonu hem de absorpsiyonu kapsarken, desorpsiyon terimi bu işlemlerin tersini ifade eder. Adsorpsiyon, su arıtımı, aktif kömür ve sentetik reçine uygulamaları gibi birçok endüstriyel alanda yaygın olarak kullanılmakla birlikte, biyolojik ve kimyasal sistemlerde de önemli bir rol oynar.

Adsorpsiyon, yüzey enerjisinin bir sonucu olarak meydana gelir ve yüzey gerilimine benzer prensiplerle çalışır. Bu süreç, fizisorpsiyon ve kemisorpsiyon olmak üzere iki temel mekanizmayla gerçekleşir. Fizisorpsiyon, adsorban yüzeyinde Van der Waals etkileşimleri gibi zayıf kuvvetlerle moleküllerin tutulmasıdır. Buna karşılık, kemisorpsiyon, molekül ya da iyonların kimyasal bağlarla yüzeye bağlandığı daha güçlü bir etkileşim türüdür (Oremusová, 2007). Her iki mekanizma, adsorpsiyonun farklı uygulama alanlarında kullanılmasına olanak tanır ve yüzey kimyası ile malzeme bilimi açısından önemli katkılar sağlar.

Kimyasal adsorpsiyon, yalnızca tek bir molekül tabakası ile sınırlı bir şekilde gerçekleşirken, fiziksel adsorpsiyon birden fazla tabaka oluşturabilir. Fiziksel adsorpsiyon, işlem koşullarında yapılan değişikliklere (örneğin basınç, sıcaklık veya konsantrasyon) bağlı olarak tersinir bir süreçtir ve bu nedenle desorpsiyon kolayca gerçekleşebilir. Ancak, kimyasal adsorpsiyon güçlü kimyasal bağlar içerdiği için genellikle geri dönüşümsüzdür. Sıcaklık değişimleri bu iki adsorpsiyon türünü farklı şekillerde etkiler. Fiziksel adsorpsiyon genellikle sıcaklık arttıkça azalır, çünkü artan enerji moleküllerin yüzeyden uzaklaşmasını kolaylaştırır. Buna karşın, kimyasal adsorpsiyonun sıcaklığa tepkisi sürecin ekzotermik veya endotermik durumuna ve aktivasyon enerjisine bağlıdır. Yüksek sıcaklıklar, kimyasal adsorpsiyon hızını genellikle artırır, çünkü reaksiyona katılan moleküllerin hareketliliği artar. Buna karşılık, fiziksel adsorpsiyonun hızı, sıcaklık yükselmesi ile birlikte hızla düşüş gösterir (Smith, 1981). Bu özellikler, her iki mekanizmanın uygulamalarda nasıl kullanıldığını ve hangi koşullarda daha verimli olduğunu belirleyen temel faktörlerdir.

### 2.5.1 Adsorpsiyon izotermi

Adsorpsiyon dengesi, genellikle adsorpsiyon izotermi diye adlandırılan matematiksel bağıntılarla tanımlanır. Matematiksel bağıntılar, bir adsorbanın belli kütle miktarına adsorbe edilmiş olan maddenin miktarı ile denge halindeki çözeltili konsantrasyonunun arasında bulunan ilişkiye tanımlar. Sabit sıcaklık değerinde gerçekleşen süreçte, adsorpsiyon miktarı ve denge konsantrasyonu ile ilişkisi adsorpsiyonun izotermi diye adlandırılır. Adsorbanın yüzeyine

bağlanan maddenin miktarı ile çözeltide kalan madde konsantrasyonu ile eşitlik durumu sağlanana kadar adsorpsiyon sürmektedir. Denge sağlandığında, adsorpsiyon miktarı ile çözelti konsantrasyonu kararlı kalır. Adsorpsiyon izotermi, adsorplanan madde miktarının değişimine bağlı olarak farklı fonksiyonlar gösterir ve adsorpsiyon sistemlerinin tasarımında temel bir rol oynar. Ancak, izoterm belirlenir ve bu nedenle her sistem için tek bir modelin uygulanabilirliği sınırlıdır. Örneğin, Langmuir izotermi, adsorpsiyonun tek tabakalı olduğunu ve yüzeydeki tüm bağlanma bölgelerinin eşit enerjiye sahip olduğunu varsayar (Ng et al., 2003). Buna karşın, Freundlich izotermi, adsorpsiyon yüzeyinin heterojen olduğunu ve yüzeydeki bağlanma bölgelerinin enerji seviyelerinin farklılık gösterebileceğini ifade eder (Wong et al., 2004). Bu iki model, adsorpsiyon sistemlerinde en yaygın kullanılan denklemler arasında yer alır ve farklı uygulamalara yönelik olarak uyarlanabilir. Aksu ve Yener (2001), adsorpsiyon izotermi kullanarak ağır metal iyonlarının çeşitli adsorbanlarla giderilmesine yönelik deneysel veriler sağlamış ve bu modellerin adsorpsiyon süreçlerini anlamada ne kadar değerli olduğunu ortaya koymuştur. Benzer şekilde, Aksu ve arkadaşları (1999), biyolojik ve sentetik adsorbanlarla yapılan çalışmalarda izoterm modellerinin adsorban ve adsorplanan madde arasındaki etkileşimlerin değerlendirilmesinde nasıl etkili olduğunu göstermiştir. Bu izoterm, yalnızca mevcut sistemleri analiz etmek için değil, aynı zamanda adsorpsiyon sistemlerinin tasarımını optimize etmek için de kullanılmaktadır.

### 2.5.1.1 Langmuir izotermi

Langmuir izotermi, tutulma sürecinin başlangıç konsantrasyonu ile doğrusal olacak şekilde arttığını ifade eder. Bu izoterm modelinde, adsorpsiyon, yüzeyin maksimum doyma noktasına ulaştığında tek tabaka ile sınırlanır ve bu aşamada yüzeydeki adsorplanmış madde miktarı sabit kalır. Langmuir modelinde, tüm adsorpsiyon alanlarının enerji seviyeleri eşit olarak kabul edilir, bu nedenle adsorpsiyon enerjisi değişmez. Adsorpsiyon hızı, adsorbanın metal iyonları konsantrasyonu ve yüzeydeki boş adsorpsiyon alanlarının miktarı ile doğru orantılı olacak şekilde değişir. Buna karşılık, desorpsiyon hızı, yüzeyde bulunan adsorplanmış moleküllerin sayısına bağlı olarak değişir ve bu iki hız arasındaki ilişki dengeyi belirler.

Langmuir izotermi aşağıdaki matematiksel eşitlik ile ifade edilir:

$$q_s = \frac{Q_{max} a_L C_s}{1 + a_L C_s} \quad (2.1)$$

$$q_s = \frac{K_L C_s}{1 + a_L C_s} \quad (2.2)$$

Langmuir izoterminin lineer formu, matematiksel olarak aşağıdaki şekilde ifade edilir:

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

$C_e$ : Dengedeki çözelti konsantrasyonu (mg/L)

$Q_e$ : Adsorplanan madde miktarı (mg/g)

$K_L$ : Adsorbanın adsorpsiyon kapasitesini belirleyen sabit (L/g).

$a_L$ : Langmuir sabiti (L/mg)

$Q_{max}$ : Maksimum adsorpsiyon kapasitesi (mg/g)

$C_e/q_e$  ile  $C_e$  arasındaki ilişkiyi gösteren bir grafik çizildiğinde, grafik eğiminden  $a_L/K_L$  sabitine, y-ksenini kestiği noktadan ise  $1/K_L$  sabitine ulaşılır.  $Q_{max}$  değeri, adsorbanın maksimum adsorpsiyon kapasitesini tanımlar ve bu kapasite  $(K_L/a_L)$  formülüyle hesaplanır. Langmuir izotermi, adsorpsiyonun tek tabakalı bir model üzerinden değerlendirildiği homojen sistemler için uygundur ve bu modelde yüzeydeki tüm moleküllerin aktivasyon enerjisinin eşit olduğu varsayılır. Bununla birlikte, heterojen adsorpsiyon sistemlerinde, özellikle yüzeyin farklı enerji bölgelerine sahip olduğu durumlarda, bu izoterm tüm denge durumlarını tam anlamıyla açıklayamayabilir. Düşük konsantrasyonlarda, Henry yasasına uygun olan bir sistemde  $C_e$  değeri oldukça küçüktür ve bu durumda adsorpsiyon, Henry yasasının varsayımlarına bağlı olarak tanımlanır. Bu, adsorpsiyon süreçlerinin lineer bir şekilde ilerlediği bir durumu ifade eder. Böyle bir ortamda, adsorpsiyonun doğrusal bir şekilde gerçekleşmesi  $C_e$  değerinin etkisinin azalmasına neden olur ve izoterm modeli daha basit bir bağıntı üzerinden analiz edilebilir;

$$q_e = K_L C_e \quad (2.4)$$

Langmuir izotermi için yapılan temel varsayımlar şu şekilde özetlenmiştir:

- Materyalin yüzeyinde tüm adsorpsiyon alanları aynı aktiviteye sahip olup enerji bakımından homojendir, yani yüzey tamamen üniform kabul edilir.
- Adsorbe edilmiş her molekül bağımsız olarak yüzeye bağlanır.
- Adsorpsiyonun tümü benzer şekilde gerçekleşir ve adsorbe edilmiş komplekslerin yapısı birbirine eşittir.
- Yüzeydeki adsorpsiyon yalnızca tek tabakalı bir mono moleküler yapı ile sınırlıdır ve bu nedenle, adsorpsiyon derecesi bu sınırın ötesine geçemez (Smith, 1981).

Bu varsayımlar, Langmuir izoterminin ideal koşullarda homojen yüzeylerde gerçekleşen adsorpsiyonu modellemek için tasarlandığını göstermektedir.

### 2.5.1.2 Freundlich izotermi

Freundlich, adsorpsiyonu açıklamak için ampirik denklem elde etmiştir. Bu modele göre, adsorbanın yüzey özelliği homojen değil, heterojen özellik gösterir. Yani, adsorban yüzeyindeki adsorpsiyon alanları, farklı enerji seviyelerine ve adsorpsiyon özelliklerine sahip çeşitli alanlardan oluşur (Moon, 1983; Al-Duri, 1988; McKay, 1980). Bu durum, adsorpsiyonun yüzey boyunca eşit olmayan bir şekilde gerçekleştiğini ve farklı mekanizmaların etkili olabileceğini ifade eder.

Freundlich izotermi, Langmuir izoterminden yararlanılarak geliştirilmiş ve birtakım varsayımlar ile modifikasyonlar eklenerek türetilmiştir. Ancak, bu izoterm modeli Langmuir eşitliğinden farklıdır; düşük konsantrasyonlarda Henry yasasını uygulamaz ve denge durumuna ulaşıktan sonra adsorban için tam sabit bir kapasite değeri öngörmez. Bu eksiklikler, Freundlich izoterminin en önemli dezavantajları arasında yer alır. Bununla birlikte, heterojen yüzeylerdeki adsorpsiyon süreçlerini açıklama yeteneği nedeniyle geniş bir kullanım alanı bulmuştur. Freundlich, çözeltilerdeki adsorpsiyon süreçlerini açıklamak için aşağıdaki eşitliği türetmiştir:

$$q_e = K_F C_e^{\frac{1}{n}} \quad (2.5)$$

$C_e$ : Dengedeki konsantrasyon değeri (mg/L),

$Q_e$ : Adsorban başına adsorbe edilen maddenin miktarı (mg/g),

$K_F$ : Kapasite ile ilgili Freundlich sabiti (L/g),

$1/n$ : Heterojenite faktörü (0 ile 1 arasında)

Freundlich izotermi, özellikle yüzeyi heterojen enerji dağılımına sahip olan adsorbanlarda oldukça etkili bir modeldir ve belirli koşullarda sınırlamalar taşıdığı için alternatif modellerle birlikte kullanılması gerekebilir.

Freundlich izoterminin lineer hale getirilmesi, Eşitlik 2.5'in her iki tarafının logaritmasının alınmasıyla gerçekleştirilir. Bu işlem sonucunda elde edilen lineer form şu şekilde ifade edilir (Eşitlik 2.6):

$$\log q_e = \log K_F + \frac{1}{n} \log C_e \quad (2.6)$$

Bu lineer form,  $\log q_e$  ve  $\log C_e$  arasında bir grafik oluşturulmasını sağlar. Grafiğin eğim değerinden  $1/n$ , y-eksenini kestiği noktadan  $\log K_F$  ile  $n$  sabit değerleri bulunmaktadır. Grafik ile elde edilmiş doğruya y eksenini kesen nokta  $\log K_F$ ' değerine karşılık gelir. Bu sayede, deneysel verilerden  $K_F$  ve  $1/n$  parametreleri kolayca hesaplanabilir ve adsorpsiyon sistemi daha ayrıntılı bir şekilde incelenebilir.  $n > 1$  ise adsorpsiyonun elverişli bir şekilde gerçekleştiğini ortaya koymaktadır (Chiou and Li, 2002).

### 2.5.1.3 Dubinin-Radushkevich (D-R) izotermi

Dubinin-Radushkevich (D-R) modeli, ilgili elementi gözeneklerinde tutulabilecek toplam hacim açısından değerlendirir. Bu model, adsorpsiyon mekanizmasındaki enerji değişimlerini ele alarak, adsorpsiyonun nasıl gerçekleştiğine dair önemli bilgiler sağlar. D-R izotermi, genellikle adsorpsiyon süreçlerinin başlangıç aşamalarını ve adsorban yüzeyinin daha aktif bölgelerindeki bağlanmaları tanımlamak için önemlidir. Homojen ve heterojen yüzeylerde uygulanabilir. Bu yönüyle, geniş bir yelpazede adsorpsiyon süreçlerini açıklamada kullanışlı bir yaklaşımdır. D-R izoterm modeli, adsorpsiyon sırasında yüzeydeki gözeneklerin küçükten büyüğe doğru sırasıyla dolduğu varsayımına dayanır. Bu özellik, mikro gözeneklerin hacim dağılımını anlamak için önemli bir temel sağlar. Özellikle gözenek yapısına bağlı enerji değişimlerini incelemeye etkili bir araç olan D-R modeli, yüzey adsorpsiyon süreçlerini detaylı bir şekilde analiz etme olanağı sunar.

D-R izotermi aşağıdaki matematiksel eşitlikle ifade edilir:

$$\ln C_{ads} = \ln X_m - \beta \varepsilon^2 \quad (2.7)$$

$X_m$ : Maksimum sorpsiyon kapasitesi

$\beta$ : Enerji sabiti ( $\text{mol}^2/\text{kJ}^2$ )

$\varepsilon$ : Polanyi potansiyel değeri

$$\varepsilon = RT \ln\left(\frac{1}{1 + C_s}\right) \quad (2.8)$$

R: Gaz sabiti (kJ/mol)

T: Sıcaklık (K)

$\ln C_{\text{ads}}$  ile  $\varepsilon^2$  arasındaki ilişki bir grafikte gösterilirse, bu grafiğin eğimi  $\beta \text{ mol}^2/\text{K}^2$  değerini, kesim noktası ise  $X_m$  (maksimum sorpsiyon kapasitesi) değerini verir. Bu yöntem, Dubinin-Radushkevich (D-R) izotermi parametrelerinin belirlenmesinde etkili bir araçtır. Sorpsiyon enerjisi (E), aşağıdaki eşitlik kullanılarak hesaplanabilir:

$$E = \frac{1}{\sqrt{-2\beta}} \quad (2.9)$$

Sorpsiyon enerjisi, adsorpsiyon sürecinin mekanizmasını anlamada önemli bir parametredir. Düşük enerji değerleri fiziksel adsorpsiyonu, yüksek enerji değerleri ise kimyasal adsorpsiyonu işaret eder (Hasany et al., 2002; Shahwan and Erten, 2002). Bu analiz, adsorpsiyon süreçlerini hem enerjetik hem de mekanik açıdan değerlendirme olanağı sağlar.

### 2.5.2 Adsorpsiyon termodinamiği

Termodinamik parametreler, adsorpsiyon süreçlerinin anlaşılmasında kritik bir rol oynar. Katı-sıvı ara yüzeyinde gerçekleşen adsorpsiyon sırasında Gibbs serbest enerji değişimi ( $\Delta G$ ), entropi değişimi ( $\Delta S$ ) ve entalpi değişimi ( $\Delta H$ ) adsorpsiyonun mekanizmasını ve yürütücü kuvvetlerini anlamak için temel göstergelerdir. Bu parametreler, aşağıdaki eşitlikler yardımıyla hesaplanabilir:

$$\Delta G = \Delta H - \Delta S \quad (2.10)$$

$\Delta G$ : Gibbs serbest enerji değişimi (kJ/mol)

$\Delta H$ : Entalpi değişimi (kJ/mol)

$\Delta S$ : Entropi değişimi (kJ/mol)

T: Mutlak sıcaklık (Kelvin)

Belli sıcaklık deęerinde gerekleřtirilen adsorpsiyonda Gibbs serbest enerjisi, ilk olarak denge sabiti olan  $K_c$ 'nin hesaplanmasıyla belirlenir. Bu hesaplama, literatürde tanımlanan Eřitlik 2.11'e dayandırılarak yapılmaktadır (Dakiky ve ark., 2002).

$$K = \frac{C_a}{C_e} \quad (2.11)$$

$K_c$ : Denge sabiti

$C_a$ : Adsorban tarafından tutulmakta olan maddenin konsantrasyonu (mg/L)

$C_e$ : Çözeltide kalmıř madde konsantrasyonu (mg/L)

2.11'deki eřitlik kullanılarak hesaplanan  $K_c$  sabiti ile bařlangıçtaki madde konsantrasyonları ( $C_0$ ) ile iliřkilendirilerek grafik üzerinde gösterimi yapılır. Bu grafik üzerinde elde edilen doęrunun kesim noktası,  $K_d$  deęerini verir. Daha sonra bu  $K_d$  deęeri, Eřitlik 2.12'ye yerleřtirilerek adsorpsiyon sürecinin Gibbs serbest enerji deęeri hesaplanır.

$$\Delta G = -RT \ln K_d \quad (2.12)$$

R: Gaz sabiti (8.314 J/molK)

Eřitlik 2.12 yardımıyla elde edilen  $\ln K_d$  deęerinin  $1/T$  (sıcaklıđın ters deęeri) ile grafięe dökülmesi sonucunda, elde edilen doęru eđimi ile kesim noktaları kullanılarak  $\Delta H$  ve  $\Delta S$  deęerleri hesaplanır.  $\Delta H$  deęerinin pozitif olması, adsorpsiyonun endotermik bir doęaya sahip olduđunu ifade ederken,  $\Delta G$ 'nin negatif deęerde olması ise adsorpsiyon sürecinin istemli gerekleřtiđi sonucunu gösterir. Bařka ifadeyle, adsorpsiyon iřleminin uygulanabilir olması, entalpi deęiřimi ( $\Delta H$ ) ve Gibbs serbest enerjisi deęiřiminin ( $\Delta G$ ) uygun deęerlerde olmasıyla deęerlendirilir. Ayrıca,  $\Delta S$  deęerinin pozitif çıkması, katı/çözelti yüzeyinde artan rastlantısallık ve düzensizlięe iřaret eder.

### 2.5.3 Adsorpsiyonu etkileyen faktörler

#### 2.5.3.1 pH

Adsorpsiyon sürecinin meydana geldiđi çözelti içindeki pH deęeri, bu olayın hızını ve etkinliđini belirleyen en önemli faktörlerden biri olarak öne çıkmaktadır. Bunun temel nedeni, hidrojen ( $H^+$ ) ve hidroksil ( $OH^-$ ) iyonlarının yüzeyler tarafından güçlü olarak adsorplanmasıdır. Bu durum, bařka iyonların yüzeye tutunma olasılıđını azaltarak adsorpsiyon prosesini doęrudan etkiler. Özellikle çözeltideki pH deęiřimleri, adsorpsiyon yüzeyinde bulunan aktif bölgelerin

yüklenme durumunu değiştirir. Bu değişim, yüzeyin pozitif ya da negatif yük taşımaya neden olarak farklı iyonların adsorpsiyon kapasitesini artırabilir veya sınırlayabilir.

Bunun yanı sıra, pH değeri çözeltilerde bulunan asidik ve bazik bileşenlerin iyonlaşma oranlarını doğrudan etkiler. İyonlaşma derecesi, çözeltilerdeki bileşenlerin adsorpsiyon yüzeyiyle etkileşim kurma potansiyelini belirler. Örneğin, düşük pH seviyelerinde ( $H^+$  konsantrasyonunun yüksek olduğu durumlarda) yüzey pozitif yüklenir ve bu da negatif iyonların adsorpsiyonunu destekler. Tam tersi bir durumda, yüksek pH seviyelerinde ( $OH^-$  iyonlarının baskın olduğu koşullarda) yüzey negatif yük taşıyabilir ve pozitif iyonların adsorpsiyonu daha fazla gerçekleşebilir. Sonuç olarak, çözeltinin pH değeri hem adsorpsiyon olayının hızını hem de bu sürecin seçiciliğini önemli ölçüde kontrol eden bir parametre olarak değerlendirilmelidir.

### 2.5.3.2 Sıcaklık

Adsorpsiyon reaksiyonları çoğunlukla ekzotermik doğaya sahiptir bundan dolayı sıcaklığın düşmesiyle adsorpsiyon miktarında artış gözlemlenir. Adsorpsiyon sırasında gerçekleşen entalpi değişimi ( $\Delta H$ ), sürecin ekzotermik veya endotermik özellik göstermesiyle ilişkilidir. Ekzotermik adsorpsiyon durumunda  $\Delta H$  negatif bir değer alırken, endotermik adsorpsiyonlarda bu değer pozitifdir.

Adsorpsiyonun ekzotermik doğası, fiziksel bağlanma mekanizmalarıyla açıklanabilir. Van der Waals kuvvetleri gibi zayıf etkileşimler, fiziksel adsorpsiyonun temelini oluşturur ve bu süreç genellikle düşük sıcaklıklarda daha etkindir. Kimyasal adsorpsiyon ise bağlanma sırasında daha yüksek enerji değişimlerini içerir ve bu tür reaksiyonlar, aktivasyon enerjisini aşabilmek için daha yüksek sıcaklıklara ihtiyaç duyabilir.

Bazı durumlarda adsorpsiyon sürecine, yüzeyde gerçekleşen kristallenme reaksiyonları da eşlik edebilir. Bu tür reaksiyonlar, adsorpsiyon sırasında gözlemlenen entalpi değişimini etkileyebilir ve sürecin enerji profilini karmaşıklaştırabilir. Adsorpsiyon sürecinde sıcaklık hem adsorpsiyonun etkinliğini hem de adsorpsiyon mekanizmasını belirleyen kritik bir faktördür. Fiziksel adsorpsiyon genelde düşük sıcaklık değerlerinde daha etkili olurken, kimyasal adsorpsiyon ise yüksek sıcaklık değerlerinde daha fazla gerçekleşir.

Sonuç olarak, adsorpsiyonun termodinamik parametreleri ve yüzey reaksiyonları, sürecin mekanizmasının anlaşılmasında önemli bir rol oynar ve bu faktörler, uygulama alanlarına bağlı olarak optimize edilebilir.

### 2.5.3.3 Yüzey alanı

Adsorpsiyon reaksiyonları, genellikle ekzotermik bir doğaya sahip olduğu için, sıcaklığın düşmesi adsorpsiyon derecesinde belirgin bir artışa neden olabilir. Bu durum, adsorpsiyon sürecinin enerjisel doğasıyla ilişkilidir; ekzotermik bir reaksiyon sırasında sistem, çevresine enerji saldığı için, düşük sıcaklıklar bu enerji dengesini daha da destekler ve adsorpsiyon miktarının artmasına olanak tanır. Özellikle gaz ve sıvı faz adsorpsiyon süreçlerinde, düşük sıcaklıkların adsorpsiyon kapasitesini artırdığı sıklıkla gözlemlenir. Bunun nedeni, düşük sıcaklıklarda moleküllerin kinetik enerjilerinin azalması ve adsorpsiyon yüzeyiyle daha güçlü bir şekilde etkileşim kurabilmesidir.

Adsorpsiyon prosesindeki entalpi değişimleri ( $\Delta H$ ), bu sürecin ekzotermik veya endotermik bir reaksiyon olmasına ya da kristallenme gibi yan reaksiyonların gerçekleşmesine bağlı olarak farklılık gösterebilir. Ekzotermik reaksiyonlarda sistem, adsorbe edilen moleküllerin yüzeye bağlanması sırasında enerji açığa çıkarır. Bu nedenle, entalpi değişimi negatif değer alır ve sürecin kendiliğinden gerçekleşmesine katkı sağlar. Ancak, bazı durumlarda adsorpsiyon endotermik olabilir; bu, sistemin enerji kazanmasını gerektiren bir süreçtir ve genellikle yüksek sıcaklıklarda meydana gelir. Ayrıca, kristallenme reaksiyonları gibi yan olaylar, adsorpsiyon sisteminin termodinamik dengesini etkileyebilir ve bu da entalpi değişimlerini daha karmaşık hale getirebilir. Bu nedenle, adsorpsiyonun doğasını anlamak için termodinamik parametrelerin dikkatlice incelenmesi gerekir.

### 2.5.3.4 Adsorplanan maddenin yapısı

Çözeltideki rastgele bir maddenin adsorpsiyon sürecinin genellikle ani bir şekilde gerçekleştiği ve çözünen maddenin çözünürlüğünün, adsorpsiyon dengesini büyük ölçüde belirlediği bilinmektedir. Adsorpsiyon sürecinde, çözünen maddenin adsorpsiyon miktarı ile çözünürlük arasında zıt bir bağlantı vardır. Yüksek çözünürlük değerleri, adsorpsiyon derecesinin düşmesine yol açarken, düşük çözünürlük adsorpsiyon kapasitesini artırabilir. Bu ilişki, çözünen maddenin çözeltideki davranışıyla doğrudan bağlantılıdır.

Adsorpsiyon olayının gerçekleşebilmesi için, öncelikle çözünen madde ile çözücü arasında bulunan moleküler bağların kopması gerekir. Çözünen-çözücü bağlarının kuvveti, adsorpsiyon sürecini önemli ölçüde etkiler. Eğer çözünen madde çözücü ile güçlü bağlar oluşturuyorsa, bu bağların kırılması için daha fazla enerji gerekebilir, bu da adsorpsiyon derecesini sınırlandırır. Çözünürlük kapasitesinin artması, çözünen maddenin çözücü içerisinde daha kararlı bir şekilde kalmasına neden olur ve yüzey üzerindeki adsorpsiyon potansiyelini azaltır. Öte yandan, düşük çözünürlük değerlerine sahip maddelerde, çözücü-madde

etkileşimleri zayıf olduğundan, bu maddelerin adsorpsiyon yüzeyine bağlanması daha kolay ve hızlı gerçekleşir (Gök, 2010).

Sonuç olarak, çözünürlük ve adsorpsiyon arasındaki bu ters ilişki, adsorpsiyon mekanizmalarının termodinamik ve kinetik boyutlarını anlamak için temel bir parametre olarak değerlendirilmelidir. Adsorpsiyon çalışmalarında, çözünürlük parametrelerinin ve çözünen-çözücü bağ kuvvetlerinin etkisi göz önünde bulundurularak, adsorpsiyon süreçleri optimize edilebilir.



### 3.MATERYAL VE YÖNTEM

#### 3.1 Yöntem

Literatür incelemesinde, farklı amaçlarla kullanılmak üzere ve çeşitli organik ve inorganik kirleticilerin/elementlerin giderilmesinde sepiyolit tek başına ve farklı bileşenlerle birlikte kullanıldığı çalışmalar mevcut olmasına karşın; sepiyolit ve aljinat karışımı halinde biyokompozit yapıda hazırlandığı ve yapısal olarak incelendiği ve stronsiyum iyonlarının giderimi konusunda çalışmaya rastlanmamıştır. Bu noktadan hareketle, sepiyolit kilinin sodyum aljinat ile biyokompozit olarak sentezlenmesi, karakterizasyonlarının incelenmesi ve sulardan stronsiyum iyonlarının gideriminde kullanılabilirliğinin incelenmesi özgün bir değer taşıyacaktır.

Biyokompozit malzemeler hazırlanırken farklı faktörler etkili olmaktadır. Bunlardan bazıları; çıkış madde türü, reaktif türü, polimerleşme sıcaklığı, polimerleşmenin süresi ve konsantrasyondur. Bu değişkenlere bağlı olarak farklı özelliklerde ve boyutlarda biyokompozitler hazırlayabilmek mümkündür. Bu çalışmada; ekonomik ve kolay bulunabilen ticari sodyum aljinat maddesi kullanılmıştır. Sepiyolit katkılı sodyum aljinat biyokompoziti hazırlanmış ve stronsiyum gideriminde kullanılabilirliği araştırılmıştır. Çalışmada kullanılan tüm kimyasal reaktifler analitik saflıktadır. İpliği bir yapıya sahip biyokompozitler, uygun reaktiflerle etkileşime girerek "yumurta kabuğu" modelinde bir yapı oluştururlar. Bu model, özellikle polimer zincirlerinin çapraz bağlarıyla bir araya getirilmesi daha kararlı ve sert bir ağ yapısının oluşmasını ifade etmektedir (Khotimchenko et al, 2001).  $CaCl_2$  reaktif maddesi kullanılarak sepiyolit katkılı kalsiyum aljinat biyokompoziti hazırlanmıştır. Elde edilen hidrojel yapısındaki kompozitler bidistile su ile yıkanarak ardından oda sıcaklığında kurutulmaya bırakılarak kullanıma hazır hale getirilmiştir.

Çalışmamızda öncelikli olarak, biyokompozit örnekleri sodyum aljinat çözeltisi ile sepiyolit kili kullanılarak birlikte çöktürme yöntemi ile hazırlanmıştır. Batch yöntemi ile gerçekleştirilmiş adsorpsiyon çalışmalarında termostatlı su banyolu çalkalayıcı kullanılmıştır. Çözeltideki stronsiyum konsantrasyonlarını ölçmek için ICP-OES cihazı kullanılmıştır. Santrifüj işlemlerinde dijital santrifüj kullanılırken, kurutma işlemlerinde etüv kullanılmıştır.

Biyokompoziti oluşturan bileşenlerin fiziksel ve kimyasal özellikleri çeşitli enstrümental yöntemlerle belirlenmiştir. Sepiyolit-aljinat kompozit adsorbanın yapısal özellikleri ve yapı analizi, FTIR (Fourier dönüşümlü kızılötesi spektroskopisi), ICP-OES (İndüktif eşleşmiş plazma optik emisyon spektrometresi), XRF (X-Işını floresans yöntemi), BET (Yüzey alanı analizi), XRD (X-ışını kırınım yöntemi), SEM (Elektron mikroskobu tarama sistemi) metotları kullanılarak incelenmiştir.

Sentezlenen sepiyolit katkılı aljinat kompozitlerin stronsiyum için adsorpsiyon şartları kesikli yöntem yardımı ile incelenmiştir. Bunun sonucunda çözelti pH'si, çalkalama sıcaklığı, Sr deriřimi, çalkalama süresi gibi deneysel parametrelerin çözülden stronsiyum alımına etkileri incelenmiştir. Adsorpsiyon çalışmaları sonucunda sulu çözüde kalan Sr (II) miktarı ICP-OES kullanılarak saptanmıştır.

### 3.1.1 Sodyum aljinat, sepiyolit ve hidrojel küreciklerin hazırlanması

Çalışmamızda öncelikle 2 M sodyum aljinat çözeltisi elde etmek için 2 gram sodyum aljinat ile 100 ml damıtılmış su kullanılmıştır. Ardından pH=6 olan 0.5 M kalsiyum klorür ( $\text{CaCl}_2$ ) sulu çözeltisi hazırlanmıştır. Bu sulu çözüden 50 ml  $\text{CaCl}_2$  cam behere koyulmuştur. Şekil 3.1'deki gibi manyetik karıştırıcı üzerine (+4°C) buz ve su karışımı olan bir kabın içine cam beherdeki 50 ml' lik  $\text{CaCl}_2$  yerleştirilmiştir.



Şekil 3.1 Kullanılan sepiyolit,  $\text{CaCl}_2$  ve NaAlg

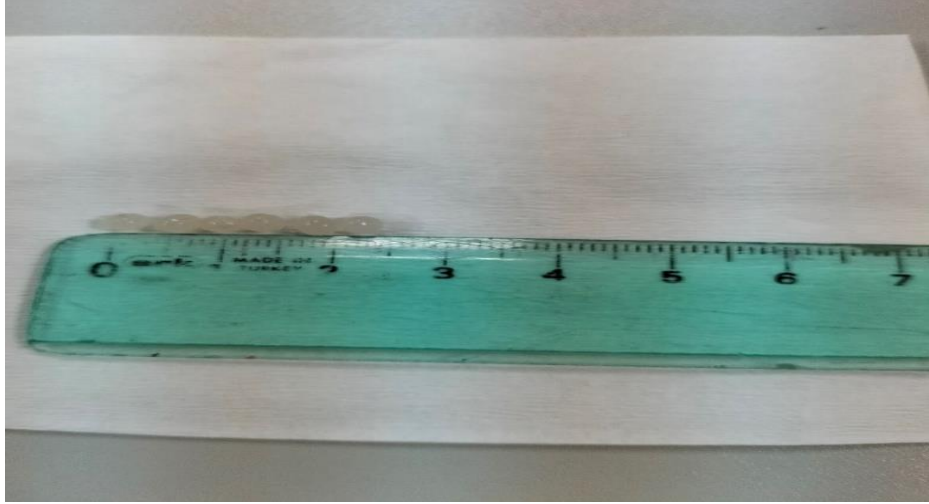
1. örnek  $m=0,03\text{g}$  Sepiyolit + 10 mL Sodyum-Aljinat
2. örnek  $m=0,05\text{g}$  Sepiyolit + 10 mL Sodyum-Aljinat
3. örnek  $m=0,07\text{g}$  Sepiyolit + 10 mL Sodyum-Aljinat
4. örnek  $m=0,09\text{g}$  Sepiyolit + 10 mL Sodyum-Aljinat

Belirtilen farklı sepiyolit kütleleri ile 10 mL sodyum aljinat karıştırılmıştır. Oluşan biyokompozit örnekleri bir enjektörle 0.5M  $\text{CaCl}_2$  çözeltisine damla damla eklenerek farklı boyutlarda Şekil 3.2'deki gibi manyetik karıştırıcıda oluşan hidrojel kürecikler elde edilmiştir. Oluşan kürecikler 60 dakika boyunca manyetik karıştırıcıda karıştırılıp 60 dakika bekletilmiştir.



Şekil 3.2 Manyetik karıştırıcıda oluşan hidrojel kürecikler.

Ardından adi filtre kâğıdı kullanılarak süzme işlemi yapılan hidrojel kürecikler saf su ile yıkanmıştır. Islak (yaş) haldeki hidrojel küreciklerden her bir örnek için altışar adet alınıp Şekil 3.3'deki örnek gibi çap ölçümleri yapılmıştır.



Şekil 3.3 Çap ölçüm örneği.

- ✓ 1.örnek  $m=0,03\text{g}$  Sepiyolit için; 6 adet ıslak hidrojel kürecik çap uzunluğu 2,5cm olarak ölçülmüştür buradan 1 adet hidrojel küreciğin çapının  $R=0,416\text{cm}$  olduğu bulunmuştur.

- ✓ 2.örnek  $m=0,05g$  Sepiyolit için; 6 adet ıslak hidrojel kürecik çap uzunluğu 2,5cm olarak ölçülmüştür buradan 1 adet hidrojel küreciğin çapının  $R=0,416cm$  olduğu bulunmuştur.
- ✓ 3.örnek  $m=0,07g$  Sepiyolit için; 6 adet ıslak hidrojel kürecik çap uzunluğu 2,5cm olarak ölçülmüştür buradan 1 adet hidrojel küreciğin çapının  $R=0,416cm$  olduğu bulunmuştur.
- ✓ 4.örnek  $m=0,09g$  Sepiyolit için; 6 adet ıslak hidrojel kürecik çap uzunluğu 2,5cm olarak ölçülmüştür buradan 1 adet hidrojel küreciğin çapının  $R=0,416cm$  olduğu bulunmuştur.

Bu 4 örnek için 6 adet hidrojel küreciklerin kütle ölçümleri hassas terazi kullanılarak yapılmıştır. Sonuçlar;

1.örnek  $m=0,03g$  Sepiyolit için 6 adet hidrojel kürecik kütlesi 0,20g olarak ölçülmüştür. 2.örnek  $m=0,05g$  Sepiyolit için 6 adet hidrojel kürecik kütlesi 0,20g olarak ölçülmüştür. 3.örnek  $m=0,07g$  Sepiyolit için 6 adet hidrojel kürecik kütlesi 0,20g olarak ölçülmüştür. 4.örnek  $m=0,09g$  Sepiyolit için 6 adet hidrojel kürecik kütlesi 0,20g olarak ölçülmüştür.



Şekil 3.4 Islak hidrojel kürecikler.

Islak hidrojel kürecikler ortam sıcaklığında kurumaya bırakılmış ve sonucunda oluşan kuru jellerin de ortalama çap ölçümü değeri 0,208 cm olarak ölçülmüştür.

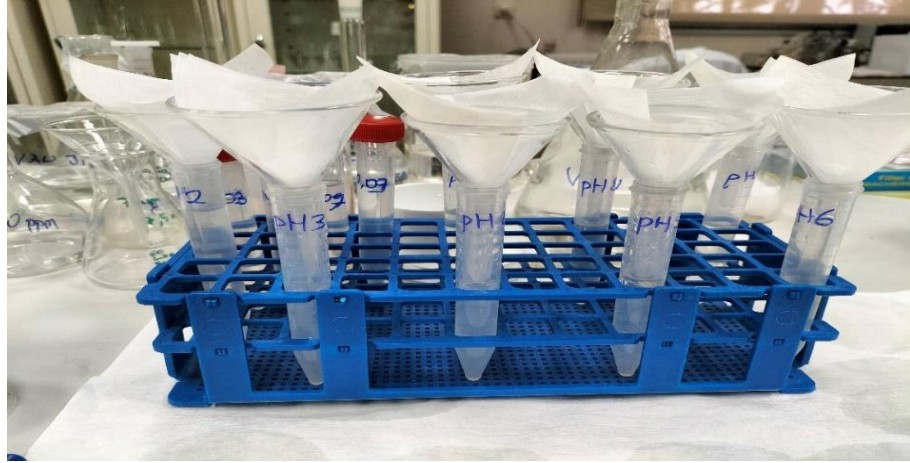
Diğer bir yandan 4 adet deney kabına 10 mL  $Sr^{+2}$  konulmuştur ve içlerine 6 adet ıslak hidrojel küreciklerden atılmıştır. Bu 4 adet deney kabı Termostatlı su banyolu çalkalayıcıda oda sıcaklığında ( $pH=6-6,5$ ) 120 dakika çalkalanmıştır. Çalkalama işlemi bittikten sonra Şekil

3.5'teki gibi adi filtre kâğıdı ile deney tüplerine süzme işlemi yapıp değerler ICP-OES cihazında ölçülmüştür.



Şekil 3.5 Süzme işlemi örneği

pH değeri 2-3-4-5-6-7-8-9 olan deney tüplerine 0,09g'lık Sepiyolit örneklerinden  $m=0,015g$  olacak şekilde kuru jellerden ilave edilmiş ve sonucunda 8 adet örnek hazırlanmıştır. Termostatlı su banyolu çalkalayıcıda oda sıcaklığında 120 dakika çalkalanmış ve adi filtre kâğıdı ile ayrılan karışım ICP-OES cihazı ile ölçülmüştür.



Şekil 3.6 Ph değerinin etkisi

Son olarak, kalibrasyon için 50ppm ,25ppm ve 10ppm  $Sr^{+2}$  çözeltisinin bulunduğu 3 adet balon joje hazırlandı ve ICP-OES cihazında ölçüm yapıldı.

## 3.2 Kullanılan Cihazlar ve Karakterizasyon Teknikleri

### 3.2.1 ICP-OES (İndüktif eşleşmiş plazma optik emisyon spektrometresi)

Çözeltideki Stronsiyum iyonlarının konsantrasyon değerinin bulunması için ICP-OES cihazı kullanılmıştır. Son zamanlarda eser elementlerin analizinin yapılması için kullanılan ICP-OES yaygın yöntemlerden biridir.

ICP-OES çok fazla elementin nicel tayinini bulmak için kullanılmaktadır. Ayrıca düşük derişim seviyesinin tayin edilmesinde de kullanılan başarılı bir yöntemdir. Atomik absorpsiyon spektroskopisine (AAS) alternatif bir yöntem olarak derişim değerleri ppb düzeyinde olan elementlerin saptanmasında kullanılmaktadır. Plazma tekniğine dayalı spektrometrelerde saptanacak element plazma ortamında bozunmaktadır. Plazma, iyonlaşmış bir gazın pozitif ve negatif parçacıklarında meydana gelen ve iletken bir ortamdır.

Plazma, örnek maddenin 10000 K'e varan sıcaklık değerlerinde elementlerin atomlaşma, ayrılma ve uyarılmasını sağlar. Uyarılmış enerji seviyelerinde olan atomlar, daha düşük enerji seviyelerine geri döndüklerinde elementler kendine özgü belirli bir frekans değerinde ışık yaymaktadırlar. Oluşan ışığın şiddeti, emsal içindeki elementin yoğunluğu ile doğru orantılı olup; emisyon spektrometresi aracılığıyla ölçülebilmektedir. Işığın frekanslarını dalga boylarına ayırarak analiz yapılmasına imkânı spektrometre tanır. ICP torch, üç kuvars camı tüpünden meydana gelir ve etrafında bir radyo frekansı (RF) jeneratör bobini bulunur. Torch açıldığında yüksek frekans değerinde bir manyetik alan oluşturulur. Bu süreç, analizde kullanılan elementlerin optik emisyonunu tetikler ve spektrometre aracılığıyla analiz gerçekleştirilir.

Elektronlar, indüksiyon bobininin oluşturduğu manyetik alan içerisinde hız kazanır ve argon atomlarıyla etkileşime girer. Bu anlaşmazlıklar sonucunda argon iyonları oluşur ve daha fazla elektron serbest hale gelir. Plazma sıcaklığı genellikle 7000-10000 K arasındadır. Sistemin giriş bölümünde bir peristaltik pompa, bir nebülizatör ve bir sprej odası bulunur. Peristaltik pompa, sıvı ya da organik örnek nebülizatör taşıır. Burada çeviri, taşıyıcı gaz yoluyla ince bir aerosol formülüne dönüştürülür. Ancak nebülizatörde oluşan kaba aerosolün doğrudan plazmaya iletilmesi, soğuma ve sönme gibi problemlere neden olabileceğinden, sprej odasındaki aerosolün boyutları optimize edilir. Bu işlemlerin sonucunda plazma ortamında çözünme, iyonlaşma ve uyarılmanın gerçekleşebilmesi için kaydedilen en uygun boyut 10 mikrometre değeridir. Aerosol şeklinde plazmaya ulaşan örnekte, buharlaşma katı bir tuz oluşumuna neden olur. Ardından, bu katı parçalar buharlaşarak gaz fazında moleküller ortaya çıkar.

Moleküller, yeterli miktarda iyonlaşma enerjisine ulaştığında atomlara ya da iyonlara dönüşürler. Bu atomlar, plazmadan aktarılan yüksek enerjili fotonları emerek daha yüksek enerji seviyelerine yükselirler. Uyarılmış atom veya iyon, enerji seviyeleri arasındaki geçiş sırasında daha düşük bir enerji düzeyine geri dönerken ışık yayar. Bu ışık yayma süreci, emisyon olarak adlandırılmaktadır. Yayılan ışık, bir spektrometre tarafından dalga boylarına ayrılır ve ardından analiz edilerek, örneğin içindeki elementlerin yoğunluğu ve diğer özellikleri hakkında bilgi sağlanır.

Spektrometrelerde, analiz edilen örneğe bağlı olarak yalnızca bir dalga boyuna karşılık gelen bir elementin aynı anda görüntülenmesi veya birden fazla dalga boyunda birden fazla elementin tespiti yapılabilmesi mümkündür. Bu durum, kullanılan spektrometrenin türüne ve uygulanan analiz yöntemine göre farklılık gösterir. Spektrometrenin özellikleri, algılama kapasitesini ve çözünürlüğünü etkileyerek, tek bir elementin ayrıntılı analizi ile çoklu elementlerin eşzamanlı analizini mümkün kılar (Skoog, 1998; Dean, 1992; Perkin Elmer, 2000).

### 3.2.2 FTIR (Fourier dönüşümlü kızılötesi) spektroskopisi

Fourier Dönüşümlü Kızılötesi (FT-IR) spektroskopisi, geleneksel ayırma kuralları sınırlamaların aşılması amacıyla geliştirilmiştir. Teknolojinin gelişiminin, maliyetlerinin düşmesini, cihazlara daha kolay erişilmesini ve FT-IR spektroskopi verim kapasitesinin artmasını sağladı. Günümüzde FT-IR spektrometrelerinin sunduğu performans/maliyet oranı, 10 yıl öncesinden eskiye kıyasla FT-IR spektrometrelerinde, ışığın farklı dalga boylarındaki teçhizatı modülü için bir interferometre kullanılır. Bu kapsamda, Michelson interferometresi yöntemi temel olarak alınır ve Fourier kullanılarak uygulanır.

Uygun bir ışın bölen kısım, gelen ışık ışınlarının %50'si kadarını yansıtırken, diğer %50'sini geçirir. Bu işlem sonucunda iki farklı optik yol ortaya çıkar.

Birinci optik yolda, ışın sabit bir ayna olan A'ya kadar ilerler ve buradan yansıtılarak tekrar ışın bölücüsüne geri döner. Işın bölücüsüne dönen ışığın bir kısmı yansıtılarak kaynağa geri ulaşırken, diğer kısmı interferometrenin ikinci optik yolunu izler. Bu yol, ileri geri oynayabilen ve her zaman paralel olan hareketli B aynası tarafından yansıtılır. Yansıyan ışın tekrar ışın bölücüsüne ulaşır; burada birazı kaynağa tekrar dönerken, diğer tarafı yansıtılarak dedektöre gelir. Dedektöre gelen ışın, her iki yolun enerjilerinin akışını temsil eder. Eğer ışın bölücüsünün merkezine sabit ayna A noktasına mesafesi, hareketli ayna B noktasındaki mesafeye eşitse, her iki ışın da aynı yolu kat etmiş olur. Ancak hareketli aynanın konumu değiştirildiğinde, bu iki yolun uzunluğu farklılaşır, bu da dedektörde ölçülen interferans desenini etkiler.

FT-IR'ın üç temel avantajı mevcuttur. İlk avantaj, üretiminin kolaylığıdır. Bu cihazlar, yalnızca birkaç optik üretilen ürünler için tasarım ve üretim vardır. İkinci olarak, dedektöre ulaşan ışın demetinin yoğunluğu, dispersiyonlu cihazlara kıyasla çok daha güçlü. Bu durum, ölçüm sırasında daha güçlü ve etkili bir sinyal iletimini sağlar. FT-IR cihazları sayesinde bu özellikler çok yüksek bir sinyal/gürültü oranı sunar. Bu üstün performans, cihaz ölçüm hassasiyetini artırır ve güvenilir analiz sonuçları elde edilir. FT-IR'ın üçüncü önemli avantajı, multipleks olma özelliğidir (Fellgett avantajı). Multipleks, kaynaktan çıkan tüm lekelerin aynı anda dedektöre ulaşabilmesi anlamına gelir (Perkins, 1986).

### 3.2.3 XRD (X-ışını kırınımı)

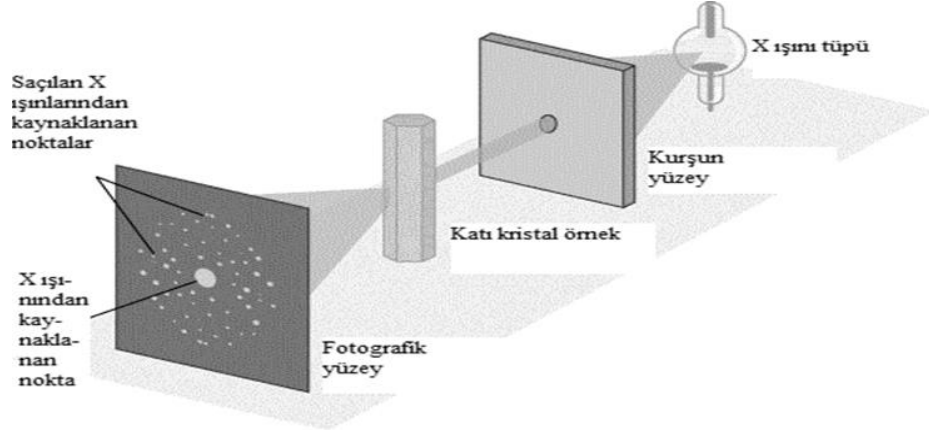
Kristal yapıdaki maddelerin yapısal özelliklerini incelemek için yaygın olarak kullanılan önemli bir analiz yöntemidir. Bu teknik, kristal yapıların atomik düzenini, simetrisini ve diğer morfolojik özelliklerini belirlemeye yardımcı olur. Bu yöntem, malzemenin kristal yapısının sahip olup olmadığı, kristal değerlerini, ortalama tanecik boyutlarını ve kristal kusurlarını belirlemede kullanılır. X-ışınları, spektrumun 0,02 ile 100 Å arasında dalga boyuna sahip bölgesinde yer alır.

X-ışın dalga boyları angstrom seviyesinde, katıların içine dalacak kadar enerjetik olup iç yapısının incelenmesi için son derece uygundur. X-ışını kırınımını (XRD), yığın faz dağılımı belirleme, yığın fazda meydana gelen dönüşüm kinetiklerinin incelenmesi ve sıcaklık değişiminin ölçümü için kullanılan bir yöntemdir. XRD yönteminde, mineralin kristal örgüsündeki X-ışını kırınımından yararlanır. Kristalin kapasitesi yaklaşık 5-6 mg değerinde toz kopyalanarak cam platformunun üzerine yarık düzgün bir şekilde yerleştirilmiştir. Hazırlanan numuneye monokromatik bir X-ışını gönderilir. Gönderilen X-ışınları düzlem ile  $\theta$  açısı değerini yapmaktadır ve aynı açısı değerini oluşturarak yansımaktadır. Yansıma açısı ve örgü düzleminde bulunan mesafe ile 3.1'deki eşitlik gibi bir ilişki vardır. Bu eşitlik Bragg yasası olarak bilinir. Bu denkleme göre, belirli bir yansıma açısında, X-ışınlarının kristaldeki örgü düzlemleriyle etkileşime girerek kırılmasının, örgü düzlemleri arasındaki mesafe ile doğrudan ilişkili olduğu görülür.

$$n\lambda = 2d\sin\theta \quad (\text{Bragg yasası}) \quad (3.1)$$

Bragg yasasından yararlanılarak, her kristal örgü düzlemi için mesafeler hesaplanmaktadır. Kristaldeki  $d$  değeri,  $2\theta$  açısı değeri ile bağlantılı olacak şekilde pik oluşturmaktadır (Yalçın, 2005).

X-ışını kırınımı tekniğinin görseli Şekil 3.7’te gibidir.



Şekil 3.7 X ışını kırınımı tekniği ([http://undsci.berkeley.edu/article/0\\_0\\_0/dna\\_04](http://undsci.berkeley.edu/article/0_0_0/dna_04))

### 3.2.4 SEM (Taramalı elektron mikroskobu)

Taramalı Elektron Mikroskobu, hedeflenmiş bir elektron demetini kullanarak kopya yüzeyini tarar ve detaylı görüntüler elde eder. Bu mikroskop, yüksek çözünürlüklü yüzey analizi için elektron demetlerini yüzeydeki küçük bir alana odaklar ve yüzey atomlarıyla etkileşime geçerler. Bu etkileşim sonucunda yüzeyin topografisi ve birleştirmesi hakkında bilgi sağlayan toplam fotonlar üretilir. Bu fotonlar, bilgisayar aracılığıyla işlenerek görüntüye dönüştürülür. SEM ile nanometre düzeyinde yüksek kalitede görüntüler alınabilir. SEM cihazları, genellikle yüksek vakum koşullarında çalışır ve kuru yüzeylerin incelenmesi için uygundur (Mcmullan, 1994).



Şekil 3.8 Alan emisyon SEM cihazı (QUANTA 400F).

### 3.2.5 XRF (X-Işını Floresansı)

Tortu, kaya ve toprak malzemesi örneklerinin jeokimyasal bileşiminin tahmininde kullanılmakta olan yöntemlerdendir. Ayrıca XRF spektrometrisi, bir dizi majör ve eser elementin milyon başına parça (ppm) seviyesindeki konsantrasyonlarının belirlenmesinde kullanılmaktadır. Bu tekniğin yaygın olarak kullanılmasının bir sebebi de katı numuneleri X-ışını radyasyonu yolu ile analiz edebilmekte olmasıdır.

XRF spektrometrisi, bireysel atomların tahmin edilebilen enerji veya dalga boyu özelliğine sahip göreceli bol miktarda X-ışını fotonu yaydığını belirten dalga boyu dağılımlı ilkeye dayanmaktadır.

### 3.2.6 BET (Yüzey alanı ölçüm cihazı)

Brunauer-Emmett-Teller (BET) teorisi, gaz moleküllerinin katı bir yüzey üzerindeki fiziksel adsorpsiyonunu açıklamayı amaçlar ve malzemelerin özgül yüzey alanının ölçülmesi için önemli bir analiz tekniğidir. BET teorisi, çok katmanlı adsorpsiyon sistemlerine uygulanır ve genellikle özgül yüzey alanını ölçmek için malzeme yüzeyleriyle kimyasal olarak reaksiyona girmeyen araştırma gazlarını adsorbat olarak kullanır. Azot, BET yöntemleriyle yüzey araştırması için kullanılan en yaygın gaz halindeki adsorbattır (Nasrollahzadeh et al, 2019).

BET Micrometrics 3 Flex yüzey karakterizasyon sistemi çok hızlı, doğru ve hassas bir şekilde makro boyutlarda gözenek içeren toz veya katı numunelerin fiziksel adsorpsiyon yöntemiyle absorblayıcı azot gazı kullanılarak numunenin yüzey alanını hesaplaması ve aynı zamanda numune içerisindeki gözenekli malzemenin boyutlarını ve dağılımlarını, alçak ve yüksek basınçlarda belirlenmesi amacıyla kullanılmaktadır. Brunauer Emmett ve Teller teorisini kullanarak analiz yapılan BET cihazı ile ölçüm, numunenin yüzeyinin tek bir molekül tabaka ile kaplanması için gerekli olan gaz miktarının hesaplanması esasına dayanmaktadır.

BET cihazı temel bilimler ve mühendislik uygulamaları gibi birçok alanda yaygın bir şekilde kullanılan gözenekli malzemelerin yüzey analizleri yapılabildiği gibi Farnosötik ve medikal implant, elektronik, jeoloji, maden, seramik, plastik ve polimerler, yapı malzemeleri, boya ve kaplamalar, filtreleme teknolojileri, yakıt hücreleri, nanotüpler gibi araştırma ve uygulama alanlarında da yüzey karakterizasyonu amacı ile kullanılmaktadır.

### 3.3 Stronsiyum Alım Denemeleri

Sentezlenen sepiyolit katkılı aljinat kompozitlerin Sr iyonları için adsorpsiyon koşulları alım denemeleri kesikli proses yöntemi ile yapılmıştır. SKA Adsorban ile Sr çözeltilerinin temas ettirilmesi termostatlı su banyolu çalkalayıcı kullanılarak gerçekleştirilmiştir.

İlk aşamada çalkalama süresinin tesirini incelemek için stronsiyum çözeltileri değişik sürelerde, biyosorbent ile temas ettirilmiştir ve uygun süre bulunmuştur. Süre bulunduktan sonra değişik konsantrasyon değerlerinde ve değişik pH değerlerindeki stronsiyum çözeltileri ile biyosorbent aktif hale getirilmiştir. Daha sonra çözeltinin v/m oranı tesiri ve sıcaklık tesiri de gözden geçirilmiştir. Biyosorbent ve çözelti adi filtre kâğıdı kullanılarak süzme işlemi yapılmıştır. Çözeltideki stronsiyum tutarı ICP-OES cihazıyla birlikte analiz edilerek bulunmuştur.

Stronsiyum gideriminde biyosorbentin etkinliğinin bulunabilmesi için,  $q_e$ =adsorbe olan stronsiyum miktarı (mg/g),  $K_d$ =adsorpsiyon dağılım katsayısı (mL/g) ile adsorpsiyon yüzde verimi (%) aşağıdaki gibi bulunmuştur;

$$q_e = \frac{(C_i - C_e)V}{W} [=] \frac{mg}{g} \quad (3.2)$$

$$K_d = \frac{m_i - m_e}{m_e} \times \frac{V}{W} [=] \frac{mL}{g} \quad (3.3)$$

$$\% \text{ Adsorpsiyon verimi} = \frac{m_i - m_e}{m_i} \times 100 \quad (3.4)$$

$C_i$ : Stronsiyum başlangıç konsantrasyonu (mg/L),

$C_e$ : Stronsiyum denge konsantrasyonu (mg/L),

$m_i$ : Stronsiyumun başlangıçtaki miktarı (mg),

$m_e$ : Adsorpsiyon sonrasında çözelti içinde kalmış stronsiyum miktarı (mg),

V: Çözeltinin hacim değeri (mL),

W: Biyosorbentin miktarı (g)

## 3.4 Uygulamalar

### 3.4.1 Matriks iyonlar olan ortamda adsorpsiyon davranışının incelenmesi

Matriks iyonlarının Stronsiyum adsorpsiyonundaki tesirini tespit etmek için 25 mg/L Al (III), Ba (II), Fe (III), Cu (II) ve Zn (II) iyonları ve 50 mg/L Sr (II) iyonlarını barındıran yapay metal çözeltisi hazırlanmıştır. Kompozit sorbent ile Sr içeren yapay metal çözeltisi uygun şartlarda reaksiyona sokulmuştur. Çözeltide kalan metal iyonları için konsantrasyon değerleri ICP-OES cihazıyla tespit edilmiştir.

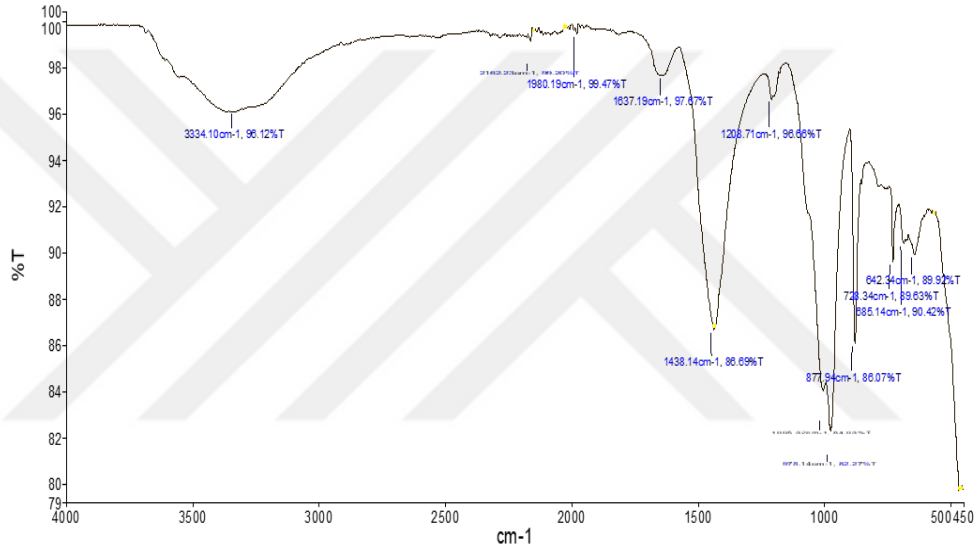


## 4.BULGULAR VE TARTIŞMA

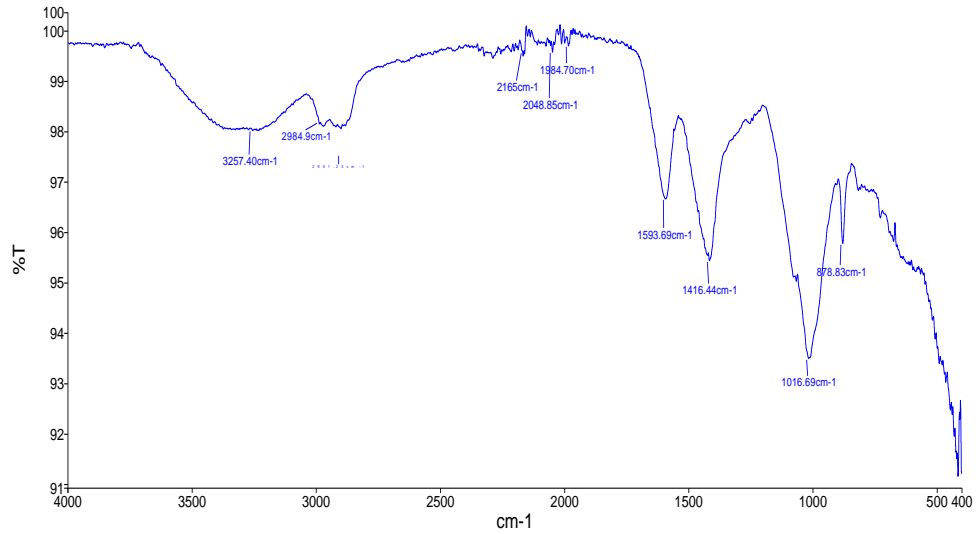
### 4.1 Adsorbanların Yapısal Karakterizasyonları

#### 4.1.1 FT-IR spektrumundan elde edilen bulgular

Sepiyolit örneğinin FT-IR spektrumu Şekil 4.1’ de verilmektedir. Sepiyolit örneğinin FT-IR spektrumuna göre,  $3334\text{ cm}^{-1}$ 'deki band zeolitik suyun titreşimine karşılık gelmektedir. Zeolitik suyun titreşiminden dolayı  $1637\text{ cm}^{-1}$ 'de bir bant gözlenmiştir. Silikatın  $1200\text{--}450\text{ cm}^{-1}$  aralığındaki bantlar sepiyolitinin FT-IR spektrumunda gözlenen karakteristik piklerdir (Karakehya ve Bilgiç, 2020; Vicente-Rodríguez vd., 1996).



Şekil 4.1 Sepiyolit örneğinin FT-IR spektrumu.



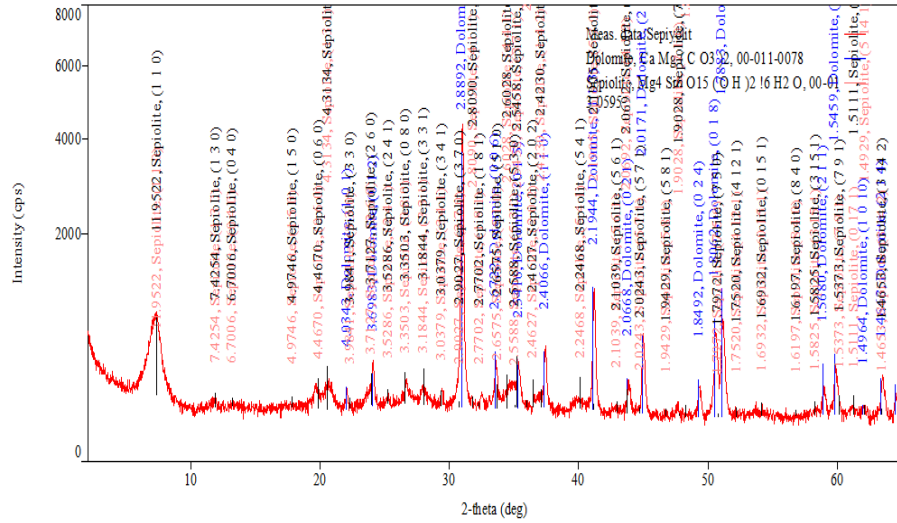
Şekil 4.2 Sepiyolit katkıli aljinat örneğinin FT-IR spektrumu.

Asimetrik ve simetrik COO<sup>-</sup> gerilme bantları sırasıyla 1602 ve 1419  $cm^{-1}$ ' de yer alır ve aljinatın varlığını gösterir. C-O bağının gerilme titreşimleri, 1309  $cm^{-1}$ ' de görülen zayıf bandı ortaya çıkarır. C- O, C- C ve C- O- C'nin titreşimleri 1010–1130  $cm^{-1}$ ' de gözlemlenebilir. Bu bantlar ayrıca sepiyolitın tanımlayıcı bantlarıyla kesişir (Chinoune et al, 2024).

#### 4.1.2 XRD (X-ışını kırınımı) sonuçları

Eskişehir-Sivrihisar sepiyolit yatakları, Sakarya Formasyonu'nun Dolomit-Sepiyolit Birim Çökeli içerisinde, alt sepiyolit zonunda bulunmaktadır. Bu tez çalışmasında kullanılmış olan sepiyolit örneği; Eskişehir'de hizmet veren, Dolsan Madencilik Mineral Yapı Kimyasalları Madencilik San. ve Tic. Ltd Şti. den temin edilmiştir. Sepiyolit örneği -2-+1 mm aralığındadır. Mineralojik analiz için örnek 100±5 °C de, 24 saat boyunca kurutulmuş ve agat havanda öğütülmüştür.

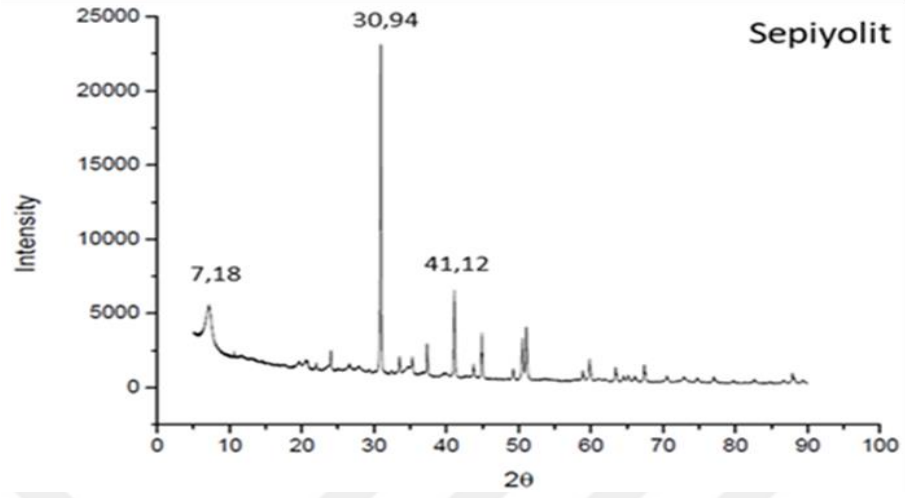
Şekil 4.3' te DOLSAN firmasına ait sepiyolit örneğinin XRD grafiği görünümü verilmiştir. Sepiyolit örneği toplam kaya analizinde, sepiyolit ve dolomit mineralleri bulunmuştur.



Şekil 4.3 Sepiyolit örneğinin XRD grafiği

Sepiyolit örneklerin XRD analizleri, İzmir Kâtip Çelebi Üniversitesi Merkezi Araştırma Laboratuvarındaki Panalytical Empyrean marka cihaz ile gerçekleştirilmiştir.

Şekil 4.4' te Sepiyolit örneğine ilişkin XRD patternleri gösterilmiştir. Sepiyolit örneği toplam kaya analizinde, sepiyolit ve dolomit mineralleri bulunmuştur.



Şekil 4.4 Sepiyolit örneğine ilişkin XRD patternleri.

#### 4.1.3 XRF (X-Işını Floresansı) sonuçları

Çalışmada kullanılan örneklerin XRF analizleri Ege Üniversitesi MATAL'da bulunan RIGAKU marka XRF spektrometresi ile gerçekleştirilmiştir.

Çizelge 4.1 Sepiyolit için EDXRF sonuçları

Komponent	%Kütle Bileşim
MgO	11,7
SiO <sub>2</sub>	15,6
K <sub>2</sub> O	0,333
CaO	60,2
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3,58
TiO <sub>2</sub>	0,0630
ZnO	0,0183
Rb <sub>2</sub> O	0,0227
SrO	3,06
SnO <sub>2</sub>	0,0678
ZrO <sub>2</sub>	5,13
BaO	0,151

Elde edilen XRF sonuçlarının literatürde verilen farklı bölgelerdeki örneklerin sonuçları ile karşılaştırılabilir nitelikte oldukları görülmektedir (Nayak ve Singh, 2007; Suna ve Bayat, 2019; Yıldız vd., 2016).

#### 4.1.4 BET (yüzey alanı ölçümü) sonuçları

BET yüzey alanı analizleri Kâtip Çelebi Üniversitesi Merkezi Analiz Laboratuvarında BET Micrometrics 3 Flex Marka cihazla gerçekleştirilmiştir.

Çizelge 4.2 BET analiz neticeleri.

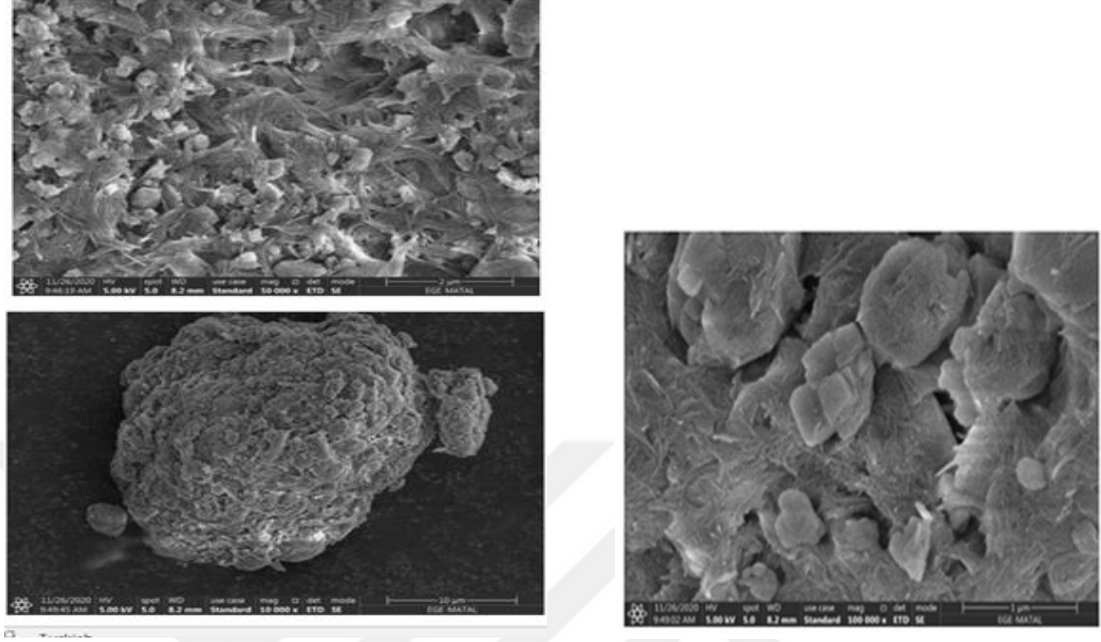
Örnek	BET'in yüzey alan değeri (m <sup>2</sup> /g)	Pore hacim değeri (cm <sup>3</sup> /g)	Por boyutu (Å)
Sepiyolit	80,2362	0,152794	76,172

Sepiyolit için elde edilen BET sonuçlarının literatürde verilen farklı bölgelerdeki örneklerin sonuçları ile karşılaştırılabilir nitelikte oldukları görülmektedir (Panda vd., 2010; Yates, 1968; Yıldız vd., 2016; Yıldız, 2020).

#### 4.1.5 SEM (Taramalı elektron mikroskobu) ve SEM-EDX sonuçları

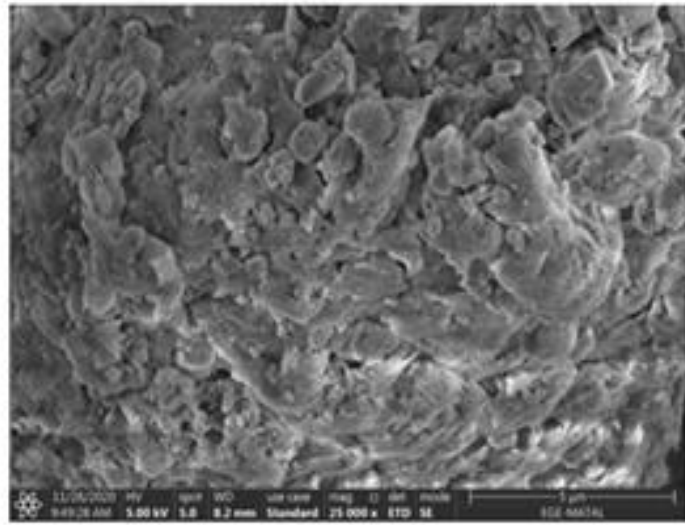
Sepiyolit'in SEM görüntülerinde, kristal yapısı bozunmuş şekilde amorf tabaka yüzeylerinin birbiri içine geçmesi sonucu farklı boyutlarda kümelenmiş demetler halinde olduğu doğrulanmıştır (Çınar ve Çelik, 2011).

Şekil 4.5 de Sepiyolit örneğine ait SEM görüntüleri verilmiştir.



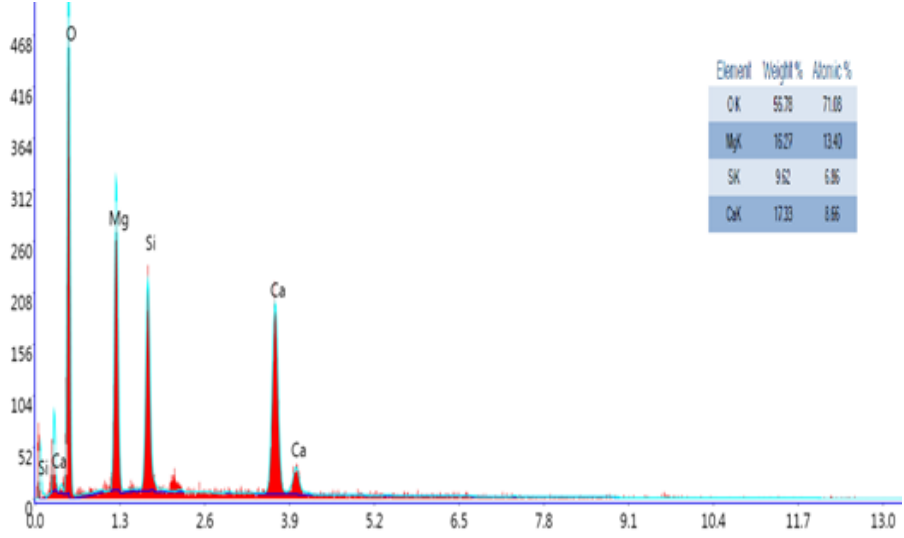
Şekil 4.5 Sepiyolit örneğine ait SEM görüntüleri.

Şekil 4.6’da Sepiyolit-Aljinat örneğine ait SEM görüntüleri verilmiştir. Sepiyolit-Aljinat biyokompozit yapısında ise, Sepiyolit parçacıklarının resimleri, aljinatlı kompozite göre daha pürüzlü bir yüzey dokusuna sahip olduğunu göstermektedir.



Şekil 4.6 Sepiyolit-aljinat örneğine ait SEM görüntüleri.

Sepiyolite ait SEM-EDX sonuçları Şekil 4.7’de görülmektedir. Bu bantlar sepiyolitin göstergesidir: oktahedral tabakanın (Mg-OH)-OH gruplarıyla örtüşen ve fiziksel olarak O-H bağlarının absorpsiyon bandına karşılık gelir ve su moleküllerini adsorbe eder. Si-O-Si bağına atfedilen zayıf bir bant yaklaşık olarak görülebilir. Bu, sözde tabakalı minerallerin tipik bir örneğidir.

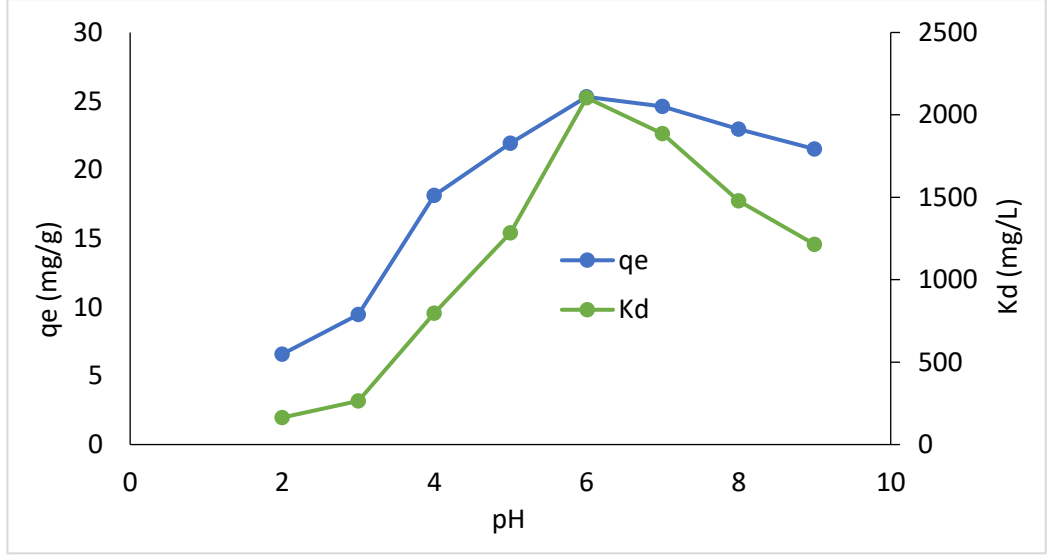


Şekil 4.7 Sepiyolite ait EDX sonuçları.

## 4.2 Stronsiyum Adsorpsiyon Koşullarının Araştırılması

### 4.2.1 pH etkisi

Sepiyolit Katkılı Aljinat (SKA) adsorbanı ile Sr (II) adsorpsiyonunun, çözelti pH' sinin incelenebilmesi için 10 mg/L derişiminde hazırlanmıştır. Çözeltilerin pH'leri 2 ile 9 değerleri arasında ayarlanmıştır. Kütleleri 0,015g olan SKA adsorbanı ile 10 mL'lik çözelti pH'leri ayarlanmış Sr (II), 120 dakika boyunca ve 25°C oda sıcaklığı ortamında termostatlı su banyolu çalkalayıcıda temas ettirilmiştir.

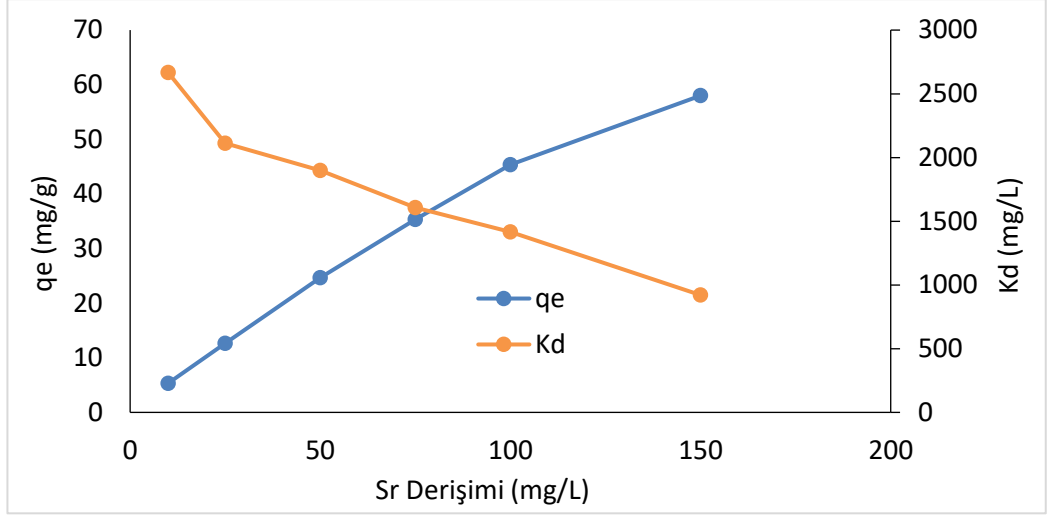


Şekil 4.8 Sr (II) adsorpsiyonuna pH'nin etkisi

Şekil 4.8'de Sepiyolit Katkılı Aljinat (SKA) adsorbani ile Sr (II) adsorpsiyonunun pH ile değişimi  $K_d$  (mg/L) ve  $q_e$  (mg/g) gösterilmiştir. Oluşan grafik verilerine bakıldığında pH 2 ile 6 aralığında iken Sr adsorpsiyonun yükseldiği gözlenmektedir. Çözelti pH'si 6'den 9'a doğru değişim gösterdiğinde adsorpsiyonun azaldığı gözlenmektedir. Oluşan bu grafik sonucunda SKA adsorbani için optimum pH değeri 6 olarak seçilmiştir. pH 6 değerinde saptanan adsorpsiyon miktarı;  $K_d=2104.18$  mL/g ile  $q_e=25,31$  mg/g olarak ölçülmüştür.

#### 4.2.2 Stronsiyum derişiminin etkisi

Sr (II) çözeltisinin derişiminin adsorpsiyona tesirini bulmak için 10 ile 150 ppm arasında Sr(II) çözeltisi oluşturulmuştur. Hazırlanan çözelti derişimleri 10ppm,25ppm,50ppm,75ppm,100ppm ve 150ppm'dir. Sr (II) çözeltilerinin her biri 0.015 g SKA adsorbani ile 120 dakika boyunca ve 25°C oda sıcaklığında (Ph=6) temas ettirilmiştirlerdir.

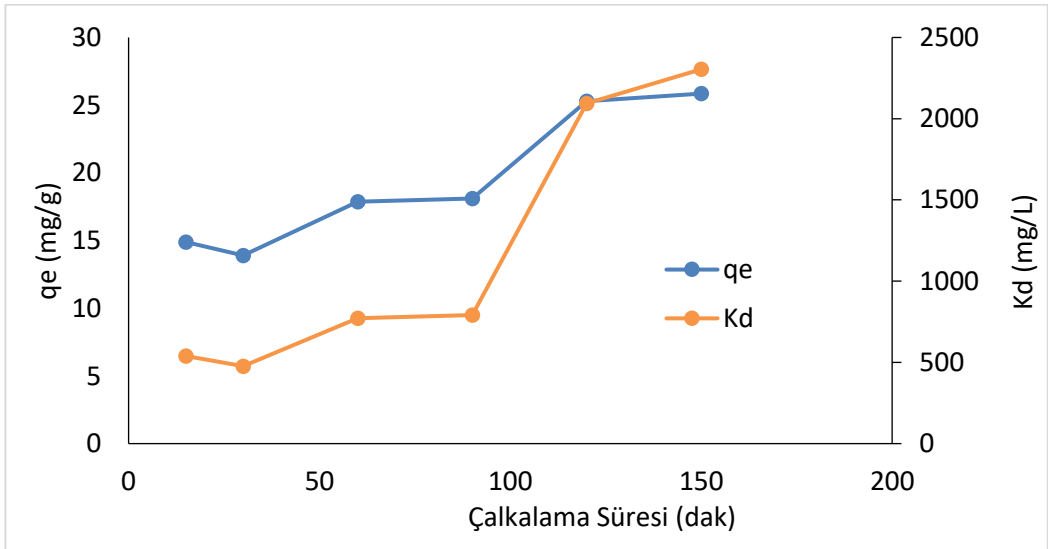


Şekil 4.9 Sr (II) iyonu adsorpsiyonunda derişimin etkisi.

Şekil 4.9 'da Sr (II) iyonu adsorpsiyonunda derişimin tesiri  $K_d$  (mL/g) ve  $q_e$  (mg/g) olarak gösterilmektedir.

#### 4.2.3 Çalkalama süresinin etkisi

Çalkalama süresinin etkisini belirlemek için derişimi 50 ppm olan Sr çözeltileri ile kütlesi  $m=0,015g$  olan SKA adsorbanı  $25^\circ C$  oda sıcaklığında ve 15,30,60,90,120 ve 150 dakika boyunca termostatlı su banyolu çalkalayıcıda temas ettirilmiştir. Şekil 4.10'da çalkalama süresinin etkisi ile oluşan  $K_d$  (mL/g) ile  $q_e$  (mg/g) türünden gösterilmektedir.

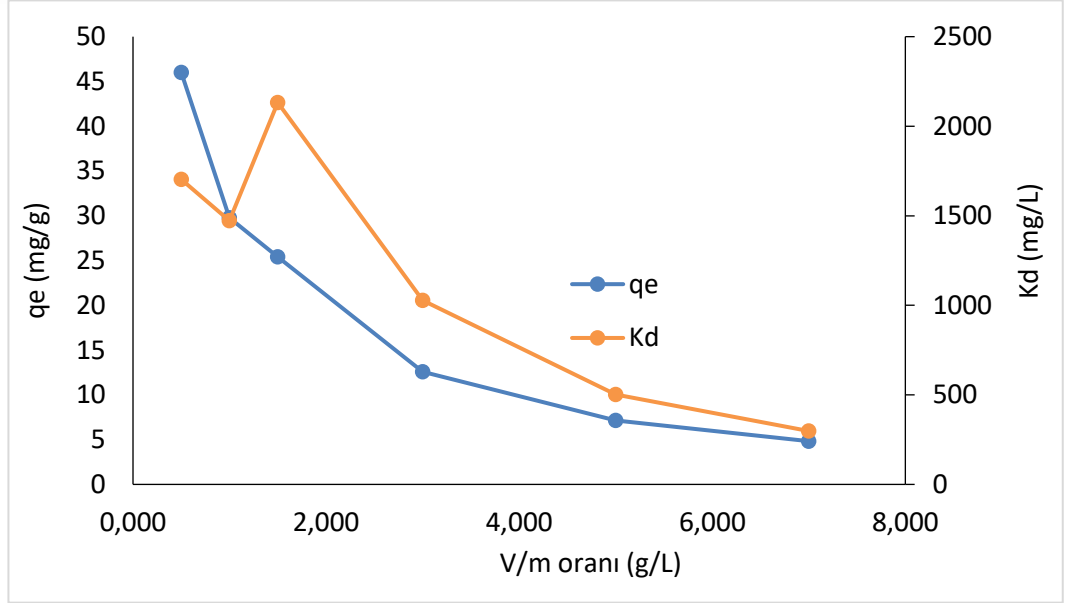


Şekil 4.10 Sr adsorpsiyonuna çalkalama süresinin etkisi.

Oluşan grafikte 15-90 dakika arasında adsorpsiyonun yavaş bir şekilde arttığı görülmektedir. Devamında 90. dakikadan sonra adsorpsiyonun hızla yükseldiği ve 150. dakikada en yüksek noktaya geldiği gözlenmektedir. Maksimum değere ulaşmanın sebebi adsorbanın bu dakika itibarıyla kapasitesini sonuna kadar doldurmasıdır. Bu yüzden 150 dakika çalkalama süresinde çalışılmıştır. 150 dakikadaki azami adsorpsiyon sonuçları;  $K_d=2304.22$  mL/g ile  $q_e=25,85$  mg/g olarak bulunmuştur.

#### 4.2.4 Biyokütle dozunun (V/m oranı) etkisi

Birim gram adsorbanın çözelti içinde kapladığı hacim V/m'dır. SKA adsorban miktarları değiştirilip çözelti hacmi değiştirilmeden ( $V=10$ mL), Sr derişimi 50ppm, oda sıcaklığı( $t=25^\circ\text{C}$ ) ve  $\text{pH}=6$  iken termostatlı su banyolu çalkalayıcıda 120 dakika boyunca temas ettirilmişlerdir. Şekil 4.11'de dağılma katsayısı  $K_d$ 'de ve % adsorpsiyonda meydana gelen değişimler verilmiştir.



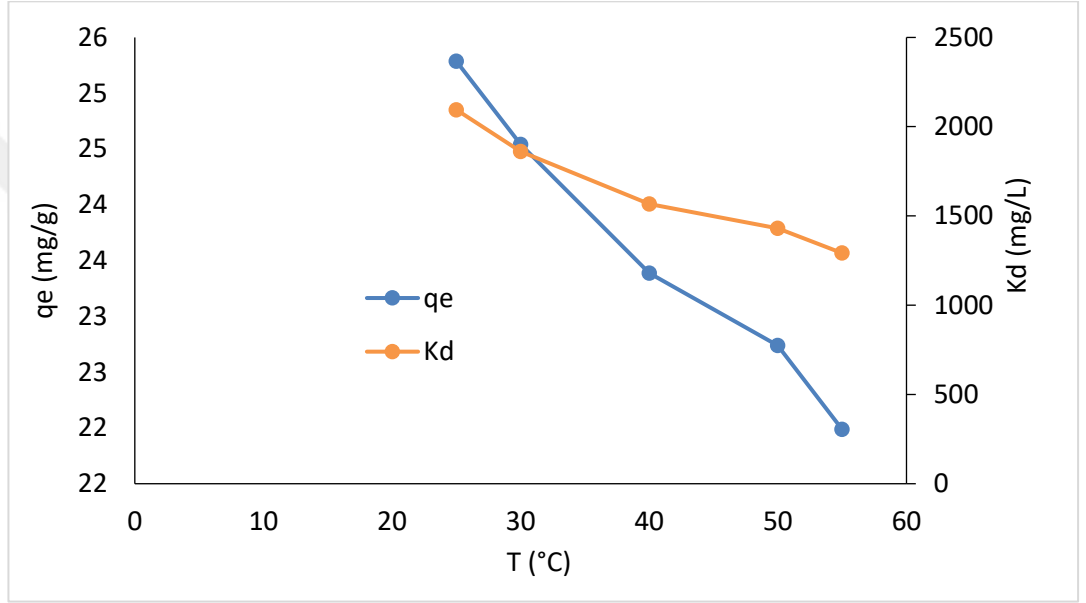
Şekil 4.11 Sr adsorpsiyonuna V/m oranının etkisi.

SKA adsorbanı ile oluşan grafikte V/m oranının artması % adsorpsiyonun önce azalmasına sonra artmasına ve değişken sonuçlar çıkmasına neden olduğu görülmektedir. Deneydeki adsorban için en uygun V/m oranı 1000 olarak tespit edilmiştir. 10 mL Sr çözelti hacmine karşılık 0.01 g SKA adsorban ile bundan sonraki deneylerimiz gerçekleştirilerek devam ettirilmiştir.

#### 4.2.5 Sıcaklığın etkisi

Sıcaklık faktörünün Sr adsorpsiyonuna tesirini incelemek için, 25°C-55°C arasındaki sıcaklıklar incelenmiştir. Sr derişimi 15 mg/L, V=10 mL, pH=6 ve sorbent miktarı 0.015 gram olacak şekilde ayarlanarak deney başlatılmıştır.

Şekil 4.12’de Sr adsorpsiyonuna sıcaklığın etkisi gösterilmiştir. Sıcaklık arttıkça Sr miktarı ve dağılma katsayısının azaldığı görülmektedir. Bu grafik bize sıcaklık arttıkça verimin azaldığını yani adsorpsiyonun ekzotermik olduğunu göstermektedir.

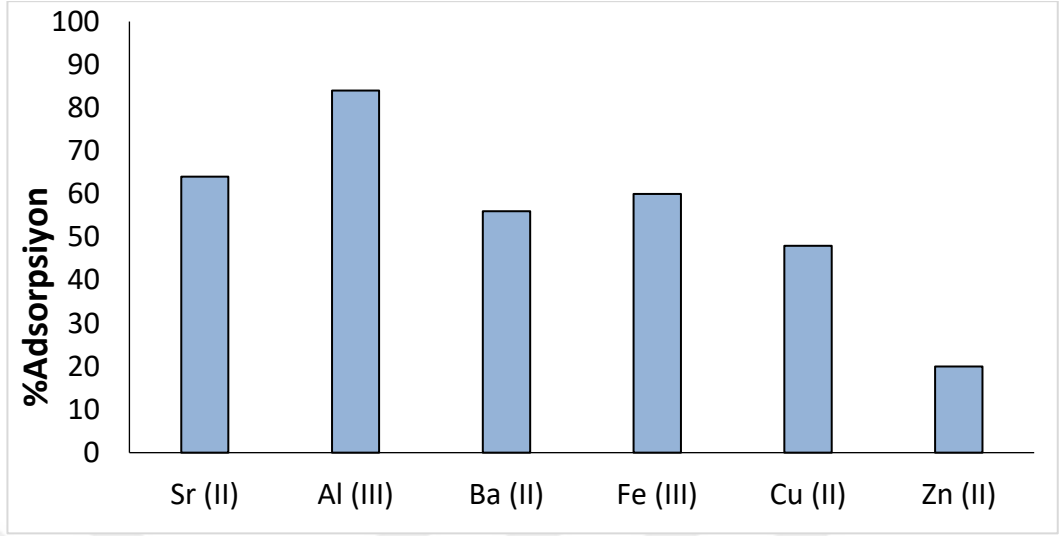


Şekil 4.12 Sr adsorpsiyonuna sıcaklığın etkisi.

#### 4.2.6 Yabancı iyon etkisi

25 °C oda sıcaklığı ortamında 50 mg/L Sr (II) 25 mg/L diğer metal iyonları konsantrasyonları varlığında, 120 dakika boyunca termostatlı su banyolu çalkalayıcı kullanılarak bu karışımlar etkileştirilmiştir. Çıkan değerler ICP-OES cihazı ile ölçülmüştür.

Şekil 4.13’de metal iyonlarının adsorpsiyon değerleri görülmektedir.



4.13 Adsorpsiyona metal iyonların etkisi.

### 4.3 Uygun Sr (II) Adsorpsiyon Koşulları

Sepiyolit katkı aljinatın, sulu çözeltisinden Sr (II) iyonunu adsorpsiyonu için çalışılan aralık ve oluşan uygun koşullar Çizelge 4.3’ de verilmektedir.

Çizelge 4.3 Sr (II) adsorpsiyonu için en iyi sonuçlar.

Değişken	Sr (II) Konsantrasyon	pH	Etkileşim	Sıcaklık (°C)	V/m
Değerler	Değeri (mg/L)	Değeri	süresi (dk.)	Değeri	hacim/kütle oranı
Çalışma aralığı	10-150	2-9	15-150	25-55	1000-7000
Optimum Koşul	50	6	120	25	1000

Çizelge 4.3 ile elde edilen değerlere göre; Sr(II) başlangıç konsantrasyonu artış gösterdikçe, pH 6 değerinde, temas süresi arttıkça, oda sıcaklığında (25 °C) ve V/m oranı arttıkça SKA adsorbanının Sr (II) adsorpsiyon veriminin arttığı görülmektedir.

#### 4.4 Sr (II) Adsorpsiyonunda Termodinamik Özellikler

Sr(II) adsorpsiyonu için termodinamik özelliklerin belirlenebilmesi amacıyla bazı eşitlikler kullanılmıştır. Bu eşitlikler şu şekildedir;

$$K_d = e^{\frac{-\Delta G}{RT}} \quad (4.1)$$

4.1'deki her iki tarafın ln'ini alırsak;

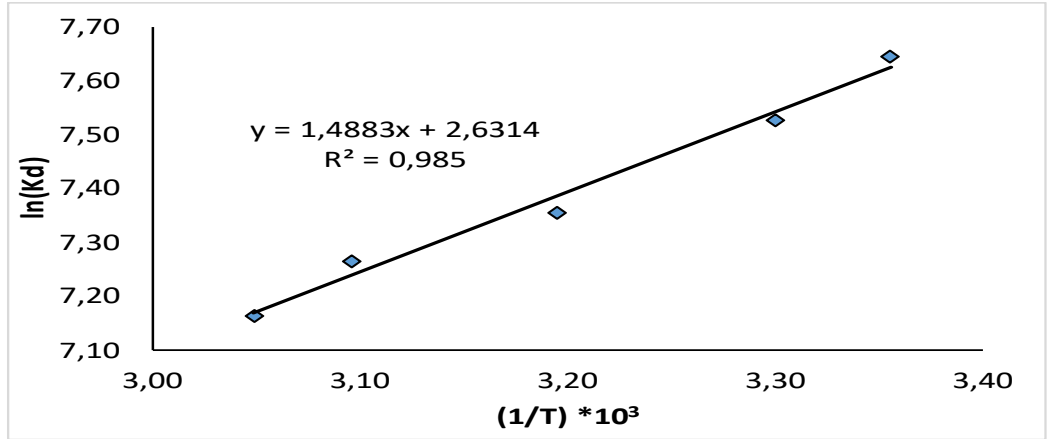
$$\Delta G = -RT \ln K_d \quad (4.2)$$

$$\Delta G = \Delta H - T\Delta S \quad (4.3)$$

4.3'teki  $\Delta G$ 'yi 4.2'de koyarak  $\ln K_d$  yalnız bırakılır ise;

$$\ln K_d = \frac{\Delta S}{R} - \frac{\Delta H}{RT} \quad (4.4)$$

$\ln K_d$  ile  $1/T$  arasındaki grafik çizilmiştir (Şekil 4.14), grafikte ortaya çıkan eğim ile adsorpsiyondaki entalpi değişim değeri ( $\Delta H$ ) ve adsorpsiyon entropisi değişim ( $\Delta S$ ) değerlerini bulabiliriz. Grafik ile bulunan  $\Delta H$  ve  $\Delta S$  değerleri ile Gibbs serbestlik enerjisindeki değişim ( $\Delta G$ ) hesaplanmaktadır.



Şekil 4.14 Sr (II) adsorpsiyonu lnKd- 1/T grafiği.

Şekil 4.14 ile Sr (II) adsorpsiyonu lnKd- 1/T grafiği verilmiştir. Bu grafiğe göre oluşan Çizelge 4.4 ile termodinamik parametre değerleri olan adsorpsiyon entalpi değişim değeri ( $\Delta H$ ), serbest enerji değişim değeri ( $\Delta G$ ) ve entropi değişim değeri ( $\Delta S$ ) sonuçları gösterilmiştir.

Çizelge 4.4 Sr (II) adsorpsiyonu termodinamik parametreleri.

Sorbent	$\Delta H^0$	$\Delta S^0$	$\Delta G^0$				
			298 K	303 K	313 K	323 K	328K
SKA	-0,012	0,0219	-6,53	-6,64	-6,86	-7,08	-7,19

SKA adsorbantıyla Sr (II) adsorpsiyonu sırasında  $\Delta H$  (entalpi) sonucunun negatif bir değer olması (-0,012 kJ/mol) adsorpsiyon sürecinin ekzotermik olarak ilerlediğini göstermektedir. Negatif değer olan  $\Delta G$  (Gibbs serbest enerjisi) adsorpsiyon sürecinin kendiliğinden (istemli) olarak oluştuğunu gösterir. Sıcaklık artmasına rağmen serbest enerji değişiminde bir farklılık görülmemiştir. Kendiliğinden meydana gelen tüm bu olaylarda, bir değişimli artış meydana gelir ve bu durum entropinin ( $\Delta S$ ) pozitif olmasıyla açıklanır. Pozitif  $\Delta S$ , adsorpsiyon sürecinde katı/çözelti dağılımında moleküllerin daha rastgele tutulduğunu ifade eder. Ayrıca, adsorbantın gerçekleştiği adsorpsiyon işleminin bozulması, yüzeylerdeki değişimlerin yani entropinin yükseldiğini ifade eder.

#### 4.5 Adsorpsiyon İzotermi

SKA adsorbantla birlikte oda sıcaklığı 25°C’de ve 25, 50, 75, 100 mg/L Sr (II) derişimleri ile oluşan adsorpsiyon sonuçları; *Freundlich*, *Langmuir* ve *Dubinini-Radushkevich* izoterm modellerine göre değerlendirilmiştir.

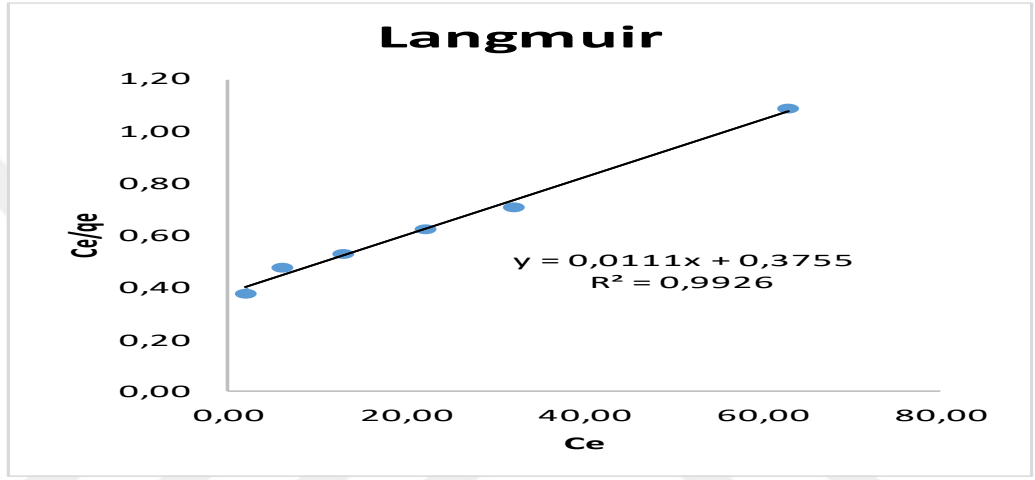
##### 4.5.1 Langmuir izotermi

Langmuir teorisi, adsorbantın yüzey üzerinde sınırlı miktarda etkin noktada bulunabileceğini ve adsorpsiyonun bu etkin noktalarda gerçekleştiğini söylemektedir. Bu teori, adsorpsiyonun homojen şekilde ve tek tabakalı olarak meydana geldiğini kabul etmektedir. Langmuir, adsorplanması hedeflenen maddenin belirli bir derişiminde, adsorbant yüzeyinin doygunluk noktasına ulaşır. Langmuir izotermi modeline göre, adsorpsiyon stabilitesi dinamik yapıya sahiptir ve tamamen stabil değildir. Langmuir eşitliği aşağıdaki gibi gösterilmektedir;

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{K_L} + \left(\frac{a_L}{K_L}\right) C_e \quad (4.5)$$

- $C_e$ : Çözeltideki madde konsantrasyon değeri (mg/L)  
 $q_e$ : Adsorplanan maddenin miktarı (mg/g)  
 $K_L$ : Adsorplanma kapasite değeri ait sabit (L/g)  
 $a_L$ : Adsorpsiyon enerjisi ile ilgili sabit (L/mg)  
 $Q_{max}$ : Maksimum kapasite değeri (mg/g)

Yukarıdan elde edilen  $C_e/q_e$  ve  $C_e$  değerleri ile oluşan değişimin grafiğinden elde edilmiş doğru eğimi ve kesim noktaları  $a_L/K_L$  ile  $1/K_L$  sabitlerini bulmamızı sağlamaktadır.  $Q_{max}$  ( $K_L/a_L$ ) adsorban kapasite değerini vermektedir.



Şekil 4.15 SKA- Sr (II) adsorpsiyonu Langmuir adsorpsiyon izotermi.

SKA ile Sr (II) adsorpsiyonu arasında görülen grafik ile SKA ile Sr (II)'nin adsorpsiyon korelasyon katsayısı 0,9926' dır.

$R_L$  sabitinin 0 ile 1 değer aralığında olması adsorpsiyonun uygunluk gösterdiği sonucu çıkmaktadır (Çiftçi, 2015).

$$R_L = \frac{1}{1 + KLC_0} \quad (4.6)$$

$C_0$ : Elementin derişim değeri (mg/L)

$R_L$  değeri  $0 < R_L < 1$  değerleri arasındadır. Sonuç olarak adsorpsiyon sisteminin veriminin yüksek değerde olduğu anlamına gelmektedir.

#### 4.5.2 Freundlich izotermi

Freundlich izotermi, adsorpsiyonun heterojen yüzeylerde ortaya çıkması durumları için geliştirilmiş bir modeldir ve yüzey enerjilerinin eşit olmadığı sistemler ifade eder. Bu modelde, adsorpsiyon dengesinde adsorplanan maddenin derişimi, çözültideki hacmin artışıyla birlikte artışını sağlar. Heterojen yüzeylerdeki adsorpsiyon olaylarını daha kalıcı bir şekilde temsil eden Freundlich izotermi denklem 4.7'deki gibi gösterilir;

$$\log q_e = \log K_F + \frac{1}{n} \log C_e \quad (4.7)$$

$C_e$ : çözültide içinde kalan maddenin konsantrasyon değeri (mg/L)

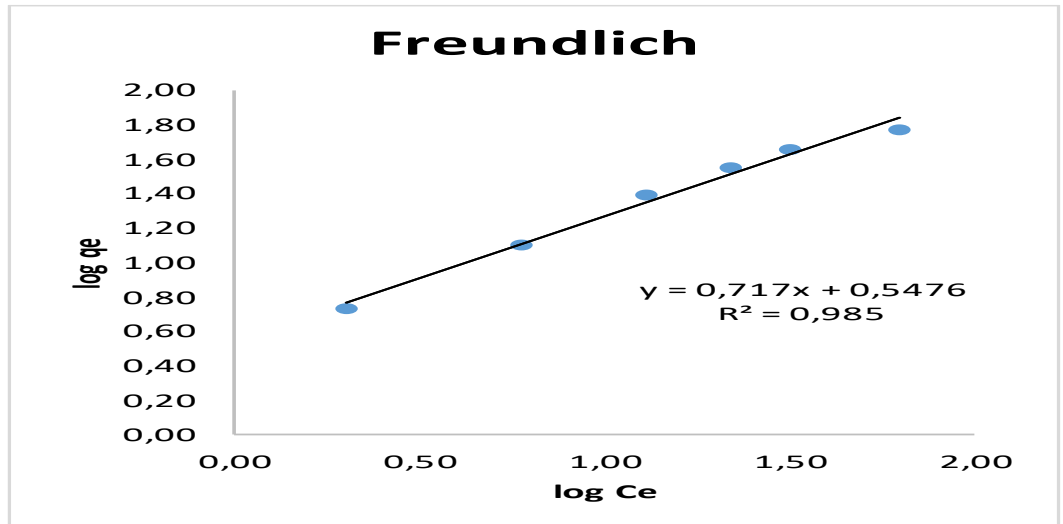
$q_e$ : adsorplanmış madde miktarı değeri(mg/g)

$K_F$ : Adsorpsiyondaki kapasite değeri (L/g)

$n$ : Adsorpsiyondaki yoğunluk değeri (birimsiz)

$\log q_e$  ve  $\log C_e$  arasında gösterilen değişimin grafik üzerine dökülmesi ile birlikte  $K_F$  ile  $n$  sabit değerleri bulunmaktadır. Grafik üzerinde oluşan doğru parçasının  $y$  eksenini kesim noktası  $\log K_F$  değerini ve eğimi ise  $1/n$  değerini vermektedir.  $n > 1$  ise adsorpsiyon işleminin elverişli olarak gerçekleştiğini göstermektedir.

Şekil 4.16 SKA'nın adsorpsiyonu için çizilen grafikdir. Korelasyon katsayısı;  $R^2=0,985$  olarak hesaplanmıştır ve adsorbanın da  $S_r$  adsorpsiyon mekanizması Freundlich izotermi ile uyumludur.



Şekil 4.16 SKA-  $S_r$  (II) adsorpsiyonu Freundlich izotermi.

#### 4.2.7 Dubinin-Radushkevich izotermi

(D-R) izotermi, yüzeylerin izleri ile gözeneklerin hacim değerleri hakkında bilgi vermektedir. D-R izotermi, genellikle düşük konsantrasyon değerlerinde uygulanmaktadır. Ayrıca homojen ve heterojen yüzeyleri tarif etmek için uygulanan bir model olmuştur. D-R izotermi, gözenekler için küçükten büyüğe olacak şekilde dolacağı varsayılarak oluşturulmuştur. Ek olarak mikro gözeneklerin hacim değerlerini gösterir. D-R izoterm modelinde kullanılan eşitlik aşağıda verilmiştir;

$$\ln C_{ads} = \ln X_m - \beta \varepsilon^2 \quad (4.8)$$

$X_m$ : Maksimum sorpsiyon kapasitesi

$\beta$ : Ortalama sorpsiyon enerji değeri

$\varepsilon$ : Polanyi potansiyeli

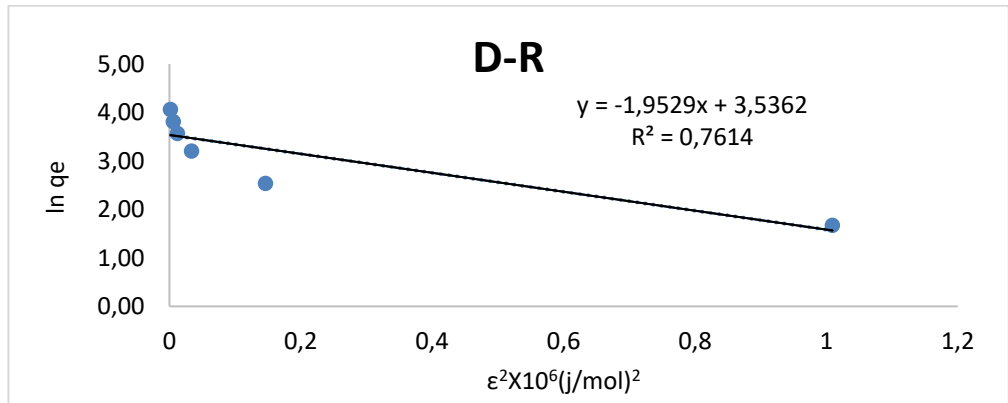
$$\varepsilon = RT \ln\left(\frac{1}{1 + C_e}\right) \quad (4.9)$$

R : Gazın sabiti (kJ/mol)

T : Sıcaklık (K)

$\ln C_{ads}$  değerine karşılık  $\varepsilon^2$  grafik çizildiğinde,  $\beta$  (mol/K)<sup>2</sup> ile  $X_m$  doğrudaki eğimden ve kesişim noktalarından bulunacaktır.

Şekil 4.63'de SKA adsorbantı için  $\ln C_{ads}$  ile  $\varepsilon^2$  değerlerinin grafiğe aktarımı gösterilmektedir. SKA adsorbantı için korelasyon katsayısı;  $R^2=0,7614$ 'tür. Sr adsorpsiyon mekanizması D-R adsorpsiyon modeliyle uyumlu olarak görülmüştür.



Şekil 4.17 SKA- Sr (II) adsorpsiyonu D-R izotermi.

Çizelge 4.5 SKA- Sr (II) adsorpsiyonuna ilişkin Langmuir, Freundlich ve D-R sabitleri.

	$Q_{\max}$ (mg/g)	$K_L$ (L/g)	$K_F$ (mg/g)	$1/n$	$X_m$ (mg/g)	$E$ (kJ/mol)	$R_L$
<b>SKA</b>	89,776	29,7	3,528	0,528	34,338	0,506	0,453

## 5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

Gerçekleştirilen yüksek lisans tez çalışmasında, biyokompozit sentezlenmesinde Sepiyolit kili ve doğal bir biyopolimer olan Na-aljinat tuzunun kullanılmış olup; sentezlenen kompozit malzeme ve bileşenlerinin, fiziksel ve kimyasal özellikleri çeşitli enstrümental yöntemlerle incelenmiştir.

Sepiyolit ve sepiyolit katkı aljinat örneğinin FT-IR pikleri incelenmiştir. Sepiyolit örneğinin XRD, EDXRF ve BET sonuçlarının literatürde verilen farklı bölgelerdeki örneklerin sonuçları ile karşılaştırılabilir nitelikte oldukları görülmüştür. Sepiyolit-Aljinat örneğine ait SEM görüntüleri verilmiştir. Sepiyolit-Aljinat biyokompozit yapısında ise, Sepiyolit parçacıklarının resimleri, aljinatlı kompozite göre daha pürüzlü bir yüzey dokusuna sahip olduğunu göstermiştir.

Sentezlenen sepiyolit katkı aljinat kompozitlerin Sr (II) iyonları için adsorpsiyon koşulları kesikli yöntem ile incelenmiştir. İncelenen deneysel parametreler sonucunda adsorpsiyon veriminin sıcaklık, çalkalama süresi, başlangıçtaki stronsiyum konsantrasyonu, V/m oranı ve çözelti pH değeri ile değişim gösterdiği görülmüştür.

Sepiyolit Katkılı Aljinat (SKA) adsorbanı ile Sr (II) adsorpsiyonunda pH tesirinin sonuçlarının tayin edilmesi için 10 mg/ olan Sr çözeltileri pH değerleri 2 ile 9 arasında değiştirilmiştir. 10 mL'lik Sr çözeltileri 0.015 g'lık adsorbanlarla, 25°C'de 120 dakika olacak şekilde ayarlanarak etkileştirilmiştir. Bunların sonucunda SKA adsorbanı için en uygun değer pH 6 olduğu görülmüştür. Bulunan pH değerindeki en yüksek değerler;  $K_d=2104.18$  mL/g ile  $q_e=25,31$  mg/g olarak bulunmuştur.

Sr (II) iyonu çözeltisi için konsantrasyon değerinin adsorpsiyona tesiri belirlenmiştir. Bunun için 10 ile 150 ppm arasında Sr (II) çözeltileri oluşturulmuştur. Sr (II) çözeltilerinin her biri 0.015 g adsorban ile pH 6, 120 dakika temas süresi ve 25°C oda sıcaklığı olacak şekilde termostatlı su banyolu çalkalayıcı içinde temas ettirilmişlerdir. Sonucunda Sr konsantrasyonunun artması ile  $q_e$  değerinin arttığı, dağılma katsayısının ise azaldığı görülmüştür. Seyreltik ortamlarda çalışılması düşünüldüğü için Sr derişimi 50 mg/L olarak seçilmiştir.

SKA adsorbanı ile Sr adsorpsiyonu üzerine temas süresinin etkisini inceleyebilmek için,  $m=0.015$  g adsorban, 25°C oda sıcaklığında,  $t=15-150$  dakika aralığında derişim değeri  $C_b=50$  mg/L, hacim değeri  $V=10$  mL olan Sr çözeltisi ile, termostatlı su banyolu çalkalayıcı içerisinde temas ettirilmişlerdir. SKA adsorban için oluşan grafikte 15-90 dakika aralığında adsorpsiyonun çok yüksek gözlenmediği fakat 90. dakika itibariyle adsorpsiyonun arttığı ve

150. dakikada en yüksek değerde olduğu görülmüştür. Bu sebeple adsorbanın 150. dakika itibari ile yükselebileceği en yüksek değere ulaştığı gözlemlenmiştir ve deneylerde bu değer temas süresi olarak kabul edilmiştir. 150.dakikada  $K_d=2304.22$  mL/g ile  $q_e=25,85$  mg/g olarak ölçülmüştür.

Çözelti hacmi 10 mL değeri sabit kalmak şartı ile SKA adsorbanı miktarı 0,005-0,010-0,015-0,030-0,050-0,070g olacak şekilde biyokompozit kütle oranı ayarlanmıştır. Sr konsantrasyon değeri 50 ppm (mg/L), 25°C ortam sıcaklığı ve pH 6 değerinde çözelti ile SKA adsorbanı termostatlı su banyolu çalkalayıcı ile 120 dakika çalkalanmışlardır. SKA adsorbanı ile gerçekleştirilen çalışmalarda V/m oranının artması % adsorpsiyonun önce azalmasına sonra artmasına neden olduğu görülmüştür. Buradaki değerler dalgalı bir değişim göstermiştir. Sonuç olarak en uygun V/m oranının 1000 olduğu değer kabul görmüştür.

Sr adsorpsiyonuna sıcaklık tesirinin incelenmesi için sıcaklık 25°C ile 55°C arasında değiştirilmiştir. Sr derişimi 15 mg/L, Sr hacim değeri 10 mL, adsorbanın miktarı 0.015 gram ve pH=6 olacak şekilde ayarlanarak SKA adsorban ile çizilen grafikte sıcaklık arttıkça Sr miktarı ve dağılma katsayısı azaldığı görülmüştür. Adsorpsiyonun sıcaklıkla istemsiz yani ekzotermik olarak değiştiği gözlenmiştir.

Sr adsorpsiyonuna 25 mg/L Fe(III), Al(III), Cu(II), Ba(II), Zn(II) ve 50 mg/L Sr(II) iyonlarının olduğu yapay metal çözeltisi oluşturulmuştur. SKA biyosorbenti ile stronsiyum içeren yapay metal çözeltisi uygun şartlarda temas ettirilmiştir. Metal iyonlarının konsantrasyonları ICP-OES cihazı ile belirlenmiştir. SKA adsorban yabancı iyonların varlığı Sr'un adsorpsiyonunu olumsuz yönde etkilemiş bulunmaktadır. Adsorbanın metallere olan ilgisi;  $Al^{3+} > Sr^{2+} > Fe^{3+} > Ba^{2+} > Cu^{2+} > Zn^{2+}$  şeklinde olduğu dolayısıyla stronsiyum iyonlarına karşı selektivite göstermediği gözlenmiştir.

Sepiyolit Katkılı Aljinat (SKA) ile Sr (II) adsorpsiyon olayındaki; entropi değişimi ( $\Delta S$ ), adsorpsiyon entalpi değişimi ( $\Delta H$ ) ve Gibbs serbest enerji değişimi ( $\Delta G$ ) termodinamik özellikler bulunmuştur. SKA adsorbanıyla Sr (II) adsorpsiyonu sırasında elde edilen  $\Delta H$  (entalpi) değişiminin eksi değerde olduğunun (-0,012 kJ/mol) görülmesi adsorpsiyon olayının ekzotermik olduğunu göstermiştir.

SKA adsorbanla birlikte 25°C ortam sıcaklığı ve 25, 50, 75, 100 mg/L Sr (II) derişimleri ile edinilen adsorpsiyon değerleri ile bu adsorbanın Sr (II) iyonunu arasındaki çalışmanın *Langmuir*, *Freundlich* ve *Dubin-Radushkevich* izotermine uygun olup olmadığına bakılmıştır. SKA ile Sr (II) adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerle, SKA ile Sr (II)'nin adsorpsiyon korelasyon katsayısı 0,9926 olarak bulunmuştur ve adsorpsiyon sisteminin

veriminin yüksek olduđu görülmüştür. Freundlich izotermi SKA'ın adsorpsiyonu için Korelasyon katsayısı;  $R^2=0,985$  olarak hesaplanmıştır. Freundlich adsorpsiyon modeliyle uyum gösterdiği görülmüştür. Dubinin-Radushkevich izotermi SKA adsorbantı için korelasyon katsayısı;  $R^2=0,7614$  olarak hesaplanmıştır. Sı adsorpsiyon mekanizması D-R adsorpsiyon modeline daha düşük uyum gösterdiği görülmüştür.



## KAYNAKLAR DİZİNİ

- Ahmed, E.M.**, 2015, Hydrogel: Preparation, characterization, and applications: A review, *Journal of Advanced Research*, 6 (2), 105-21.
- Aksu, Z., Çalık, A., Dursun, A. Y. ve Demircan, Z.**, 1999, Biosorption of iron (III)-cyanide complex anions to rhizopus arrhizus: Application of adsorption isotherms, *Process Biochemistry*, 34:483-491pp.
- Aksu, Z. ve Yener, J.**, 2001, A comparative adsorption/biosorption study of mono-chlorinated phenols onto various sorbents, *Waste Management*, 21:695-702.
- Al-Duri, B. and McKay, G.**, 1988, Basic dye adsorption on carbon using a solidphase diffusion model, *The Chemical Engineering Journal*, 38:23-31pp.
- Alvarez, A. and Perez C.R.**, 1982, Sepiolite in the field of animal nutrition. Proc. 5th Int. Cong. Industrial Minerals, Madrid,37-45pp.
- Alvarez, 1984; Serna ve Van Scoyoc, 1978**, Sepiolite: Properties and Uses, In: A. Singer and E. Galan, eds. Palygorskite-Sepiolite. Occurrences, Genesis and Uses, Developments in Sedimentology 37, Elsevier, Amsterdam, 253-287pp.
- Appel, C., Ma, L.Q., Rhue, R.D. and Kennelly, E.**, 2003, Point of zero charge determination in soils and minerals via traditional methods and detection of electroacoustic mobility, *Geoderma*, 113:77-93pp.
- Babel, S. and Kurniawan, T.A.**, 2003, Low-cost adsorbents for heavy metals uptake from contaminated water: A review, *Journal of Hazardous Materials*, 97, 219-243pp.
- Brauner K. and Preisinger A.**, 1956, Struktur und entstehung des Sepioliths. *Tschermaks Miner. Petrog.Mitt.*, 6, 120-140.
- Boukhalfa N., Darder M., Boutahala M., Aranda P., and Ruiz-Hitzky E.**, 2021, Composite Nanoarchitectonics: Alginate Beads Encapsulating Sepiolite/Magnetite/Prussian Blue for Removal of Cesium Ions from Water *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, 94, 122–132pp.
- Byrne, M.E., Park, K. and Peppas, N.A.**, 2000, *Advan. Drug Deliv. Rev.*, 54 (1), 149
- Can G.**, 1992, Dünya’da ve Türkiye’de Sepiyolitik Kil. MTA Fizibilite Etüdüleri Dairesi, Ankara, 1-8.
- Castillo L., Lescano L., Marfil S. and Barbosa S.**, 2022, Sepiolite nanofibers structure. From tridimensional networks to bidimensional layers, *Applied Clay Science* 228, 106595.

## KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Çetişli, H.**, 1985, Asetik Asit ile n-Bütanolün Eskişehir Sepiyoliti Üzerine Esterleşmesi. *A.Ü. Mühendislik-Mimarlık Fakültesi Dergisi*, Cilt II, sayı 1, Eskişehir, 109-117.
- Cheikh D. Sampedro R.M., Majdoub H. and Darder M.**,2020, Alginate bionanocomposite films containing sepiolite modified with polyphenols from myrtle berries extract, *International Journal of Biological Macromolecules* 165, 2079–2088.
- Chiou, M.S. and Li, H.Y.**, 2002, Equilibrium and kinetic modeling of adsorption of reactive dye on cross linked chitosan beads, *Chemosphere*, 50:1095-1105.
- Chinoune et al.**, 2024, *Inorganic Chemistry Communications*, Adsorption behavior of MB dye on alginate-sepiolite biocomposite beads: Adsorption, kinetics, and modeling, Cilt 165 , 112558.
- Cırık, K., Yiğit, N., Gören, S. ve diğ.**, 2013, “Boyar Madde İçeren Atıksu Arıtma Tesislerinin İşletilmesine Yönelik El Kitabı”, 109G083 Nolu Tübitak Kamag Projesi El Kitabı, Ankara.
- Dakiky, M., Khamis, M., Manassra, A. and Mereb, M.**, 2002, Selective adsorption of chromium (VI) in industrial wastewater using low-cost abundantly available adsorbents, *Advances in Environmental Research*, 6:533-540.
- Darder M., Regina C., Matos S., Aranda P., Figueredo R. G. and Ruiz-Hitzky E.**, 2017, Bionanocomposite foams based on the assembly of starch and alginate with sepiolite fibrous clay, *Carbohydrate Polymers* 157, 1933–1939.
- Dean, J.R.**, 1992, *Atomic Absorption and Plasma Spectroscopy*, John Wiley&Sons Ltd, England, 206 p.
- Demir, B. ve Kalpaklı, Y.**, 2020, “İşlem Görmemiş Kütahya Ca-Bentonitinin Bazik Mavi 41 (BB41) Adsorpsiyon Karakteristiğinin İncelenmesi”, *Iğdır Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi*, 10(1): pp. 309-319
- DPT**, 2001, VIII. Beş Yıllık Kalkınma Planı. Madencilik Özel İhtisas Komisyonu Raporu-Endüstriyel Hammaddeler Alt Komisyonu Genel Endüstri Mineralleri II Çalışma Grubu Raporu, DPT 2619- ÖİK:630.
- Duborg, M.**, 1998, Review of advanced methods for treating radioactive contaminated water, *Radioprotection*, 32(1), 35-45.
- Duman, O., Tunç, S. ve Gürkan, T.**, 2015, “Adsorptive removal of triarylmethane dye (Basic Red 9) from aqueous solution by sepiolite as effective and low-cost adsorbent”, *Microporous and Mesoporous Materials* 210, 176-184pp.

## KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Dung, T.T., Danh, T.M., Hoa L.T.M., Chien, D.M. ve Duc, N.H.**, 2009, Structural and magnetic properties of starch-coated magnetite nanoparticles, *Journal of Experimental Nanoscience*, 4(3), 259–267pp.
- Fersmann, A.**, 1913, Research on magnesian silicates. *Me'mories Acad. Sci. St. Petetersburg* 32,321–430pp.
- Gaber, S., Haija, M.A., Priyabrata, P., et al.**, 2018, “Removal of iron from industrial lean methyldiethanolamine solvent by adsorption on sepiolite”, *Seperation Science and Technology*, Vol 53, No. 3, 404-416 pp.
- Galan, E.**, 1996, Properties and applications of palygorskite-sepiolite clays. *Clay Miner.* 31: 44, 31: 443-4, 31: 443-453 pp.
- Glocker E.F.**, 1847, *Generum et Specierum Mineralium Secundum Ordines Naturales Digestorium Synopsis*. Halle (1847) 195p.
- Gonzalez-Barros, M.R.**, 1995, Spanish Industrial Minerals and Rocks, *Industrial Minerals*, May, 63- 117.
- Gök, C.**, 2010, Uranyum ve Toryumun Adsorpsiyonu İçin Aljinat Biyopolimerlerinin Hazırlanması ve Çeşitli Uygulama Alanlarının İncelenmesi, *Doktora Tezi*, E.Ü. Nükleer Bilimler Enstitüsü, İzmir.
- Gürboğa G.**, 2004, “Sezyum ve Stronsiyum Adsorpsiyonu İçin TiO<sub>2</sub>-SiO<sub>2</sub> Jel Küreciklerinin Hazırlanması ve Adsorpsiyon Koşullarının İncelenmesi”, *Doktora Tezi*, Danışman: Doç. Dr. Hüseyin TEL, Ege Üniv. Fen Bil. Enst., İzmir.
- Hamid, Y., Tang, L., Hussain, B. and et al.**, 2021, “Sepiolite clay: A review of its applications to immobilize toxic metals in contaminated soils and its implications in soil–plant system”, *Environmental Technology & Innovation*, Vol. 23-101598.
- Hasany, S.M., Saeed, M.M. and Ahmed, M.**, 2002, Sorption and thermodynamic behavior of zinc (II)-thiocyanate complexes onto polyurethane foam from acidic solutions, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 252:477–484.
- Hem, J.D.**, 1985, *Study and Interpretation of the Chemical Characteristics of Natural Water*, Alexandria-U.S.A., 151p.
- İnan S.**, 2009, “Zirkonyum-Mangan Oksit / PAN Kompozit Kürelerinin Hazırlanması ve Stronsiyum Sorpsiyonunun İncelenmesi”, *Doktora Tezi*, Danışman: Prof. Dr. Yüksel ALTAŞ, Ege Üniv. Fen Bilimleri Enst. İzmir.

## KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- John, R., Schreiter, K., Trommler, K., Siegel, C., Wagenführ, A. and Spange, S.,** 2019, Maleic anhydride copolymers as adhesion promoting reagent in wood veneer/biopolyethylene composite materials, *Polymer Composites*, 40, 5, 1979-1988.
- Jones, B.F. and Galan, E.,** 1988, Hydrous Phyllosilicates (Exclusive of Micas). In: S.W. Bailey (Editor), *Sepiolite and Palygorskite, Reviews in Mineralogy*, Vol. 19, Mineralogical Society of America, Ch. 16, 631-667.
- Khotimchenko, Y. S., Kovalev, V. V., Savchenko, O. V., Ziganshina, O. A.,** 2001, Physical–Chemical Properties, Physiological Activity, and Usage of Alginates, the Polysaccharides of Brown Algae, *Russian Journal of Marine Biology*, 27:53–64.
- Liangbin, L., Yapeng, F., Vreeker, R. and Appelqvist, I.,** 2007, Reexamining the Egg-box model in calcium-Alginate Gels with X-ray Diffraction, *Biomacromolecules*, 8, 464-468.
- Lin, C.-C. and Metters, A.T.,** 2006, Hydrogels in controlled release formulations: network design and mathematical modeling, *Advanced drug delivery reviews*, 58 (12-13), 1379-408.
- Lisuzzo L., Wicklein B., Dico G.L., Lazzara G., Real G., Aranda P. and Ruiz-Hitzky B.,** 2020, Functional biohybrid materials based on halloysite, sepiolite and cellulose nanofibers for health applications, *Dalton Trans.*, 49, 3830–3840.
- Martin-Vivaldi, J.L. and Cano-Ruiz, J.,** 1955, Contribution to the study of sepiolite: II. Some considerations regarding the mineralogical formula. *Clys Clay Miner.* 4, 173–176.
- McHugh, D.J.,** 2003. A guide to the seaweed industry, *FAO Fisheries Technical Paper* FAO, 441, 39-47.
- Mckay, G., Otterburn, M.S. and Sweeney, A.G.,** 1980, The removal of colour from effluent using various adsorbents–silica rate processes, *Water Research*, 14:15-20.
- McMullan, D.,** 1994, Scanning Electron Microscopy 1928–1965. *Scanning*, 17, 175-185 pp.
- Moon, H. and Lee, W.K.,** 1983, Intraparticle diffusion in liquid-phase adsorption of phenols with activated carbon in finite batch adsorber, *Journal of Colloid and Interface Science*, 96:162-171.
- Murray, H.,** 2006, “Occurrences, Processing and Applications of Kaolins, Bentonites, Palygorskitesepiolite, and Common Clays”, *Applied Clay Mineralogy*, Volume 2, 1st Edition

## KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Nasrollahzadeh M., Sajadi M.S., Seccadi M. and İsaabadi Z.,** 2019, Arayüz Bilimi ve Teknolojisi, Cilt:28, 1-27
- Ng, J. C. Y., Cheung, W. H. and Mckay, G.,** 2003, Equilibrium studies for the sorption of lead from effluents using chitosan, *Chemosphere*, 52:1021- 1030.
- Oremusová, J.,** 2007, Adsorption, Manual for laboratory practice in physical chemistry for students of pharmacy, Department of Physical Chemistry, Faculty of Pharmacy, Comenius University, Bratislava.
- Paquet, H., Duplay, J., Valleron-Blanc, M.M. and Millot, G.,** 1987, Octahedral compositions of individual particles in smectitepalygorskite and smectite-sepiolite assemblages. Proceedings of the International Clay Conference. Denver, 1985. In: Schult, L.G., Van Olphen, H., Mumpton, A. (Eds.), The Clay Minerals Society, Bloomington Indiana. 73–77.
- Park, H., Park, K. and Shalaby, W.S.,** 1993, Biodegradable hydrogels for drug delivery, CRC Press, p.
- Parlayıcı Ş.,** 2023, Green biosorbents based on glutaraldehyde cross-linked alginate/sepiolite hydrogel capsules for methylene blue, malachite green and methyl violet removal, *Polymer Bulletin*, 80:2457–2483.
- Peppas, N. A., Hoffman, A. S.,** 2020, Hydrogels. In *Biomaterials science* (pp. 153-166). Academic Press.
- Perkin Elmer,** 2000, Optima 2000 DV User's Guide, Perkin Elmer Inc., Federal Republic of Germany.
- Perkins, W.D.,** 1986, Fourier transform infrared spectroscopy, *Journal of Chemical Education*.
- Potera C.,** 2011. "TEHLİKELİ ATIK: Gölet Yosunları Stronsiyum-90'ı Tutuyor". *Çevre Sağlığı Perspektifi* .119(6): A244. doi: 10.1289/ehp.119-  
(Erişim tarihi:21 Aralık 2024)
- Raveendran, P., Fu, J. and Wallen, S.L.,** 2003, Completely green synthesis and stabilization of metal nanoparticles, *Journal of the American Chemical Society*, 125, 1394-13941.

## KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Ray, W., L., and James, B.N.**, 1993, Industrial Gums, Algin, 105-142, San Diego: Academic Press.
- Rodriguez, M.A.V., Gonzalez, J. de D.L. and Munoz, M. A. B.**, 1994, "Acid activation of a Spanish sepiolite: physico-chemical characterization, free silica content and surface area of products obtained". Clay Minerals, 29(3), 361–367.
- Ruiz-Hitzkya, E., Darder, M., Fernandes, M.F., Wickleina, B., Alcântaraa, A.C.S. and Aranda, P.**, 2013, Fibrous clays based bionanocomposites / Progress in Polymer Science 38 (2013) 1392–1414.
- Sabah, E., Özdemir, O. ve Çelik, M.S.**, 1998, Thermodynamic Treatment of Cationic Surfactant Adsorption onto Clay Adsorbent. Proceedings of the 7 International Mineral Processing Symposium, Istanbul, 893-898.
- Sarız, K. ve Nuhoglu, I.**, 1992, Endüstriyel ham madde yatakları ve madenciliği. Anadolu Üniversitesi Yayınları, No. 636, 338-343.
- Serratos, J.M.**, 1978, Surface Properties of Vibrous Clay Minerals (Palygorskite and Sepiolite). Proc. 1979 Int. Clay Conf, Oxford. Elsevier, 99-109.
- Serna, C. and Van, Scoyoc, G.E.**, 1978, Infrared Study of Sepiolite and Palygorskite Surfaces, Proc. 1978 Int. Clay Conf. Oxford, Elsevier, 197- 206.
- Shahwan, T. and Erten, H.N.**, 2002, Thermodynamic parameters of Cs<sup>+</sup> sorption on natural clays, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 253:115-120.
- Singh P.N., Tiwarya, D. and Sinha, I.**, 2015, Starch-functionalized magnetite nanoparticles for hexavalent chromium removal from aqueous solutions, *Desalination and Water Treatment*, 1-12.
- Skoog, D.A., Holler, F.J. and Nieman, T.A.**, 1998, “Enstrümental Analiz İlkeleri”, Çeviri Editörleri, Kılıç, E., Köseoglu, F., Yılmaz, H., *Bilim Yayıncılık*, Ankara, 230-251.
- Slejko, F.L.**, 1985, Adsorption Technology: a Step-by-Step Approach to Process Evaluation and Application, Marcel Dekker, New York.
- Smith, J.M.**, 1981, Chemical Engineering Kinetics, McGraw-Hill International Book, London, 675p.
- Tian L., Wang L., Wang K., Zhang Y. and Liang J.**, 2019, The Preparation and Properties of Porous Sepiolite Ceramics Scientific Reports ,9:7337.

**KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)**

**United States Environmental Protection Agency**, 2024, ‘Radionuclide Basics: Strontium-90’.

(<https://www.epa.gov/radiation/radionuclide-basics-strontium-90> )

(Erişim Tarihi: 26 Aralık 2024)

**University Libraries**, 2006, ‘Radiation Public Health Project Fact Sheet: Strontium-90 in the Environment’.

(<https://special.library.unlv.edu/node/124859> )

(Erişim Tarihi: 26 Aralık 2024)

**Visinescu, D., Tirsoaga, A., Patrinoiu, G., Tudose, M., Paraschiv, C., Ianculescu, A. and Carp, O.**, 2010, Green synthetic strategies of oxide materials: Polysaccharides-Assisted synthesis part II. Starch-Assisted synthesis of nanosized metal-oxides, Revue Roumaine de Chimie, 55(11-12), 1017-1026.

**Yalçın, H.**, 2005, Malzeme Analiz Teknikleri Ders Notları, Cumhuriyet Üniversitesi Jeoloji Mühendisliği Anabilim Dalı, Sivas.

**Zactiti, E., M. and Kieckbush, T.**, 2006, Potassium sorbate permeability in biodegradable alginate films, Journal of Food Engineering, 77, 462- 467.

## TEŞEKKÜR

Yüksek lisans sürecimde değerli fikirleri ile laboratuvar çalışmalarında beni yönlendiren danışmanım Prof. Dr. Şule AYTAŞ'a teşekkürler ederim.

Tez çalışmamda her türlü olanağı sunan Nükleer Bilimler Enstitüsü Müdürü ve aynı zamanda Nükleer Teknoloji Ana Bilim Dalı Başkanı Sayın Prof. Dr. Sabriye YUŞAN'a teşekkürler ederim.

Deneylemim esansında ICP-OES analiz ölçümlerini gerçekleştiren Sayın Prof. Dr. Şenol SERT'e ve Dr. Öğretim Üyesi Sayın İ. Gözde KAPTANOĞLU'na, laboratuvar deneysel çalışmalarında ve verilerin değerlendirilmesinde desteklerini esirgemeyen sayın Dr. Alparslan Enes ORAL'a ve değerli arkadaşlarıma yardımları için teşekkür ederim.

Tezimin her kademesinde en büyük destekçim sevgili eşim Hasan ÖZCAN'a, hayatım boyunca sevgisini ve ilgisini esirgemeyen annem Ülkü ATLIHAN'a, dünyanın en özverili babası Mesut ATLIHAN'a ve ailemin değerli üyelerine bana verdikleri destekler için çok teşekkürler ederim.

Beni her zaman destekleyen ve bana bu dünyada evlat aşkını yaşatan geleceğin bilim insanı adayları olan çocuklarım İ. Efe ÖZCAN ve Ela ÖZCAN'a yürekten teşekkür ederim.

**ÖZGEÇMİŞ**

**Adı Soyadı:** Yasemin Demet ÖZCAN

**2022/2025 :** Yüksek Lisans, Ege Üniversitesi,

Nükleer Bilimler Enstitüsü,

Nükleer Teknoloji Ana Bilim Dalı,

İzmir, Türkiye.

**2004/2010:** Lisans, Ege Üniversitesi, Fen Fakültesi, Fizik Bölümü, İzmir, Türkiye.

**2014-2015:** Pedagogik Formasyon, Dicle Üniversitesi, Eğitim Fakültesi Fizik Öğr.,  
Diyarbakır, Türkiye.