



**T.C.
YOZGAT BOZOK ÜNİVERSİTESİ
LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ
KİMYA ANABİLİM DALI**

**AMFOTERİK HİDROJELLERİN SENTEZİ
KARAKTERİZASYONU VE BOYARMADDE
ADSORPSİYONU**

SELDA YILMAZ BARIŞ

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Danışman: Prof.Dr. Ali DELİBAŞ

İkinci Danışman: Dr. Öğr. Üyesi Gülden ASAN

NİSAN – 2024

YOZGAT

T.C.
YOZGAT BOZOK ÜNİVERSİTESİ
LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ
KİMYA ANABİLİM DALI

AMFOTERİK HİDROJELLERİN SENTEZİ
KARAKTERİZASYONU VE BOYARMADDE
ADSORPSİYONU

SELDA YILMAZ BARIŞ

YÜKSEK LİSANS TEZİ

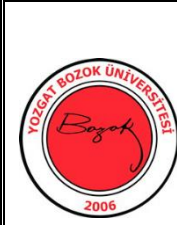
Danışman: Prof.Dr. Ali DELİBAŞ

İkinci Danışman: Dr.Öğr. Üyesi Gülden ASAN

Bu çalışma Yozgat Bozok Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri
(BAP) Koordinasyon Birimtarafından FYL-2022-1118 kodu ile
desteklenmiştir.

NİSAN– 2024

YOZGAT



YOZGAT BOZOK ÜNİVERSİTESİ
LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ
LİSANSÜSTÜ TEZ ONAY FORMU

T.C.

YOZGAT BOZOK ÜNİVERSİTESİ
LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ

Enstitümüzün Kimya Anabilim Dalı Tezli Yüksek Lisans Programı öğrencisi Selda YILMAZ BARIŞ'ın hazırladığı “AMFOTERİK HİDROJELLERİN SENTEZİ KARAKTERİZASYONU VE BOYARMADDE ADSORPSİYONU” başlıklı tezi ile ilgili tez savunma sınavı, Lisansüstü Eğitim-Öğretim ve Sınav Yönetmeliği'nin ilgili maddeleri gereğince 24/04/2024Çarşamba günü saat 10:30'da yapılmış, tezin onayına oy birliği ile karar verilmiştir.

Başkan :Doç.Dr. Erol ALVER

Jüri Üyesi :Prof.Dr. Ali DELİBAŞ

(Danışman)

Jüri Üyesi :Dr.Öğr. ÜyesiGülден ASAN

(İkinci Danışman)

Jüri Üyesi :Prof.Dr. Ramazan COŞKUN

Jüri Üyesi :Dr.Öğr. ÜyesiHatice ARI

ONAY:

Bu tezin kabulü, Enstitü Yönetim Kurulu'nun/...../..... tarih vesayılı Enstitü Yönetim Kurulu Kararı ile onaylanmıştır.

...../...../.....

Prof. Dr. Ümit BUDAK

TEZ BEYANI

Tez yazım kurallarına uygun olarak hazırlanan bu tezin yazılmasında bilimsel ahlak kurallarına uyulduğunu, başkalarının eserlerinden yararlanılması durumunda bilimsel normlara uygun olarak atıfta bulunulduğunu, tezin içerdiği yenilik ve sonuçların başka bir yerden alınmadığını, kullanılan verilerde herhangi bir tahrifat yapılmadığını, tezin herhangi bir kısmının bu üniversite veya başka bir üniversitedeki başka bir tez çalışması olarak sunulmadığını beyan eder, aksi bir durumda aleyhime doğabilecek tüm hak kayıplarını kabullendiğimi beyan ederim.

İmza

Selda Yılmaz Barış

24/04/2024

ÖN SÖZ

Yüksek lisans öğrenimim boyunca değerli bilgilerini ve deneyimlerini benimle paylaşan, yardımlarını esirgemeyen, aynı zamanda manevi destek olan değerli hocam Prof. Dr. Ali Delibaş'a,

Tez çalışmam süresince gerek teorik gerek deneysel anlamda bilgi ve deneyimlerini benden esirgemeyen Sayın Prof. Dr. Ramazan Coşkun'a,

Maddi manevi her daim yanımda olan, destek ve ilgisini hiçbir zaman esirgemeyen, hayatımın her anında hayallerimi, hedeflerimi destekleyen değerli annem Hatice Yılmaz, değerli babam Emir Yılmaz, değerli ablalarım Şeyda Kara ve Selma Topaktaş'a, değerli çocuklarım Sabri Emir Barış ve Elif Barış'a, tez yazım aşamasında ihtiyaç duyduğum her an yardımı ve motivasyonu ile destek olan, her koşulda maddi manevi destekleyen eşim Turgut Barış'a çok teşekkür ederim.

Bu tez çalışması; Yozgat Bozok Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Birimi tarafından FYL-2022-1118nolu proje ile desteklenmiştir.

Selda Yılmaz Barış

24 /04/2024

ÖZET

YÜKSEK LİSANS TEZİ

AMFOTERİK HİDROJELLERİN SENTEZİ KARAKTERİZASYONU VE BOYARMADDE ADSORPSİYONU

SELDA YILMAZ BARIŞ

YOZGAT BOZOK ÜNİVERSİTESİ
LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ
KİMYA ANABİLİM DALI

TEZ DANIŞMANI: PROF.DR. ALİ DELİBAŞ
İKİNCİ DANIŞMAN: DR.ÖĞR. ÜYESİ GÜLDEN ASAN

Bu tez çalışmasında, amfoterik hidrojellerin sentezi ve hidrojeller kullanılarak sulu çözeltilerden boyaların adsorpsiyon yöntemi ile giderilmesi araştırıldı. Sentezlenen hidrojeller karakterize edildi. Adsorban sentezi çalışmalarında sodyum 4-vinilbenzensulfonat (4VBS) ve [2-(Methakriloiloksi)etil]trimetilamonyum klorür(MOEAMCl) monomerleri ile N, N'-metilenbisakrilamit (MBAAm) çapraz bağlayıcısı ve amonyum persülfat (APS) radikalik başlatıcısı kullanılarak beş farklı hidrojel sentezlendi. Hidrojellerin karakterizasyonu FTIR, SEM, TGA teknikleri kullanılarak yapıldı. Sentezlenen hidrojellerin farklı ortamlarda (pH 3, 5, 8 ve 10 tampon çözeltileri ile üre ve NaCl) şişme çalışmaları gerçekleştirildi. Şişme sonuçlarına göre hidrojellerin pH 3'te en fazla şişme davranışı gösterdiği ve pH arttıkça şişme davranışının azaldığı belirlendi. pH 3'te artan 4VBS monomer oranı ile birlikte şişme oranlarında önemli miktarda azalma belirlendi. Adsorpsiyon çalışmalarında adsorbanın nötral yükünün (pHpzc) önemli bir ölçüt olması nedeniyle sentezlenen amfoterik hidrojinin nötral yük noktası 4,5 olarak belirlendi. Adsorpsiyon çalışmalarında asidik boya olarak Tartrazin (TART) ve bazik boya olarak Metilen Mavisi (MM), adsorban olarak SYB-5 [4VBS-MOEAMCl (50:50)] hidrojelini seçildi. SYB-5 hidrojeline TART ve MM adsorpsiyonunda, ortam pH'sının, adsorban miktarının, sürenin, boya başlangıç derişiminin, sentetik deniz suyu (SDS) etkisinin, sıcaklığın etkileri araştırıldı. Optimum şartlarda (m=0,15 g; pH=10 ve V=50 mL) SYB-5 hidrojeline MM adsorpsiyonunda adsorpsiyon kapasitesi 137 mg/g ve TART adsorpsiyonunda (m=0,5 g; pH=1,5 ve V=50 mL) adsorpsiyon kapasitesi 16 mg/g olarak belirlendi. Boya karışımlarında (50:25 ppm MM:TART karışımı) MM adsorpsiyonu etkin bir şekilde gerçekleşirken TART adsorpsiyonu zayıf olarak gerçekleşti.

2024, xiv + 77 Sayfa

Anahtar Kelimeler: Amfoterik hidrojel, Metilen mavisi, Tartrazin, Adsorpsiyon

ABSTRACT

MASTER THESIS

SYNTHESIS CHARACTERIZATION AND DYE ADSORPTION OF AMPHOTERIC HYDROGELS

SELDA YILMAZ BARIŞ

**YOZGAT BOZOK UNIVERSITY
SCHOOL OF GRADUATE STUDIES
DEPARTMENT OF CHEMISTRY**

SUPERVISOR: PROF. DR. ALİ DELİBAŞ

CO-SUPERVISOR: DR. GÜLDEN ASAN

In this thesis, synthesis of amphoteric hydrogels and removal of dyes from aqueous solutions by adsorption method using hydrogels were investigated. The synthesised hydrogels were characterised. In adsorbent synthesis studies, hydrogels were synthesised using sodium 4-vinylbenzenesulfonate (4VBS) and [2-(Methacryloyloxy)ethyl]trimethylammoniumchloride (MOEAMCl) monomers, N,N'-methylenebisacrylamide (MBAAm) crosslinker and ammonium persulfate (APS) radical initiator. The hydrogels were characterised using FTIR, SEM, TGA techniques. Swelling studies of the synthesised hydrogels were carried out in different environments (pH=3, 5, 8 and 10 buffer solutions with urea and NaCl). According to the swelling results, it was determined that the hydrogels showed the highest swelling behaviour at pH 3 and the swelling behaviour decreased as the pH increased. A significant decrease in swelling ratios was determined with increasing 4VBS monomer ratio at pH 3. Since the neutral charge of the adsorbent (pH_{pzc}) is an important criterion in adsorption studies, the neutral charge point of the synthesised amphoteric hydrogel was determined as 4.5. Tartrazine (TART) as acidic dye and Methylene Blue (MM) as basic dye and SYB-5 [4VBS-MOEAMCl (50:50)] hydrogel as adsorbent were selected for adsorption studies. The effects of ambient pH, adsorbent amount, time, dye initial concentration, synthetic sea water (SDS) effect and temperature on the adsorption of TART and MM on SYB-5 hydrogel were investigated. Under optimum conditions (m=0.15 g; pH=10 and V=50 mL), the adsorption capacity for MM adsorption on SYB-5 hydrogel was 137 mg/g and for TART adsorption (m=0.5 g; pH=1.5 and V=50 mL) was 16 mg/g. In dye mixtures (50:25 ppm MM:TART mixture), MM adsorption occurred efficiently while TART adsorption was weak.

2024, xiv + 77 Pages

KeyWords: Amphoteric hydrogel, Methylene blue, Tartrazine, Adsorption

İÇİNDEKİLER

TEZ ONAY SAYFASI.....	ii
TEZ BEYANI.....	iii
ÖN SÖZ	iv
ÖZET	v
ABSTRACT.....	vi
TABLolar LİSTESİ.....	x
ŞEKİLLER LİSTESİ	xi
KISALTMALAR LİSTESİ	xiv
1. GİRİŞ	1
2. GENEL BİLGİLER	3
2.1. Atık Su.....	3
2.2. Hidrojeller	4
2.2.1. Hidrojellerin Sentez Yöntemleri.....	6
2.2.1.1. Fiziksel Bağlı Hidrojeller.....	7
2.2.1.2. Kimyasal Bağlı Hidrojeller.....	8
2.2.2. Hidrojellerin sınıflandırılması	9
2.2.3. Amfoterik Hidrojeller	11
2.3. Boyar Madde	12
2.4. Çalışmada Kullanılan Boyalar	13
2.4.1. Metilen Mavisi (MM).....	13
2.4.2. Tartrazin (TART)	13
2.5. Adsorpsiyon	14
2.5.1. Adsorpsiyon Çeşitleri	15
2.5.2. Adsorpsiyona Etki Eden Faktörler	15
2.6. Adsorpsiyon İzotermi.....	17
2.6.1. Langmuir ve Freundlich İzoterm Modelleri	18
2.6.2. Temkin İzotermi	19
2.7. Literatür Bilgisi	20

3. MATERYAL VE YÖNTEM	23
3.1. Kullanılan Kimyasallar ve Materyaller	23
3.2. Cihazlar	24
3.3. DeneySEL Yöntem	27
3.3.1. Hidrojellerin Sentezi	27
3.3.2. DeneySEL Çalışmalarda Kullanılan Çözeltilerin Hazırlanması	29
3.3.3. Şişme Çalışmaları	30
3.3.4. Adsorban Olarak Kullanılan Hidrojellerin Nötral Yük Noktasının Belirlenmesi	31
3.3.5. Adsorpsiyon Çalışmaları	31
4. BULGULAR VE TARTIŞMA	32
4.1. Karakterizasyon Çalışmaları	32
4.1.1. FTIR Çalışmaları	32
4.1.2. SEM Sonuçları	36
4.1.3. TGA-DTG Sonuçları	37
4.1.4. Adsorbanın Nötral Yük Noktasının (pH_{pzc}) Belirlenmesi	40
4.2. Hidrojellerin Şişme Çalışmaları	41
4.2.1. Şişmeye pH Etkisi	41
4.2.2. Şişmeye Elektrolit Etkisi	42
4.3. Adsorpsiyon Çalışmaları	43
4.3.1. Metilen mavisi (MM) ve Tartrazin (TART) için Adsorpsiyon Çalışmaları	43
4.3.1.1. Adsorpsiyona pH etkisi	43
4.3.1.2. Adsorpsiyona Adsorban Miktarının Etkisi	45
4.3.1.3. Adsorpsiyona Sürenin Etkisi	47
4.3.1.4. Adsorpsiyona Boya Konsantrasyonunun Etkisi	51
4.3.1.5. Adsorpsiyona İyonik Şiddetin Etkisi	52
4.3.1.6. Adsorpsiyona Sıcaklık Etkisi	54
4.3.2. İkili Boya Karışımı Adsorpsiyon Çalışmaları	55
4.3.2.1. Adsorpsiyona pH Etkisi	55

4.3.2.2. Adsorban Miktarının Etkisi	57
4.3.2.3. Adsorpsiyona Sürenin Etkisi	59
4.3.2.4. Adsorpsiyona Boya Konsantrasyonunun Etkisi	60
4.3.2.5. Adsorpsiyona İyonik Şiddetin Etkisi	61
4.3.2.6. Adsorpsiyona Sıcaklık Etkisi	62
5. SONUÇLAR	67
KAYNAKLAR	68



TABLÖLAR LİSTESİ

Tablo

Sayfa

Tablo 3.1. Çalışmada kullanılan cihazlar ve özellikleri	24
Tablo 3.2. Sentezlenen hidrojenlerin hazırlama reçetesi.	27
Tablo 3.3. Tampon çözeltilerin miktarları.	30



ŞEKİLLER LİSTESİ

<u>Şekil</u>	<u>Sayfa</u>
Şekil 2.1. Hidrojellerdeki çapraz bağlı yapının oluşmasındaki etkileşimlerin gösterimi (Özcan, 2014)	5
Şekil 2.2. Hidrofilik yapıdaki zincirlere sahip çapraz bağlı hidrojel yapısı (Shahir, 2015) ..	5
Şekil 2.3. Çapraz Bağlı Hidrojel Üretme Yöntemleri (Tezcan, 2013)	7
Şekil 2.4. Fonksiyonel hidrojellerin sentezi için genel şema (Büyükbektaş, 2018)	9
Şekil 3.1. Metilen mavisi (MM) ve tartrazin (TART)'in kimyasal yapısı.	23
Şekil 3.2. SEM Cihazı	25
Şekil 3.3. FTIR Spektrofotometre Cihazı	25
Şekil 3.4. TGA-DTA-DSC Cihazı	26
Şekil 3.5. UV-Vis Spektrofotometre Cihazı	26
Şekil 3.6. Liyofilizatör cihazı	27
Şekil 3.7. Poli(4VBS-ko-MOEAMCl-ko-MBAAm) hidrojelinin yapısı	28
Şekil 3.8. Jel yapısında ve Liyofilizasyon işlemi sonrası jellerin görünümü	29
Şekil 3.9. Çalışmalarda kullanılan tartrazin (TART) ve metilen mavisi (MM)	29
Şekil 4.1. SYB-1, SYB-3 ve SYB-5 hidrojellerinin FTIR Spektrum görüntüleri	32
Şekil 4.2. MM yüklü SYB-5 hidrojel FTIR analiz sonuçları	34
Şekil 4.3. TART yüklü SYB-5 hidrojel FT-IR analiz sonuçları	35
Şekil 4.4. SYB-5 hidrojelinin a) x5000 SEM görüntüsü b) x20000 SEM görüntüsü c) x50000 SEM görüntüsü d) x300000 SEM görüntüsü	36
Şekil 4.5. SYB-5 hidrojeline MM yüklemmeden önce (a) ve MM yüklemesiyle (b) elde edilen SEM görüntüsü (x5000)	37
Şekil 4.6. SYB-5 hidrojeline TART yüklenmeden önce (a) ve TART yüklemesiyle (b) elde edilen SEM görüntüsü (x5000)	37
Şekil 4.7. SYB-1, SYB-3, SYB-5 hidrojellerinin DTG grafiği	38
Şekil 4.8. SYB-1, SYB-3, SYB-5 hidrojellerinin TGA grafiği	39
Şekil 4.9. SYB-5 hidrojelinin nötral yük noktası grafiği	40
Şekil 4.10. Hidrojellerin şişme değerlerinin pH ile değişimi (m=0,1 g, t=24 s, T=25 °C) ..	41
Şekil 4.11. Hidrojellerin şişme değerlerinin saf sudaki değişimi (m=0,1 g, t=24 s, T=25 °C)	41
Şekil 4.12. Hidrojellerin şişme değerlerine elektrolit etkisi (m=0,1 g, t=24 s, T=25 °C)	42
Şekil 4.13. SYB-5 Hidrojelinin MM adsorpsiyonunda pH değişiminin etkisi (C _{MM} =50ppm, T=25 °C, V=50 mL, m=0,1g, t=5s)	44

Şekil 4.14. SYB-5 Hidrojelinin TART adsorpsiyonunda pH değişiminin etkisi ($C_{TART}=50\text{ppm}$, $T=25^\circ\text{C}$, $V=50\text{ mL}$, $m=0,1\text{g}$, $t=5\text{s}$).....	45
Şekil 4.15. SYB-5 Hidrojelinin MM adsorpsiyonuna adsorban miktarının değişiminin etkisi($C_{MM}=50\text{ppm}$, $\text{pH}=10$, $V=50\text{mL}$, $t=5\text{s}$)	46
Şekil 4.16. SYB-5 Hidrojelinin Tartrazin adsorpsiyonuna adsorban miktarının değişiminin etkisi ($C_T=50\text{ ppm}$, $\text{pH}=1,5$, $V=50\text{mL}$, $t=5\text{s}$).....	47
Şekil 4.17. SYB-5 Hidrojelinin MM adsorpsiyonunda sürenin etkisi ($C_{MM}=25\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $m=0,15\text{g}$, $T=25^\circ\text{C}$, $\text{pH}=10$).....	48
Şekil 4.18. SYB-5 Hidrojelinin MM adsorpsiyonunda sürenin etkisi ($C_{MM}=50\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $m=0,15\text{g}$, $T=25^\circ\text{C}$, $\text{pH}=10$)	48
Şekil 4.19. SYB-5 Hidrojelinin MM adsorpsiyonunda sürenin etkisi ($C_{MM}=100\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $m=0,15\text{g}$, $T=25^\circ\text{C}$, $\text{pH}=10$).....	49
Şekil 4.20. SYB-5 Hidrojelinin TART adsorpsiyonunda sürenin etkisi ($C_{TART}=25\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $m=0,5\text{g}$, $T=25^\circ\text{C}$, $\text{pH}=1,5$).....	50
Şekil 4.21. SYB-5 Hidrojelinin TART adsorpsiyonunda sürenin etkisi ($C_{TART}=50\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $m=0,5\text{g}$, $T=25^\circ\text{C}$, $\text{pH}=1,5$).....	50
Şekil 4.22. SYB-5 hidrojelinin MM adsorpsiyonuna boya konsantrasyonu etkisi ($\text{pH}=10$, $V=50\text{mL}$, $T=25^\circ\text{C}$, $t=5\text{s}$, $m=0,15\text{g}$).....	51
Şekil 4.23. SYB-5 hidrojelinin TART adsorpsiyonuna konsantrasyon etkisi ($\text{pH}=1,5$, $V=50\text{mL}$, $t=5\text{s}$, $m=0,5\text{g}$, $T=25^\circ\text{C}$).....	52
Şekil 4.24. Adsorpsiyona iyonik şiddet değişiminin etkisi ($C_{MM}=50\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $T=25^\circ\text{C}$, $m=0,15\text{g}$, $t=5\text{s}$, $\text{pH}=10$).....	53
Şekil 4.25. Adsorpsiyona iyonik şiddet değişiminin etkisi ($C_{TART}=50\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $T=25^\circ\text{C}$, $m=0,5\text{g}$, $t=5\text{s}$, $\text{pH}=1,5$)	53
Şekil 4.26. SYB-5 hidrojeline TART adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisi ($C_{TART}=50\text{ppm}$, $\text{pH}=1,5$, $V=50\text{mL}$, $m=0,5\text{g}$, $t=5\text{s}$)	54
Şekil 4.27. SYB-5 hidrojeline MM adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisi ($C_{MM}=50\text{ppm}$, $\text{pH}=10$, $V=50\text{mL}$, $m=0,15\text{g}$, $t=5\text{s}$)	55
Şekil 4.28. SYB-5 Hidrojelinin BK'da MM adsorpsiyonunda pH değişiminin etkisi ($T=25^\circ\text{C}$, $V=50\text{mL}$, $m=0,15\text{g}$, $C_{TART}=25\text{ppm}$, $C_{MM}=25\text{ppm}$, $t=5\text{s}$)	56
Şekil 4.29. SYB-5 Hidrojelinin BK'da MM adsorpsiyonuna pH değişiminin etkisi ($T=25^\circ\text{C}$, $V=50\text{mL}$, $m=0,15\text{g}$, $C_{TART}=25\text{ppm}$, $C_{MM}=50\text{ppm}$, $t=5\text{s}$)	56
Şekil 4.30. SYB-5 Hidrojelinin BK'da MM adsorpsiyonuna pH değişimi ($T=25^\circ\text{C}$, $V=50\text{mL}$, $m=0,15\text{g}$, $C_{TART}=50\text{ppm}$, $C_{MM}=50\text{ppm}$, $t=5\text{s}$).....	57
Şekil 4.31. SYB-5 Hidrojelinin BK'da MM adsorpsiyonuna adsorban miktarının değişimi ($C_{TART}=25\text{ppm}$, $C_{MM}=50\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $t=5\text{s}$, $\text{pH}=1,5$).....	58
Şekil 4.32. SYB-5 Hidrojelinin BK'da MM adsorpsiyonuna adsorban miktarının etkisi ($C_{TART}=25\text{ppm}$, $C_{MM}=50\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $t=5\text{s}$, $\text{pH}=10$).....	58
Şekil 4.33. SYB-5 Hidrojelinin BK'da MM adsorpsiyonunda sürenin etkisi ($C_{MM}=50\text{ppm}$, $C_{TART}=25\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $m=0,15\text{g}$, $T=25^\circ\text{C}$, $\text{pH}=1,5$).....	59
Şekil 4.34. SYB-5 Hidrojelinin BK'da MM adsorpsiyonunda sürenin etkisi ($C_{MM}=50\text{ppm}$, $C_{TART}=25\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $m=0,15\text{g}$, $T=25^\circ\text{C}$, $\text{pH}=10$).....	59

Şekil 4.35. SYB-5 hidrojelinin BK adsorpsiyonuna konsantrasyon etkisi ($V=50\text{mL}$, $m=0,15\text{g}$, $t=5\text{s}$, $\text{pH}=1,5$).....	60
Şekil 4.36. SYB-5 hidrojelinin BK adsorpsiyonuna konsantrasyon etkisi ($V=50\text{mL}$, $m=0,15\text{g}$, $t=5\text{s}$, $\text{pH}=10$).....	60
Şekil 4.37. Adsorpsiyona MM’de BK’na iyonik şiddet değişimi ($C_{\text{TART}}=25\text{ppm}$, $C_{\text{MM}}=50\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $T=25\text{ }^{\circ}\text{C}$, $m=0,15\text{g}$, $t=5\text{s}$, $\text{pH}=1,5$).....	61
Şekil 4.38. Adsorpsiyona MM’de BK’na iyonik şiddet değişiminin etkisi ($C_{\text{TART}}=25\text{ppm}$, $C_{\text{MM}}=50\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $T=25\text{ }^{\circ}\text{C}$, $m=0,15\text{g}$, $t=5\text{s}$, $\text{pH}=10$).....	62
Şekil 4.39. SYB-5 hidrojeline MM’de BK adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisi ($\text{pH}=1,5$, $V=50\text{mL}$, $m=0,15\text{ g}$, $t=5\text{s}$)	63
Şekil 4.40. SYB-5 hidrojeline BK’na MM adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisi ($\text{pH}=10$, $V=50\text{mL}$, $m=0,15\text{ g}$, $t=5\text{s}$)	64
Şekil 4.41. Metilen Mavisinin (MM) SYB-5 adsorpsiyonunda Langmuir izoterm grafiği.	65
Şekil 4.42. Metilen Mavisinin (MM) SYB-5 adsorpsiyonunda Freundlich izoterm grafiği	65
Şekil 4.43. Metilen Mavisinin (MM) SYB-5 adsorpsiyonunda Temkin izoterm grafiği.....	66

KISALTMALAR LİSTESİ

Bu çalışmada kullanılmış kısaltmalar, açıklamaları ile birlikte aşağıda sunulmuştur.

Kısaltmalar	Açıklamalar
4VBS	: Sodyum4-vinil benzensülfonat
APS	: Amonyum persülfat
BG	: Boya giderimi
BK	: İkili boya karışımı
C ₀	: Boya çözeltisinin başlangıç konsantrasyonu (ppm)
C _t	: Boya çözeltisinin denge konsantrasyonu (ppm)
FTIR	: Fourier transforminfrared spektroskopisi
m	: Absorban miktarı (g)
MM	: Metilen mavisi
MOEAMCI	: [2-(Metakriloiksi)etil] trimetil amonyum klorür
pHpzc	: Nötral yüzey yükü
SEM	: Taramalı elektron mikroskobu
SDS	: Sentetik deniz suyu
T	: Sıcaklık
t	: Süre
TART	: Tartrazin
TGA-DTA	: Termogravimetrik ve Diferansiyel Termal Analiz
UV-vis	: Mor ötesi ve görünür bölge spektroskopisi
Q	: Bir gram adsorban tarafından adsorplanan boya miktarı (mg/g)
V	: Boya çözeltisinin hacmi (L)

1. GİRİŞ

Dünya’da küresel ısınma hızla artmaktadır. Artan küresel ısınmanın etkisiyle kuraklık tehlikesi artmakta ve suların önemi her geçen gün daha belirginleşmektedir. Artan kuraklıkla birlikte, sular azalmakta bununla birlikte artan sanayileşme ile suların kirliliği artmakta ve kullanılabilir su oranı gün geçtikçe azalmaktadır. Sulardaki kirlilik oranını arttıran önemli bir etkende her geçen gün birçok alanda kullanılan boyar maddelerdir. Boyar maddeler sulara karıştığında canlılar ve tüm ekosistem için sular güvenli olmaktan çıkmaktadır. Bu nedenle, boyar maddelerin oluşturduğu kirliliğin ve etkilerinin önlenmesi önemli bir ihtiyaç oluşturmaktadır (Duykop, 2020).

Dünya çapında üretilen ürünlere olan talebin artması ve tekstil, deri, kağıt, kauçuk, plastik, kozmetik vb. gibi çeşitli endüstrilerde sentetik boyaların kullanılması, büyük miktarda atık suyun çevreye orantılı olarak salınmasına neden olmuştur. Boyar maddeler tekstil ile birlikte plastik, deri, lastik, kereste, kozmetik, ilaç, gıda inşaat vb. alanlarda dünyada ve ülkemizde kullanımı artmaktadır (Carlier vd., 1996). Boyar maddelerin tabiatta biyolojik olarak parçalanmaması ile birlikte içerdiği toksik ve kanserojen maddeler ve görüntü kirliliği oluşturması sebebiyle atık sulardan uzaklaştırılması bir zorunluluğa dönüşmüştür. Bu boyar maddelerin çeşitlerinden biride sentetik boyalardır.

Sentetik boyaların sentezlenmelerinin kolay ve ucuz olmaları sebebiyle birçok sanayi alanında kullanılmaktadır (Bozgeyik & Topak, 2020). Sentetik bir boyar madde olan metilen mavisi bunlardan birisidir. Metilen mavisi pamuk, ahşap ve ipek boyamada çok kullanılan katyonik bir boyadır.

Sentetik boyalardan bir diğerdetartrazindir. Tartrazin yaygın olarak gıda sanayinde kullanılma birlikte, ilaç, kozmetik, deterjan sanayinde, çok az kullanımla birlikte tarım ürünlerinde rastlanmaktadır. Metilen mavisi ve tartrazin gibi sentetik boyar maddelerin çözeltilerden giderilmesi için çoğunlukla kimyasal çökeltme, iyon değişimi, membran ayırma, kimyasal indirgeme, kimyasal oksidasyon, ileri oksidasyon işlemleri (AOP'ler) vb. gibi çeşitli fiziksel ve kimyasal yöntemler kullanılmıştır. Ancak bu yöntemler çoğu boya molekülünün uzaklaştırılmasında etkisiz olmasıyla beraber zaman alıcıdır ve bazen çevredeki biyotik organizmalar için toksik olan büyük miktarda çamur üretir. Bu yöntemlerin pahalı olması gibi bir unsuruda barındırmaktadır. Bu nedenle, hidrojel bazlı kompozitler kullanılarak yapılan adsorpsiyon, basitliği, ucuzluğu vb. nedeniyle

kirleticilerin uzaklaştırılmasında etkili ve umut verici tekniklerden biri olarak tanımlanmıştır (Sirajo vd., 2017).

Yukarıda belirtilen arka plan bilgilerine dayanarak, amfoterik özelliklere sahip yeni bir hidrojel sentezlemek için, [2-(Metakriloiloksi)etil]trimetilamonyum klorür ve Sodyum 4-vinilbenzensulfonatmonomerleri, N,N metilen bisakrilamit çapraz bağlayıcısı ve amonyum persülfatradikalik başlatıcısı kullanılarak çözelti polimerizasyon tekniğiuygulandı. FTIR, TGA, SEMgibi metotlar ile karakterize edildi. Daha sonra karakterize edilen hidrojellerin farklı çözelti ortamlarındaki şişme davranışları incelenerek, tartrazin anyonik boyası ve metilen mavisi katyonik boyasının uzaklaştırılmasında adsorban olarak kullanılabilirlikleri araştırıldı.

2. GENEL BİLGİLER

2.1. Atık Su

Teknolojinin artmasıyla çevre kirliliği de önemli ölçüde artış göstermektedir. Çevre kirliliğini oluşturan en önemli etmenlerden biri de su kirliliğidir. Özellikle sanayileşmenin artmasıyla (endüstri ve tekstil) alanındaki artışla su kirliliğinde de önemli boyutlara ulaşılmıştır. Endüstriyel faaliyetlerin ve tekstil üretiminin artmasıyla su kirliliğinde önemli artışlar meydana gelmiştir. Tekstil alanında kullanılan boyar maddelerin atık sularla çevreye bırakılmasıyla tüm canlı yaşamı olumsuz etkilenmektedir.

Atıkların suları kirletmesi birçok etkene bağlıdır. Bunlardan bir tanesi suyun içerisindeki biyolojik oluşumların gerçekleşmesini engelleyen zehirli maddelerdir. Zehirli maddelerin çoğu endüstriyel atıklar, boyar maddeler, ağır metaller, böcek ilaçları gibi maddelerdir. Diğer bir etken suyun oksijen oranını etkileyen maddelerdir. Biyolojik olarak parçalanabilen inorganik indirgeme maddesi olarak kullanılan organik maddeler olabilir. Yağlar, deterjanlar gibi tekrar oksitlenmeyi etkileyen maddeler olabilir. Sulara boşaltılan sıcak maddelerin suyun dengesini bozması da önemli sebepler arasındadır. Çözünmüş katıların balık yemlerinin büyümesini engelleyerek balıkların hayatını tehlikeye sokması da bu etkenler arasına dahil olabilir (Büyükbektaş, 2018).

Sudaki organik atık maddeler oluşması evsel ve endüstriyel atıklardan birikimiyle gerçekleşir. Atık sudaki organik kirleticilerin yapısı ve çeşidi, endüstriyel ürünlere ve evsel kullanım alanlarına göre farklılık göstermektedir. Organik kirleticilerin bir kısmı sabun ve deterjanlardan, petrol ürünlerinden, boya ve tekstil endüstrilerinden, ilaçlardan ve farmasötiklerden, bitki öldürücülerden ve pestisitlerden ve çok daha fazlasından kaynaklanmaktadır. Organiklerin arıtılması için fiziksel, kimyasal, fotokatalitik ve mikrobiyal süreçleri içerebilen çok sayıda teknoloji mevcuttur.

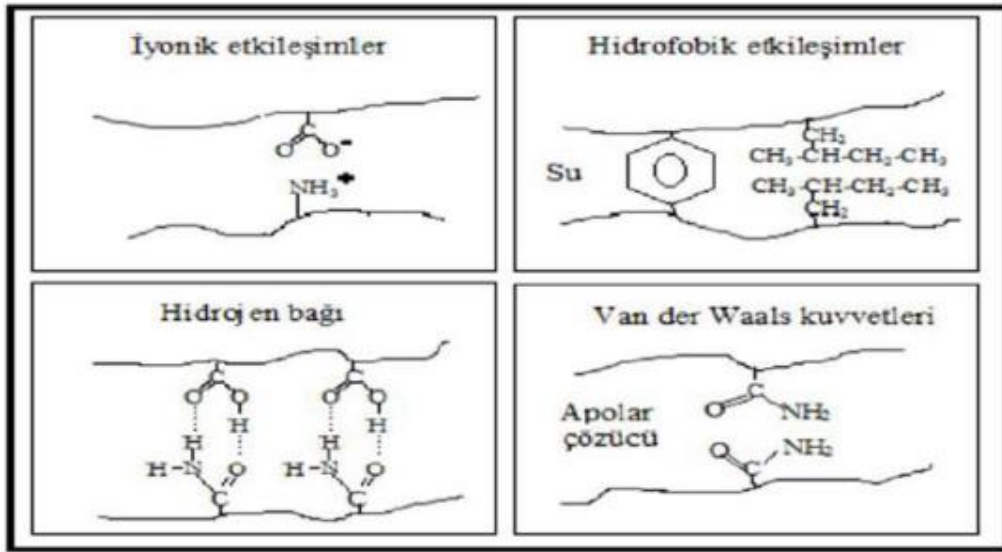
Hidrojeller, organiklerin dezenfeksiyonu için araştırılan çevre dostu substratlar sunar. Çeşitli şekil ve formülasyonlarda (silindirik, film vb.), iyonik karakterde (anyonik, katyonik veya amfoterik) ve boyutta (nano, mikro veya makro) hazırlanan hidrojeller, kirleticilerin sulu ortamdan uzaklaştırılmasında başarıyla kullanılmıştır (Duykop, 2020). Hidrojellerin adsorban olarak kullanılmasıyla çeşitli kirleticiler sulu ortamdan kolaylıkla uzaklaştırılabilir.

2.2.Hidrojeller

Hidrojeller, içeriğinde fazla miktarda su bulundurmasıyla şişme özelliği gösteren, oldukça esnek bir yapıya sahip, sulu ortamda bekletildiklerinde çözünmeyen, çok sayıda hidrofilik gruplar içeren, doğal veya sentetik malzemelerden oluşan üç boyutlu-ağ yapılı ve çapraz bağlı polimerlerdir (Çetinkaya, 2023). Hidrojelin önemli özelliklerinden biri olan suda çözünmesine engel olan yapısındaki fiziksel ya da kimyasal çapraz bağlardır (Duykop, 2020). Hidrojeller, çok miktarda su ya da biyolojik içerikli sıvıları yapılarında tutabilirler ve canlı dokularla olan benzerliği yumuşak, lastiksi bir kıvama sahip olmaları onları çeşitli uygulamalar için kullanışlı madde haline getirir (Çetinkaya, 2023).

Yapılarında çapraz bağları bulundurmalarından dolayı hidrojeller şişme anında parçalanmazlar. Hidrojeller, farklı uzunluktaki polimer zincir parçalarının birbirine fiziksel veya kimyasal bağlar ile bağlanmasıyla oluşan ağ yapısındaki polimerlerdir. Hidrojelleri bu kadar önemli hale getiren özellikleri yumuşak, lastiksi ve yüksek miktarda su depolama kapasitesine sahip olmasıdır (Philippova, 2000).

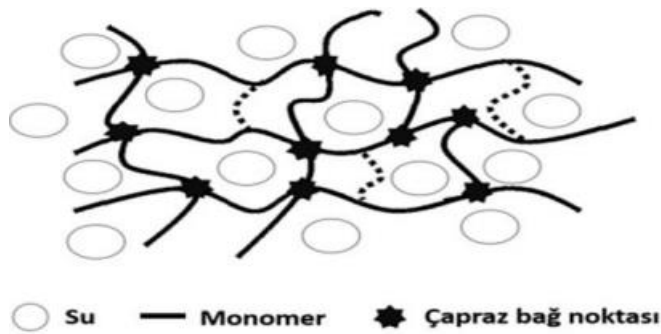
Hidrojeller, 1950'li yıllarda göz biliminde kullanılmak için sentezlenmiş daha sonra ameliyat sonrası oluşan yara izlerinin silinmesi için de kullanılmış ve farklı alanlarda yapılan çalışmalarla dünyada önemli bir yer edinmeye başlamıştır. Hidrojeller, polimer zincirlerinin çapraz bağlanma, kovalent bağlar, hidrojen bağları, Van der Waals etkileşimleri veya hidrofobik etkileşimlerle meydana gelebilir. Hidrojellerin suyu emme kapasiteleri oldukça yüksektir ve suda çözünmezler. Su emmeye bağlı olarak hacim değişiminin de derecesi değişir. Bu derecede, sıcaklık veya çözücü özelliklerindeki değişikliklerle değişir (Tekneci, 2019). Hidrojellerin hacimlerinin, dış etkilerin farklılaşması ile oldukça değişim göstermesi, teknolojide çok kullanılan bir malzeme olmasını neden olmuştur. Hidrojeller biyomedikal alanda sık kullanılmasının yanı sıra, çevre alanında ağır metal iyonlarının ve kirletici malzemeleri tutma yetenekleriyle atık sulardan arındırmada süper emici polimerler olarak karşımıza çıkmaktadır (Duykop, 2020). Ayrıca pH, iyonik kuvvet, solvent bileşimi, ışık ve elektrik alanı ile uyarılabilmelerinden dolayı doku mühendisliği, enzim biyosensörü, kimyasal volflar, boya adsorpsiyonunda karşımıza çıkmaktadır (Palantöken, 2015).



Şekil 2.1. Hidrojellerdeki çapraz bağ yapının oluşmasındaki etkileşimlerin gösterimi (Özcan, 2014)

Polimerik hidrojeller, sulu bir ortamda kimyasal veya fiziksel olarak çapraz bağlanan çok çeşitli nötr veya yüklü hidrofilik makromoleküllerden oluşan önemli bir yumuşak malzeme sınıfıdır. Hidrojeller, doğal veya sentetik polimerler veya bunların kombinasyonları kullanılarak üretilir. Bir hidrojelin temel tanımlayıcı özelliği, zincirlerin birbirine çapraz bağlanmasıyla çözünmez hale getirilen polimer zincirlerinden oluşan, yüksek oranda hidratlanmış bir polimer ağı olmasıdır. Hidrojellerdehidre edilebilir ve daha sonra su içinde şişerek hidratlı formlarını geri kazanabilirler.

Hidrojellerle adsorpsiyon, genellikle iyonlaşabilen fonksiyonel grupların varlığından kaynaklanmaktadır. Bu fonksiyonel grupların varlığı sayesinde hidrojellerin boyar maddeleri adsorplayabildikleri bilinmektedir (Tosun vd.,2019).



Şekil 2.2. Hidrofilik yapıdaki zincirlere sahip çapraz bağlı hidrojel yapısı (Shahir, 2015)

Hidrojeller; filmler, makrojeller, mikrojeller, nanojeller ve kaplamalar gibi farklı formlarda yapılabildiğinden, bunların tıp endüstrisi ve tarımdan gelişmiş yağ geri kazanımına kadar bir dizi farklı uygulama için avantajlı olduğu düşünülmektedir. Hidrojellerin polimer ağı, kimyasal sentez sırasında birbirine bağlanan uzun moleküler zincirlerden oluşur. Hidrojellerin hidrofilikliği, polimer zincirinde karboksilik (-COOH), hidroksil (-OH) veya sülfonik (-SO₃H) gibi hidrofilik gruplar içerdiğinde ortaya çıkar.

Çapraz bağlama işlemi, hidrojin mekanik stabilitesini arttırarak polimer zincirlerini birbirine bağlamak için kullanılırlar. Jel matrisindeki çapraz bağların yoğunluğunu değiştirerek gözenekli yapı ve şişme derecesi ayarlanabilir. Kullanılan çapraz bağların derecesi ve türü aynı zamanda polimerin elastikiyetini, viskozitesini ve çözünmezliğini de etkileyebilir. Küçük miktarlarda çapraz bağlanma, serbestçe akabilen viskoz hidrojellerle sonuçlanabilirken, aynı zamanda hidrojellerin solventlerde çözünür hale gelmesine ve düşük stabiliteye sahip olmasına da yol açabilir. Tersine, çok yüksek derecede çapraz bağlanma, kırılğan hidrojellerle sonuçlanabilir, ancak bu sürünme davranışını ve çözünmezliği geliştirebilir. Çapraz bağlama, kullanılan polimerin türüne bağlı olarak fiziksel veya kimyasal yöntemler kullanılarak gerçekleştirilebilir. Fiziksel çapraz bağlantılar, dolanmış zincirleri, hidrojen bağlarını, hidrofobik etkileşimi ve kristal oluşumunu içerir ve kimyasal çapraz bağlantılardan daha zayıf bağlantılara sahiptir.

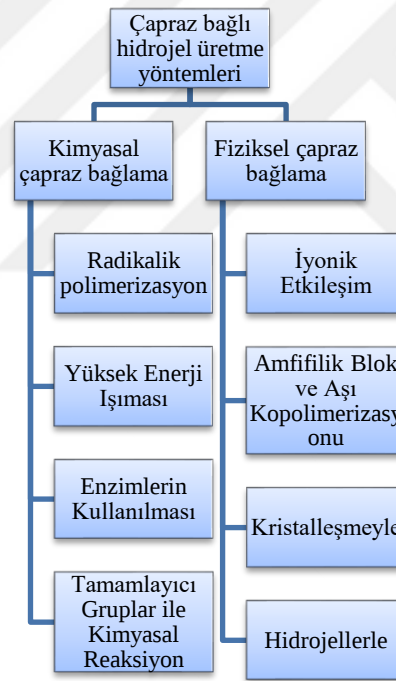
2.2.1. Hidrojellerin Sentez Yöntemleri

Hidrojellerin hazırlanmasında ana yapılar monomer, başlatıcı ve çapraz bağdır. Hidrojel elde ederken polimerleşme tepkimesi esnasında tepkime ısını kontrol edebilmek amacıyla sulu çözeltiler kullanılabilir. Hidrojeldeki safsızlığı gidermek için yıkama işlemi gerçekleştirilir. Uzun süreli kullanımlar da daha dayanıklı olması için liyofilizatör kullanılabilir. Hidrojelleri kütle, çözelti, süspansiyon ve emülsiyon polimerizasyonları gibi dört farklı metotla elde edilebilirler (Oruç, 2023).

Hidrojeller sentezlenirken, fazla miktarda suyu tutan ağlar oluşur. Bu polimerik yapıda hidrofilik gruplar veya alanlar oluşur. Bu alanları “Ağ” terimi gibi hidrofilik polimer zincirlerinin sulu ortamda çözünmemelerini sağlamak için polimer zincirleri arasında çapraz bağlantılar mevcut olmalıdır (Üzüm & Karadağ, 2007).

Ağ yapılı polimerlerin sentezinde çözelti veya katı yapıdaki kopolimer ya da homopolimerin çapraz bağlanmasıyla birlikte su veya başka bir çözücünde şişme durumuna bırakılması uygulanabilir. Başka bir yöntem olarak bir veya daha çok, tek fonksiyonlu monomer maddelerin birlikte kopolimerleşme ve çapraz bağlanmasıyla birlikte uygun bir ortamda şişmeye bırakılması uygulanabilir (Duykop, 2020).

Hidrojellerin çapraz bağlanmaları kovalent (kimyasal) veya iyonik (fiziksel) çapraz bağlama olmak üzere sınıflandırılabilir (Berger vd., 2004). Hidrojel sentezi sırasında yapısında kalıcı bir ağ oluşursa, hidrojel kimyasal olarak çapraz bağlanır. Fiziksel olarak çapraz bağlı hidrojeller ise, polimer zincirlerinin dallanmalarından veya iyonik/ hidrofobik etkileşimler veya vander Walls bağları gibi fiziksel etkileşimlerinden kaynaklanan bağlantılara sahiptir (Ahmed, 2013).



Şekil 2.3. Çapraz Bağlı Hidrojel Üretim Yöntemleri (Tezcan, 2013)

2.2.1.1. Fiziksel Bağlı Hidrojeller

Zayıf kuvvetlerle çapraz bağlanan bu jeller hidrojen bağları, VanderWaals kuvvetleri, iyonik ve hidrofilik etkileşimlerin sayesinde oluşan jellerdir (Çakmak, 2013).

Fiziksel çapraz bağlı hidrojeller, elde edilmelerinin kolaylığı sebebiyle giderek daha popüler hale gelmektedir. Radyasyon-kimyasal çapraz bağlama gibi, fiziksel çapraz

bağlamanın tüm yöntemleri çapraz bağlama maddelerinin eklenmesini gerektirmemektedir. Bu durum, herhangi bir fazla maddenin çıkmasının gerekli olmadığı anlamına gelir. Bu durum sonucunda yiyecek ve içecek endüstrisinde fiziksel çapraz bağlamanın daha popüler hale gelmesine yol açmıştır. Fiziksel çapraz bağlanmanın ilk örnekleri, polimerin karşıt elektrik yükleri onları birbirine bağladığında koaservatlar oluşturabilen polianyonlar ve polikatyonlar arasındaki iyonik etkileşimlerdir.

Fiziksel çapraz bağlamanın başka bir yöntemi, bir polimer çözeltisinin ısıtılması veya soğutulması yoluyla olmaktadır. Bazı durumlarda ısının uygulanması çapraz bağlar oluşturur. Fiziksel çapraz bağlamanın bir diğer metodu ise donma-çözülmedir. Bu yöntem daha az kullanılan olan bir çapraz bağlama metodudur ve aynı zamanda kimyasal olarak çapraz bağlanmış hidrojellerin sentez sonrası işlemlerinde mekanik stabiliteğini iyileştirmek için kullanım alanı bulur.

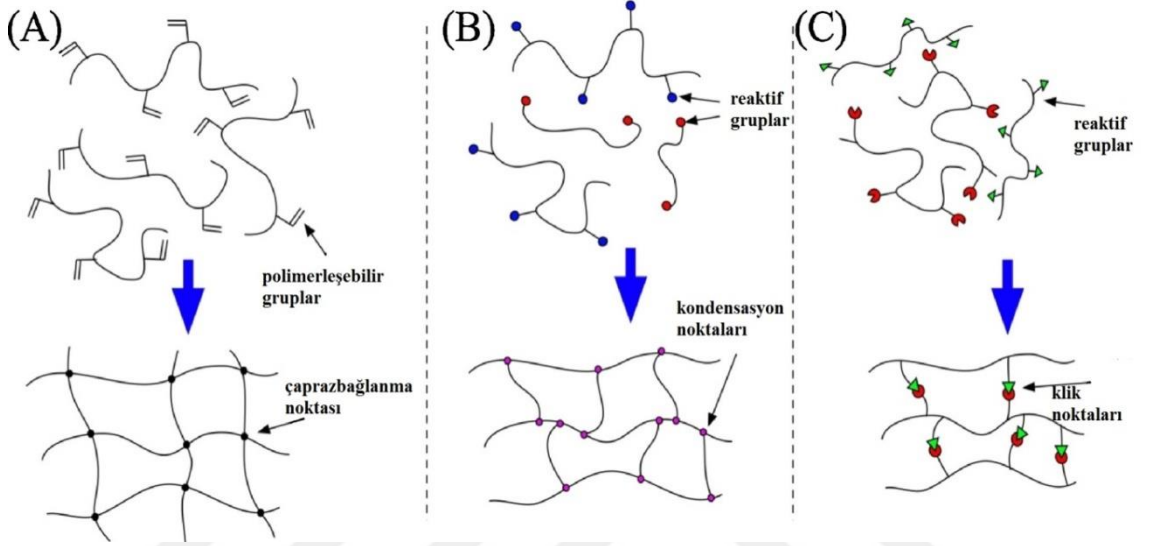
2.2.1.2. Kimyasal Bağlı Hidrojeller

Kalıcı bir ağ yapısı ve yumuşak viskoelastik katılar gibi davranan bu jeller “kuvvetli jeller” olarak da isimlendirilirler. Kovalent çapraz bağlı jeller geri döndürülemez yapıdadırlar (Kavzak, 2005). Su-seven monomer ya da polimerlerden çeşitli metotlar kullanılarak elde edilebilirler. Kimyasal çapraz bağlı jel elde etmek için monomerlerden çıkarak polimerizasyon ve çapraz bağlanma tepkimeleri ile yani monovinil monomer / divinil monomer çiftlerine ait yapıların kopolimerizasyonu ile üç boyutlu kimyasal çapraz bağlı jel yapısı elde edilebilir. Diğer bir yöntem olarak da doğrusal polimer zincirlerinin çapraz bağlayıcılarla tepkimesi sonucunda jeller elde edilebilir (Çakmak, 2013).

Kimyasal çapraz bağlı hidrojellerin farklı olarak polimer zincirleri arasında kovalent bağlar vardır (Ebara vd., 2014).

Kovalent bağların oluşturduğu bu kimyasal bağlı hidrojeller daha güçlü ve kalıcı bağlar sağlayarak mekanik oluşumu artırır. Bu çapraz bağlama yöntemi, mekanik yapı kaybı olmadan şişmenin oluşmasına olanak tanır. Kimyasal çapraz bağlama yöntemleri arasında polimerizasyon, radyasyon, küçük molekül çapraz bağlanması ve yoğunlaşma reaksiyonu gibi polimer-polimer çapraz bağlanması yer alır. Radikal zincir polimerizasyonu, kovalent hidrojeller oluşturmak için yaygın olarak kullanılan bir başka yöntemdir. Bu

mekanizma, çok işlevli makromerler oluşturmak için akrilatlar, metakrilatlar ve fumarat gibi işlevsel vinil gruplarının polimer zincirlerine aşılmasını içerir. Bir başlatıcının varlığında ve uygun başlatma koşulları altında radikaller üretilir ve daha sonra ağı bir arada tutan kinetik zincirleri oluşturan vinil grupları boyunca yayılmasına izin verilir.



Şekil 2.4. Fonksiyonel hidrojellerin sentezi için genel şema (Büyükbektaş, 2018)

2.2.2. Hidrojellerin sınıflandırılması

Polimerik hidrojeller, hazırlama yöntemlerine, iyonik yüklerine, fiziksel yapılarına ve çapraz bağlanma durumlarına bağlı olarak aşağıdaki şekilde gösterildiği gibi sınıflandırılabilirler.

a- Hazırlama yöntemine göre;

- Homopolimer hidrojeller
- Kopolimer hidrojeller
- Çoklu polimer hidrojeller
- IPN (interpenetrating networks) hidrojeller

b- İerdikleri yan graplara gre;

- Ntral (iyonik olmayan) hidrojeller
- İyonik hidrojeller
 - Anyonik (negatif ykl) hidrojeller
 - Katyonik (pozitif ykl) hidrojeller
 - Poliamfolitihidrojeller

c- Fiziksel yapılarına gre;

- Amorf hidrojeller
- Yarı - kristalin hidrojeller
- Hidrojen baėlı hidrojeller

d- apraz baėlanma durumlarına gre;

- Fiziksel hidrojeller
- Kimyasal hidrojeller

e- Kaynaklarına gre;

- Doėal hidrojeller
- Sentetik hidrojeller

f- Su ieriklerine gre;

- Dřk řiřme dereceli (%20-50) hidrojeller
- Orta řiřme dereceli (%50-90) hidrojeller
- Yksek řiřme dereceli (%90-99,5) hidrojeller
- Sper-absorbant (%>99,5) hidrojeller

g- Kimyasal kararlılıklarına gre;

- Biyobozunurhidrojeller
- Biyobozunmayanhidrojeller

h- Gzenek boyutuna gre hidrojeller;

- Gzenekli hidrojeller
- Gzeneksiz hidrojeller
- Makrogzeneklihidrojeller

2.2.3. Amfoterik Hidrojeller

Polimer zincirlerinin yapısına kimyasal olarak bağlanıp iyonlaşabilen anyonik ve katyonik grupları içeren amfoterik polielektrolitler, kovalent çapraz bağlarla üç boyutlu bir ağ oluşturabilir. Bu oluşan ağ yapılı madde, suya veya biyolojik sıvılarla bir araya geldiğinde büyük miktarda su veya biyolojik sıvıyı emebilir ve parçalanmadan şişerek amfoterik polielektrolit hidrojel elde edilebilir. Amfoterik polielektrolit hidrojel hem asidik hem de bazik ortamda şişme özelliğine sahiptir ve şişme geri dönüşümlüdür. Çevredeki çevresel pH'nın yanı sıra şişmenin büyüklüğünü etkileyen diğer etmenler, solvent bileşimi, tuz konsantrasyonu, ultraviyole ışık, sıcaklık, mekanik kuvvetler, bileşenlerin doğası ve mikro yapısı, elektrik potansiyelleri ve manyetik alan gibi diğer faktörler tarafından da düzenlenebilir (Yan vd., 2012). Akrilik asit, sodyum akrilat, sodyum stiren sülfonat, akrilamid-2-metil-1-propan sülfonik asit, amfoterik SAP'ların sentezi için anyonik monomerler olarak kullanılmıştır. Yaygın olarak kullanılan katyonik komonomerler, [2-(metakrililoksi)etil]trimetilamonyum klorür, [3-(metakrililamino)propil]trimetilamonyum klorür, diallildimetilamonyum klorür, 4-vinilpiridin ve N,N'-dimetil-N-etilmetakriloksietilamonyumbromürdür. Akrilamid ve N-izopropilakrilamid en yaygın kullanılan nötr monomerlerdir.

Poliamfolitler; anyonik ve katyonik fonksiyonel grupları bünyesinde bulunduran, iyonik polimerler olmalarıyla beraber polielektrolitler olarak da bilinmektedirler. Bu poliamfolitler çapraz bağlı yapıda olmalarıyla birlikte, kopolimerik poliamfolitler asidik ve bazik yapılardan oluşan monomerlerin polimerleşmesiyle oluşurlar (Güntekin, 2010). İçeriğindeki asidik ve bazik monomerlerin zayıf olması halinde bu polimerin sulu çözeltideki net yükü bulunduğu ortamın pH'sı ile değişiklik gösterebilmektedir. Bu polimerlerin yük asimetrisinin fazla olması durumunda polimer polielektrolit olarak davranır. Yani ortam pH'sının düşmesi halinde poliamfolit pozitif, pH yüksek olması halinde negatif yüklü duruma geçer. Bu pH değişiminin etkisiyle birçoğu gevşeme-büzüşme konformasyon davranışı ortaya çıkar (Sanjuan & Tran, 2008; Zhao vd., 2006; Ezell & McCormick, 2007).

2.3. Boyar Madde

Boylar renklendirilmek amacıyla kullanılan maddelerdir. Geçmişten günümüze kadar kullanılan boyalar önceden böcekler, bitkiler vb. gibi doğal maddelerden elde edilmekteydi. Ancak pigment tonlarındaki çeşitliliğin az olması, renklerin sönük olması ve malzemenin boyayla bağlanmasına yardımcı olan maddenin çok fazla miktarda toksik etkisinin olması nedeniyle alternatif renklendirici ve sentetik boyaların geliştirilmesi önem kazandı. Sentetik boyaların kullanımı birçok endüstri kolunda (tekstil, deri, kâğıt vb.) yaygın olarak karşımıza çıkmaktadır. Bu boyar maddeler doğaları gereği dirençlidir, kolayca bozunmazlar ve güneş ışığına, yıkamaya oksitleyici maddelerin varlığına karşı dayanıklıdır. Ancak sentetik boyaların bu faydalarının olmasının yanı sıra aynı özellikler kirlenmenin nedeni haline gelmiştir. Çoğu zaman bu boyalar, kullanımlarından sonra, çevresel tehlikelerine bakılmaksızın su yollarına bırakılır (Bhattacharya & Shunmugam, 2020). Boyar maddelerin tekstil endüstrisinde en önemli özelliklerden birisi renk olup, atık sularda karşımıza çıkmaktadır. Bu nedenle atık sularda çözünmüş ve diğer hallerde bulunabilen rengin ana kaynağı kullanılan boyar maddelerdir. Boyar maddelerin çevreye verdiği etkileri ve yapısal özellikleri nedeni ile arıtılabilmeleri ve arıtma yöntemlerinin çeşitliliği büyük önem taşımaktadır. Ülkemizde ve dünyada tekstildeki üretimin büyük bir hacmi olmasından dolayı yüksek miktarda boyar madde içermesi ve bu boyar maddelerden kaynaklanan atık sular ciddi problemler yaratmaktadır. Dünya’da yaklaşık on bin farklı çeşitte boyar madde ve pigmentleri üretilmektedir. Ülkemizde kullanılan boyar maddeler daha çok ithal edilmektedir. Bir kilograma düşen bir malzemenin yıkanması için harcanan su miktarı düşünüldüğünde tekstil atık sularının arıtımının araştırılması büyük önem arz etmektedir (Kocaer & Alkan,2002).

Boylar özelliklerine göre şu şekilde sınıflandırılabilirler:

- Kaynağına göre;
 - Doğal boyalar,
 - Sentetik boyalar,
- Sudaki çözünürlüklerine göre;
 - Suda çözünen (Asidik, bazik ve reaktif boyalar),
 - Suda çözünmeyen (Dispers boyalar, tekne boyaları, kükürt boyaları),
- Kimyasal bileşimlerine göre;

- Anyonik boyalar,
- Katyonik boyalar,
- İyonik olmayan boyalar

olarak sınıflandırılabilir (Bhattacharya & Shunmugam, 2020).

2.4.Çalışmada Kullanılan Boyalar

2.4.1.Metilen Mavisi (MM)

Metilen mavisi (MM) katyonik (bazik) boyar maddeler içinde yer alan bir bileşiktir. Metilen mavisi (MM) heterosiklik bir aromatik bileşik yapıdadır (Yagub, 2014). Boyama ve ilaç sanayinde kullanılan metilen mavisi oda koşullarında katı ve kokusuz bir yapıda olup, yeşil renkli bir toz görünümündedir, fakat suda çözündüğünde mavi bir çözelti haline gelmektedir. Endüstri alanında ipek, kâğıt, deri boyamasında ve resim boyalarının imalatında geniş bir kullanım alanı bulmakla beraber, sağlık alanında da iç organlar, deri ve kaslardaki sinirlerin dağılımını incelemek için kullanılmıştır (Salleh, 2011). Yaygın kullanımının yanı sıra metilen mavisi bilinen temel toksik boyalardan birisi olarak karşımıza çıkmaktadır. Su ortamında belirli oranın üzerine çıkması ($>7\text{mg/kg}$) halinde tehlikeli etkileri, kan basıncı yükselmesi, akıl sağlığın bozulması, mide bulantısı ve karın ağrısı, gözlerde hasar, nefes almada zorluk, solgunluk, gibi sağlık problemlerine neden olmaktadır. Metilen mavisi 665 nm dalga boyunda ışığı absorblaması sayesinde rengini göstermektedir (Mahmoodi & Arami, 2009).

Molekül ağırlığı=319,9g/mol

Sistematik adı 3,7- bis(dimetilamino)-fenazotiyonyum klorür (Akköz, 2018).

2.4.2. Tartrazin (TART)

Azo grubunda yer alan tartrazin (TART) suda çözünme özelliğine sahip sarı renkli boyar maddedir. Tartrazin hidrofilik yapıdadır. Endüstri alanında ilaç, kozmetik gibi alanlarda oldukça kullanım alanı bulan tartrazin gıda ürünlerinin renklendirilmesinde karşımıza çıkmaktadır. Tartrazin kullanımına dikkat edilmediği takdirde astım, alerji, egzama gibi farklı sağlık problemlerine neden olur. Tartrazin endüstriyel süreçlerden oluşan atıksularda

renk deęişimine ve bu atıksuların arıtılmadan doğaya bırakılması sonucu ekosistemdeki bulunan canlı yaşamında olumsuz etkilere yol açmaktadır (Banerjee & Chattopadhyaya, 2013; Leulescu vd., 2018).

Moleküler ağırlık: 534,3 g/mol

Dalga boyu: 427 nm (Karanfil,2021).

2.5. Adsorpsiyon

Boyaların çoğunluğu genellikle tekstil endüstrisinden, kâğıt ve plastik fabrikalarından, deri işleme fabrikalarından (tabakhane), ilaç veya gıda endüstrisinden vb. kaynaklanmaktadır. Bunlar organik maddelerdir ve potansiyel olarak suda çözünürler. Boyalar, çözünürlükleri ve kimyasal özelliklerine göre asit, bazik, direkt, mordan, klozet, reaktif, dispersiyon, azo ve sülfür boyları olarak sınıflandırılır (Akköz, 2018).

Atık sulardan boyalar ve ağır metaller gibi toksik maddeleri uzaklaştırmak için en yaygın yöntemler arasında iyon deęişimi, filtrasyon, kimyasal çöktürme, elektrokimyasal arıtma ve adsorpsiyon yer alır. Her iki tipteki maddeler için (ağır metaller ve boyar maddeler) adsorpsiyon, düşük maliyet, geniş çaplı kirleticilerin etkinliği ve kolay uygulanabilirlik nedeniyle su arıtımı için en yaygın kullanılan yöntemdir (Duykop, 2020). Aktif alümina, silika jel, zeolitler ve en çok aktive edilmiş karbon gibi pek çok adsorbent (malzeme) adsorpsiyon çalışmalarında adsorpsiyon kapasiteleri için test edilmiştir. Tatmin edici performanslarına rağmen, sektörlerde önemli maliyetleri nedeniyle bunların kapsamlı bir şekilde kullanımları yasaklanmıştır. Bu nedenle, bilim camiası sürekli yeni, düşük maliyetli, etkili ve çevre dostu materyaller araştırmaktadır. Adsorpsiyon yöntemi, atık su arıtımında geniş bir kullanım alanına sahip olan etkin bir teknoloji olarak kabul edilmektedir (Doğar, 2000; Lin, 1993, Nicolet & Rott, 1999).

Adsorpsiyon, iyon ve moleküllerin bir maddenin yüzeyine tutunması olayıdır ve maddenin sınır yüzeyinde moleküller arasındaki kuvvetlerin denkleşmemiş olmasından ileri gelir. Adsorpsiyon işleminde yüzeye tutunan maddeye adsorbat, maddenin tutunduğu yüzeye ise adsorban adı verilir. Adsorpsiyonda, adsorbe olan maddeler iyon ya da molekül olabilirler (Ho & McKay, 1998).

Adsorpsiyon olayında seçimlilik vardır. Bir adsorbana bazı maddeler çok adsorplanabilirken bazı maddeler hiç adsorplanamayabilir. Bunda adsorban ile adsorbat arasındaki ilginin ne olduğu, etkileşim türü ve kuvveti belirleyicidir. Adsorpsiyon tersinirmez olabileceği gibi tersinirde olabilir. Bu durumda adsorbatın geri çözelti içerisine geçmesine desorpsiyon denir (Duykop, 2020).

2.5.1. Adsorpsiyon Çeşitleri

Adsorplayan madde yüzeyi ile adsorplanan kimyasal arasındaki çekim kuvvetlerine bağlı olarak gerçekleşen üç tür adsorpsiyon işlemi tanımlanmaktadır:

- Fiziksel Adsorpsiyon
- Kimyasal Adsorpsiyon
- İyon Değişimi Adsorpsiyonu

Fiziksel adsorpsiyon da adsorban-adsorbat arasındaki etkileşim zayıf Van der Waals kuvvetlerinin etkisi ile olur. İyon değişim adsorpsiyonu elektriksel çekim kuvvetleri üzerinden gerçekleşir. Kimyasal adsorpsiyonda ise adsorplanan madde ve adsorban arasında kimyasal bağ oluşur (Saygılı, 2015).

2.5.2. Adsorpsiyona Etki Eden Faktörler

Adsorpsiyona etki eden faktörler; adsorbanın yüzey alanı, adsorbanın gözenek boyutu, ortamın pH değeri, başlangıç derişimi, adsorpsiyon sıcaklığı, çözünürlük, farklı iyonların/moleküllerin varlığı, karıştırma hızı, temas süresi gibi etkenleri sıralamak mümkündür (Kayacan, 2007).

Adsorpsiyon hemen hemen tüm katıların yüzeyinde oluşan bir süreçtir. Bununla birlikte, katı maddelerin adsorpsiyon kapasitesi, dört ana faktöre (birbiriyle ilişkili) bağlıdır. Bunlar; (i) adsorbe maddenin fiziko-kimyasal özellikleri, (ii) adsorbatların kimyasal özellikleri, (iii) geçerli deney koşulları ve (iv) adsorban ile adsorbat arasındaki afiniteyi içerir. Adsorban maddesinin fiziko kimyasal özellikleri, temel olarak parçacık çapına, katyon değişim kapasitesine, zeta potansiyeline, sıfır değişim noktasındaki pH değeri (pH_{pzc}) ve fonksiyonel gruplar (FTIR spektrumları ile doğrulanır), adsorptif verimliliği

etkiler. Katılarda genellikle, düşük paracık apı, daha fazla yzey alanı, adsorpsiyonu arttırır(Ho & McKay, 1998).

Adsorplanmayı etkileyen adsorbatların en nemli kimyasal zellikleri arasında iyonların pKa'sı, iyonik yarıapı, elektronegatiflięi ve serbest enerjisi, atom aęırlıęı, elektronegatiflik ve iyonik boyut ne kadar bykse, adsorpsiyon iin afinitesi o kadar artar. Aksine, hidratasyon serbest enerjisinin deęerleri ne kadar yksekse, iyon metalleri adsorbe edilmek yerine zlme fazında kalma eęilimi gsterir. Ek olarak, pKa deęeri ne kadar dřk olursa adsorpsiyon o kadar yksek olur. Fakat adsorpsiyon deęerlendirmesi iin deney kořulları ok nemlidir. Bir katı maddenin adsorpsiyon kapasitesini etkileyen kritik deney kořulları; bařlangı konsantrasyonu, sulu zeltinin pH'sı, temas sresi, sıcaklık, adsorban miktarı ve dięer kirleticilerin birlikte varoluřudur (Yagub vd.,2014).

Bařlangı deriřiminin etkisi:

Genel olarak bařlangı konsantrasyonu ile adsorpsiyon kapasitesi pozitif olarak iliřkilidir (bařlangı deriřimi arttıa adsorpsiyon kapasitesi artar) ancak bařlangı konsantrasyonunun ařırı artması durumunda yukarıda bahsedilen varsayım geerli deęildir.

pH'nın etkisi:

zeltinin pH'sı, adsorban maddenin yzey yknn, zeltideki adsorblanan maddenin iyonizasyon derecesinin kontrol edilmesinde ve aynı zamanda, adsorban aktif blgeleri zerinde eřitli fonksiyonel grupların ayırışmasında nemli bir rol oynamaktadır (Putra vd., 2009). zelti ortamında yer alan hidrojen ve hidroksit iyonları hızla adsorplanır ve ortamdaki dięer maddeler pH deęiřiminden etkilenir. Endstride yaygın kullanılan boyalar anyonik ve katyonik boyalar olup, organik bazlar yksek, organik asitler ise dřk pH deęerinde daha iyi adsorbe olarak boyanın tutulumu artmaktadır (Bansal&Goyal, 2005).

Srenin etkisi:

Temas sresi ile ilgili olarak, adsorpsiyon iřlemi sırasında daima iki ana ařama tespit edilmiřtir: hızlı ve niceliksel olarak egemen olan birinci ařama ve yavaş ve nicelik bakımından nemsiz olan ikinci ařama. Birinci ařamada, adsorban zerindeki aktif alanların yksek bulunması nedeniyle adsorpsiyon iřlemi hızlanırken, ikinci ařamada, bir denge elde edilinceye kadar sre yavaşlar (Ho vd., 2005).

Sıcaklık Etkisi:

Sıcaklık da, adsorpsiyon işleminde kritik öneme sahiptir. Sıcaklık ile adsorpsiyon arasında bildirilen pozitif ilişki, artan sıcaklıkla, aktif yüzey alanının ve gözenekliliğin artmasına, dolayısıyla sıcaklığın adsorbanın gözenek hacmini arttırdığı anlamına gelir. Sıcaklık adsorpsiyon sürecinin endotermik ya da ekzotermik olma durumuna göre de adsorpsiyon kapasitesini etkiler (Banerjee & Chattopadhyaya, 2017). Ayrıca, sıcaklığın artması emici maddeyi çevreleyen sınırın kalınlığını azaltır, emme oranını arttıran bir katman geliştirir. Dahası, yüksek sıcaklık, boya moleküllerinin kinetik enerjisini artırır ve adsorplananın parçacık içi difüzyon oranını artırır. Biyosorpsiyon kapasitesinin sıcaklık ile artması, adsorbat ile adsorbent arasında temas etkinliğinin yükseldiğini göstermektedir (Aslan vd., 2015).

Adsorbent miktarı:

Biyokütle dozajı, yüzey alanı ne kadar büyük olursa adsorpsiyon alanlarının daha fazla bulunması nedeniyle emilim kapasitesi ile pozitif korelasyona sahiptir. Adsorban miktarı ile birlikte adsorbantın tutunacağı aktif bölgede artış olur. Bu artışla genellikle adsorpsiyon verimi de artış gösterir (Ngulube vd., 2017).

2.6. Adsorpsiyon İzotermi

Sabit sıcaklıkta adsorban tarafından adsorplanan madde miktarı ile madde değişimi arasındaki ilişkiyi tanımlayan matematiksel bağıntılara adsorpsiyon izotermi adı verilir (Rehab,2016). Çeşitli adsorpsiyon izoterm modelleri olmakla birlikte bu modellerden Langmuir, Freundlich ve Temkin izotermi en bilinen modellerdir (Dey vd., 2015).

Denge ilişkilerinin ortak bir adı olan adsorpsiyon izotermi, adsorpsiyon mekanizması, adsorbentlerin yüzey özellikleri, adsorpsiyon kapasitelerinin ifadesi ve adsorpsiyon sistemlerinin verimli tasarımı için gereklidir ve ayrıca kirleticilerin adsorbent materyallerle nasıl birbiriyle ilişkili olduğunu açıklarlar (Foo & Hameed, 2010). Matematiksel ilişki (modelleme) normalde katı faz ile kalıntı konsantrasyonu arasında bir grafik çizilerek gösterilir (Kong & Adidharma, 2019). Modelleme analizleri, işletme tasarımına ve adsorpsiyon sistemlerinin uygulanabilir uygulamasına yönelik önemli bir rol üstlenir.

Çözeltinin konsantrasyonu değişmeden kalırsa bir denge durumu elde edilir. Bu durumda, adsorbent yüzeyine adsorbe edilen ile adsorbent yüzeyinden desorbe edilen net konsantrasyon sıfırdır (eşit transfer nedeniyle). Kalıcı ve sıvı fazda adsorbatın kalıcı sıcaklıktaki denge konsantrasyonu arasındaki bu ilişkiler denge sorpsiyon izotermi ile tanımlanır. Üç temel yaklaşım açısından geçmişte geniş bir çeşitlilikte denge izoterm modelleri oluşturulmuştur (Aharoni & Ungarish, 1977). Bunlar, Langmuir, Freundlich, Langmuir-Freundlich, Brunauer-Emmett-Teller, Redlich-Peterson, Dubinin-Radushkevich, Temkin, Toth, Koble-Corrigan, Sips, Khan, Hill, Flory-Huggins ve Radke-Prausnitz izotermi'dir. Bahsedilen ilk yaklaşım kinetik düşünce iken ikincisi termodinamiktir. Bir denge içinde hem adsorpsiyon hem de desorpsiyon oranları ile dinamik denge hali bir adsorpsiyon dengesidir ve termodinamik ile çok sayıda adsorpsiyon izoterm modelinin elde edildiği bir çerçeve verilmektedir (Giles vd., 1974). Karakteristik eğrisinin oluşturulmasında temel fikir, genellikle potansiyel teori olan üçüncü yaklaşımla verilmiştir. Model parametrelerinin fiziksel yorumundaki değişiklikler, izoterm modellemesinde, tek bir yaklaşımdan daha fazla türetme olan ilginç bir trend izlememizi zorlar (Köylü vd., 2015).

2.6.1. Langmuir ve Freundlich İzoterm Modelleri

Langmuir izoterm modeli sınırlı sayıda benzer konumlara sahip bir yüzeyde tek tabakalı bir adsorpsiyon olduğu durum için geçerlidir. Langmuir izotermi; adsorpsiyon bölgelerinin aynı enerjiye sahip olduğunu, tersine çevrilebilir olduğunu, homojen bir adsorban yüzeyi üzerinde adsorbatın tek tabakalı bir adsorpsiyon olduğunu varsayar. (Allen vd., 2003; Delen, 2023).

Freundlich izoterm modeli adsorpsiyon konumlarının heterojen olduğu kabulüne dayanan bir modeldir. Bu eşitlik heterojen yüzey enerjilerinin özel bir durumudur. Bu adsorpsiyon modeli çok tabakalı adsorpsiyonu kabul eden bir modeldir.

Bu çalışmada sıkça tartışılan adsorpsiyon izotermi ve denklemleri aşağıda Eşitlik 2.1'de açıklanmıştır.

$$\text{Langmuir; } Q_e = \frac{Q_m K_L C_e}{1 + K_L C_e} \quad (2.1)$$

Genellikle Langmuir izoterm eşitliğinin aşağıdaki eşitlikte verilen lineerleştirilmiş haliyle kullanımı tercih edilir.

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{Q_m K_L} + \frac{C_e}{Q_m} \quad (2.2)$$

Q_m : Teorik maksimum adsorpsiyon kapasitesidir. (mg/g)

Q_e : Adsorbe edilen adsorbat miktarıdır. (mg/g)

C_e : Adsorbatın denge konsantrasyonu. (mg/L)

K_L : Adsorpsiyon verimi ve adsorpsiyon enerjisi ile ilgili Langmuir izoterm sabitidir (Coşkun, vd, 2022; Karanfil, 2021; Keleşoğlu, 2007).

Freundlich denklemi Eşitlik 2.3'te verilmiştir:

$$\text{Freundlich; } Q_e = K_F (C_e)^{1/n} \quad (2.3)$$

Q_e : Denge anında birim adsorbent üzerine adsorplanan madde miktarı. (mg/g)

C_e : Dengede sıvı fazdaki madde derişimi. (mg/L)

K_F : Adsorpsiyon kapasitesi.

n : Adsorpsiyon yoğunluğunu (şiddetini) belirtir.

Kirleticinin denge yükü Q_e (mg / g), kütle denge denklemi kullanılarak verilen Eşitlik 2.4'teki gibi hesaplanır:

$$Q_e = (C_0 - C_e) V / m \quad (2.4)$$

Burada C_0 ve C_e (mg / L) sırasıyla başlangıç ve denge kirletici konsantrasyonudur; V (L), çözelti hacmidir; m (g) adsorbentin kütlesidir. (Delen, 2023).

2.6.2. Temkin İzotermi

Temkin izoterminde, adsorbe olan maddeler arasındaki etkileşimlere dikkat edilmiştir. Temkin izotermine göre, tüm moleküllerin adsorpsiyon ısısındaki azalış, doğrusal düzende meydana gelir. Bu durumda bağlanma enerjisinin homojen olduğunu gösterir (Okumuş & Doğan, 2019). Temkin izotermi ifade eden denklem Eşitlik 2.5'te gösterilmiştir:

$$Q_e = B \ln A_T + B \ln C_e \quad (2.5)$$

B değeri adsorpsiyon ısıyla ilgili sabittir ($J \cdot mol^{-1}$) ve $B = RT/bT$ şeklinde ifade edilir.

bT : Temkin izoterm sabitidir.

A_T : denge bağlanma sabitidir ($L \cdot g^{-1}$).

T : mutlak sıcaklıktır (K).

R : ideal gaz sabitidir ($J \cdot mol^{-1} \cdot K^{-1}$).

B ve A_T değerleri sırasıyla Q_e ye karşı $\ln C_e$ 'nin çizilen lineer grafiğin eğim ve kesim noktasından hesaplanır (Duykop, 2020; Ho, 2003).

2.7. Literatür Bilgisi

Shukla ve arkadaşları [2-(Methakriloiloksi)etil]trimetilamonyum klorür ve sodyum akrilat monomerlerini ve N,N metilen biasakrilamitçapraz bağlayıcısı kullanarak çözelti polimerizasyonu ile hidrojeller sentezlemişlerdir. Sentezlenen hidrojelleri anyonik (Orange G) ve katyonik boya (metilen mavisi) adsorpsiyonunda kullanmışlardır. Amfoterik hidrojellerin net yükü azaldıkça adsorbe edilen boya miktarının azaldığını belirlemişlerdir (Shukla vd., 2012).

Deen ve arkadaşları, N-akriloil-N'-etil piperazin (AcrNEP) ve maleik asit (MaA) bazlı yeni poliamfoterik doğrusal polimerler ve hidrojelleri serbest radikal çözelti polimerizasyonu ile hazırladılar. Kopolimer bileşiminin çözelti özelliklerine ve şişme mekanizmasına etkisini araştırmışlardır. Yeni hidrojellerin boya adsorpsiyon kapasitesini, model boya olarak Kongo kırmızısı kullanılarak araştırmışlar ve $8,37-11,45 \text{ mg} \cdot g^{-1}$ aralığında kapasite ve %68-93 aralığındaki adsorpsiyon verimliliği elde etmişlerdir (Deen vd., 2016).

Demirci ve arkadaşları, katyonik poli(3-akrilamidpropil trimetil amonyum klorür) [p (APTMACl)], anyonik poli (2-akrilamido-2metilpropan sülfonik asit) [p (AMPS)] ve amfoterik poli (APTMACl-ko-AMPS) hidrojellerini, pH'ya duyarlı hidrojeller olarak serbest radikal polimerizasyon teknikleri yoluyla hazırladılar. Hazırlanan sistemleri sulu ortamdan metilen mavisi (MB) ve Eosin Y (EY) gideriminde kullanmışlardır (Demirci, vd, 2022).

Sarmah ve Karak, nişasta ve akrilik asit kullanarak, epiklorhidrin ve N,N metilen bisakrilamitin çapraz bağlayıcı olarak kullanıldığı amfoterik hidrojel­leri sentezlemişlerdir. Sentezlenen hidrojel­leri anyonik ve katyonik boyalar olan Kongo red ve metilen mavisi gideriminde kullanmışlardır. Bu boyalar için sırasıyla 133,65 mg/g ve 64,73 mg/g kapasite belirlemişlerdir (Sarmah vd.,2020).

Hussein E. Ali ve arkadaşları, kitosan/polypropenoik asit/etilendiamin nanokompozit hidrojel­lerini gama ışık kaynağı kullanarak sentezlemişlerdir. Çalışmada farklı oranlarda kitosan/polipropenoik asit ve etilen diamin matriks ortamı olarak, Fe₃O₄'ü nanokompozit olarak kullanmışlardır. Nanokompozitlerin süperadsorbent ve süperparamagnetik davranış sergilediklerini belirlemişlerdir. Astrazonblue (AB-katyonik) ve LeruiAcidBrillant Blue (LABB-anyonik) bo­yaları için adsorpsiyon çalışmalarını gerçekleştirmişlerdir. Adsorpsiyon kinetiğinin yalancı ikinci derece kinetiği ve Langmuir izoterm modeline uyduğunu belirlemişlerdir. AB ve LABB bo­yaları için 193,21 mg/g ve 51,9 mg/g boya kapasitesi belirlemişlerdir (Hussein vd., 2022).

Deng ve arkadaşları, Poli ((MAA-ko-DMAEMA)-g-EG hidrojel­lerini poli(etilen glikol) metileter metakrilat, N,N'-dimetilaminoetil metakrilat ve metakrilik asit monomerleri kullanarak sentezlemişlerdir. FTIR, TEM ve lazer partikül boyut analizi ile karakterize ettikten sonra farklı pH'lar için şişme davranışlarını incelemişler ve kitosanı model ilaç olarak seçerek salınım uygulamaları yapmışlar ve biyomedikal uygulamalar için uygun olduğunu önermişlerdir (Deng vd., 2009).

Huang ve arkadaşları, akrilik asit-nişasta semi-IPN nanokompozit amfoterik hidrojel­leri katyonik olarak modifiye edilmiş Na-bentonit killeri kullanarak sentezlemişlerdir. Hidrojel­lerin şişme davranışlarını farklı pH'larda tampon çözeltilerde incelemişlerdir. Hidrojel­lerin, pH 2-4 aralığında pH duyarlılığı olduğu ve yüksek su içeriklerinde bile iyi basma direnci sergilediğini bildirmişlerdir (Huang vd., 2009).

Mahida ve Patel, süperadsorbent poli (NIPAAm/DAPB/AA) amfoterik hidrojel­lerini ters-emülsiyon polimerizasyonu ile sentezlemişler ve kurşun ve civa gibi ağır metallerin gideriminde kullanmışlardır. Hidrojel­leri, FTIR, TGA, SEM, TEM, EDX ve BET yöntemleri ile karakterize etmişlerdir. Adsorpsiyon şartlarını inceleyerek kurşun gideriminin daha etkin olduğunu bildirmişlerdir (Mahida& Patel,2015).

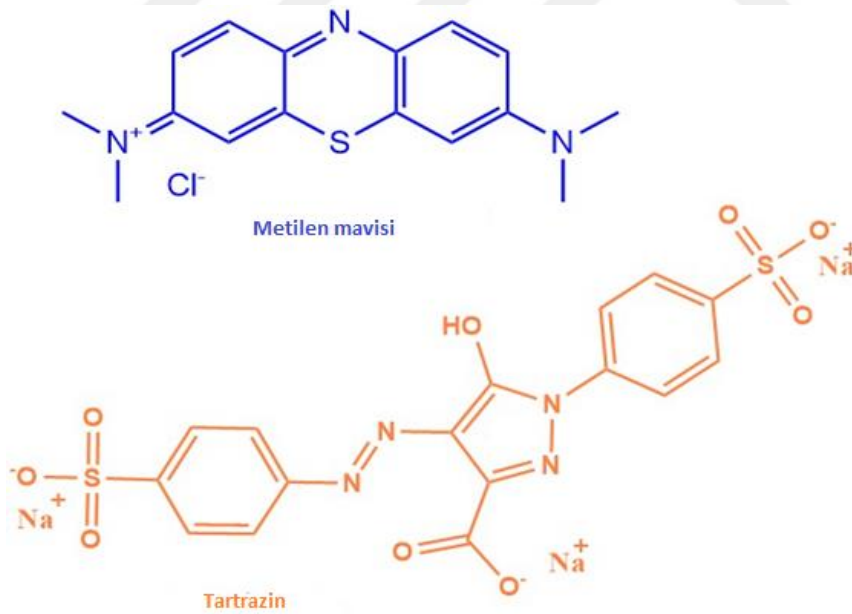
Huang ve arkadaşları, pektin, akrilik asit, dimetildiallil amonyum klorit ve polivinil alkol kullanarak amfoterik fonksiyonel hidrojel­ler hazırlamışlardır. Hazırlanan amfoterik hidrojellerin metilen mavisi ve CongoRed gideriminde kullanımı incelenmiş ve sırasıyla 222,656 mg/g ve 316,46 mg/g kapasite belirlemiştir. Adsorpsiyon davranışlarının yalancı ikinci derece kinetiğe ve Langmuir izoterm modeline uyduğunu bildirmişlerdir (Huang vd., 2023).

Yan ve Li, metil metakrilat, akrilik asit, grafen oksit, metilen biasakrilamit, β -siklodekstrin, sitrik asit kullanarak amfoterik hidrojel­ler sentezlemiş ve katyonik/anyonik boya ve ağır metal gideriminde kullanımı incelemiştir. Boya olarak metilen mavisi, malachitegreen, Congored ve metal olarak Cu^{2+} gideriminde kullanımı araştırılmıştır. Adsorpsiyon kinetiğinin araştırılan tüm türler için yalancı ikinci derece kinetiğe ve Langmuir izoterm modeline uyduğunu belirlemiştir. Adsorpsiyon mekanizmasını FTIR, Raman ve XPS analizleri yardımıyla belirlemiştir (Yan &Li, 2021).

3. MATERYAL VE YÖNTEM

3.1. Kullanılan Kimyasallar ve Materyaller

Çalışmalarda, sodyum 4-vinilbenzensulfonat ($C_8H_7NaO_3S$ -Aldrich, anyonik monomer, 4VBS), [2-(Methakriloiloksi)etil]trimetilamonyum klorür($C_9H_{18}ClNO_2$ -Aldrich, katyonik monomer, MOEAMCl), amonyum persülfat ($(NH_4)_2S_2O_8$ -Merck, başlatıcı, APS), N,N-metilen bisakrilamit ($C_7H_{10}O_2N_2$ - SigmaAldrich, çapraz bağlayıcı, MBAAm), sodyum klorür (NaCl-Merck), Hidroklorik asit (HCl-Merck), potasyum klorür (KCl-Merck), metilen mavisi ($C_{16}H_{18}ClN_3S$ - Merck), tartrazin ($C_{16}H_9N_4Na_3O_9S_2$ -Merck), sodyum hidroksit (NaOH-Merck), üre (CON_2H_4 -Merck), asetik asit ve sodyum asetat analitik saflıkta olmaları nedeniyle saflaştırma yapılmadan kullanıldı. Çalışmalar yapılırken kullanılan anyonik boya olan tartrazin (TART) ve katyonik boya olan metilen mavisinin(MM) kimyasal yapısı Şekil 3.1’de verildi.



Şekil 3.1. Metilen mavisi (MM) ve tartrazin(TART)’in kimyasal yapısı.

3.2. Cihazlar

Hidrojellerin kurutma işlemleri ChristIscPlus marka liyofilizatörde gerçekleştirildi. Kurutmaöncesinde numune buzdolabının buzluk kısmında donduruldu, daha sonra -85 derece 0,0010mbar basınç altında numunenin sıvı kısmı uzaklaşana kadar liyofilizasyona alındı. Çözeltilerin ve diğer karıştırma ve ısıtma işlemleri gerektiğindeHeidolph MR Hei Standart marka ısıtıcılı manyetik karıştırıcı kullanıldı. Monomer, başlatıcı ve çapraz bağlayıcının çözünmesi için karıştırıcı olarak VWR marka vorteks cihazından ve maddelerin hassas tartımı işleminde Sartorius marka terazi kullanıldı. Çalışmada kullanılan cihazlar ve özellikleri Tablo 3.1’de ve fotoğrafları Şekil 3.2, Şekil 3.3, Şekil 3.4, Şekil 3.5 ve Şekil 3.6’da verildi.

Tablo 3.1. Çalışmada kullanılan cihazlar ve özellikleri

Kullanılan Araç	Kullanım Amacı	Marka	Tedarik Yeri
Liyofilizatör	Kurutma	ChristIsc Plus	Erciyes Üniversitesi Teknoloji Uygulama Araştırma Merkezi
Taramalı Elektron Mikroskobu (FE-SEM)	Yüzey Özellikleri İnceleme	FEI Quanta 450 FEG	Yozgat Bozok Üniversitesi BİLTEM
Morötesi-Görünür Bölge Spektrofotometresi (UV-Vis)	Adsorban değeri ölçme cihazı	Shimadzu UV-1208	Yozgat Bozok Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Kimya Laboratuvarı
Termal Analiz Cihazı (TG-DTA)	Jellerin Ağırlık ve sıcaklık değişimleri	Perkin Elmer-Diamond	Erciyes Üniversitesi Teknoloji Uygulama Araştırma Merkezi
FT-IR Spektrofotometre cihazı	Jel yapısındaki fonksiyonel grup ve bağ durumları inceleme	Perkin Elmer-SpectrumTwo	Yozgat Bozok Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Kimya Laboratuvarı



Şekil 3.2. SEM Cihazı



Şekil 3.3. FTIR Spektrofotometre Cihazı



Şekil 3.4. TGA-DTA-DSC Cihazı



Şekil 3.5. UV-VisSpektrofotometre Cihazı



Şekil 3.6.Liyofilizatör cihazı

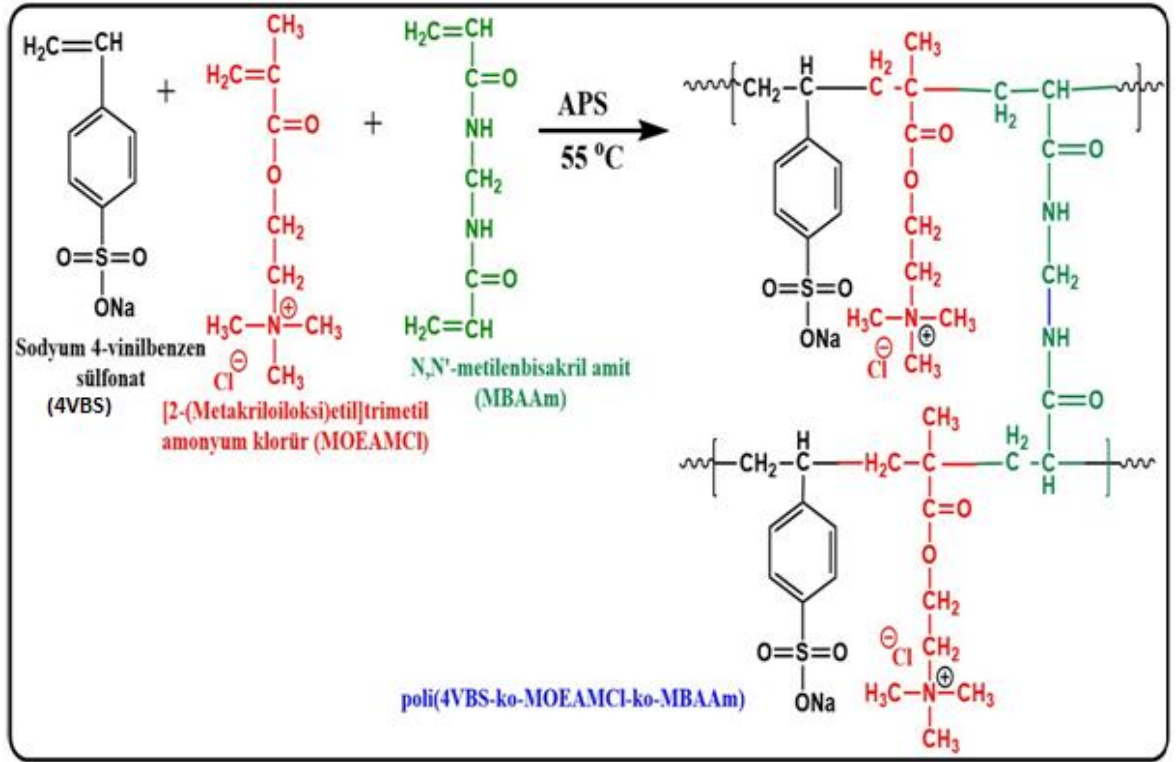
3.3. Deneysel Yöntem

3.3.1. Hidrojellerin Sentezi

Aşağıda verilen Tablo 3.2’deki oranlar kullanılarak beş farklı hidrojel örneği hazırlandı.

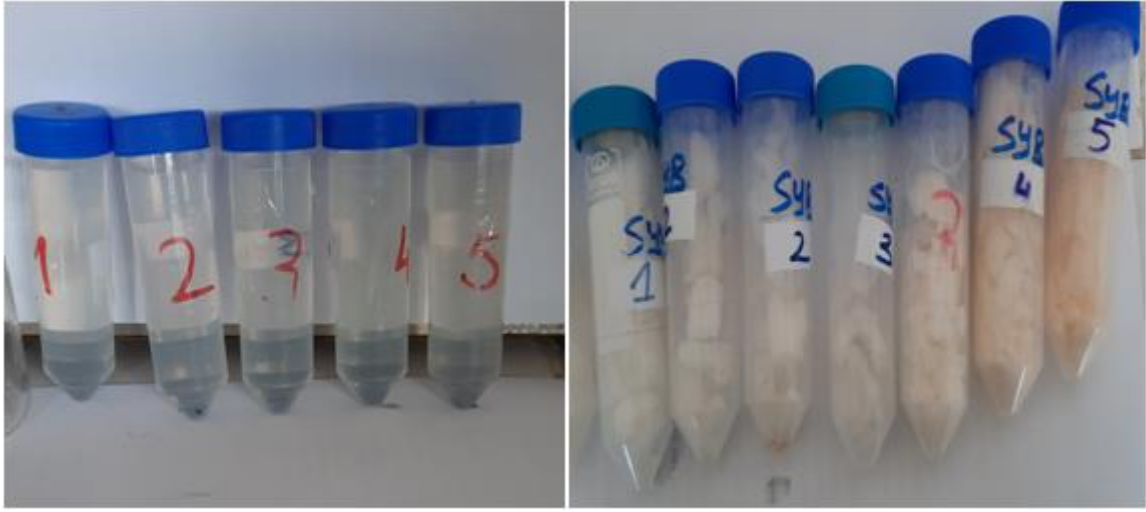
Tablo 3.2. Sentezlenen hidrojellerin hazırlama reçetesi

Deney no	(MOEAMCl) (% mol)	4VBS (%mol)	APS (%mol)	MBAAm (% mol)
SYB-1	100	-	1	1
SYB-2	90	10	1	1
SYB-3	75	25	1	1
SYB-4	60	40	1	1
SYB-5	50	50	1	1



Şekil 3.7. Poli(4VBS-ko-MOEAMCl-ko-MBAAm) hidrojelinin yapısı

Tablo 3.2’de verilen miktarlara göre 1 M derişimde hidrojellerin sentezi gerçekleştirildi. Hidrojelleri hazırlamak için gerekli miktarlardaki çapraz bağlayıcı, başlatıcı, anyonik ve katyonik monomerler tartım işleminin ardından kapalı tüplere konulup üzerine saf su ilavesi ile 50 mL’ye tamamlandı. Monomerlerin çözünmesi vorteks ile sağlandıktan sonra 55 °C’ye ayarlanmış etüvde 24 saat sürenin sonunda polimerizasyon işlemi gerçekleştirildi. Polimerizasyondan sonra elde edilen hidrojeller reaksiyona girmeyen monomerlerden arındırılmak üzere saf su ile yıkandı ve liyofilizatörde kurutulduktan sonra adsorpsiyon ve şişme çalışmalarında kullanılmak üzere ağzı kapalı tüplerde muhafaza edildi.



Şekil 3.8. Jel yapısında ve Liyofilizasyon işlemi sonrası jellerin görünümü



Şekil 3.9. Çalışmalarda kullanılan tartrazin (TART) ve metilen mavisi (MM)

3.3.2. Deneysel Çalışmalarda Kullanılan Çözeltilerin Hazırlanması

Şişme deneylerinde kullanılan tampon çözeltiler Tablo 3.3'te verilen miktarlar esas alınarak hazırlandı.

Tablo 3.3. Tampon çözeltilerin miktarları

	Reaktif 1	Reaktif 2	Son hacim
pH= 3 tamponu	126,5mL derişik Asetik asit	0,38 g sodyum Asetat	500 mL
pH= 5 tamponu	12,5 mL derişik asetik asit	19,0 g Sodyum Asetat	500 mL
pH=9 tamponu	4,77 g Sodyum tetraborat	Gerekli miktarda 1 M NaOH çözeltisi	1000 mL
SDS(Sentetik deniz suyu)	23479 mg/L NaCl, 4981 mg/L MgCl ₂ , 3917 g Na ₂ SO ₄ , 1102 g CaCl ₂ , 664 g KCl, 192g NaHCO ₃ , 96 g KBr, 26 g H ₃ BO ₃ , 24 g SrCl ₂ , 30 g NaF		1000 mL
KCl (Potasyum klorür)	3,725 g		500 mL

Adsorpsiyon çalışmalarında pH değerleri ayarlamasında 0,1M HCl ve 0,1M NaOHçözeltileri kullanıldı.

3.3.3. Şişme Çalışmaları

Sentezlenen hidrojellerin şişme özelliklerini belirlemek amacıyla SYB-1, SYB-2, SYB-3, SYB-4 ve SYB-5 numunelerinden yaklaşık 0,1 g tartıldı. %0,9'luk sodyum klorür ve %0,9'luk üre, pH 3, pH 5, pH 8, pH 10 tampon çözeltileri ve saf su içerisine alınan numuneler şişmenin dengeye gelmesi için 24 saat bekletildi ve süzülerek tartma işlemi yapıldı. Tartma işlemi sonucunda bulunan değerler aşağıda verilen formülde yerlerine konularak numunelerin şişme değerleri hesaplandı.

Şişme: $(m_{\text{ıslak}}-m_{\text{kuru}}/m_{\text{kuru}})$

$m_{\text{ıslak}}$:Şişmiş jel kütlesi

m_{kuru} :Kuru jel kütlesi

3.3.4. Adsorban Olarak Kullanılan Hidrojellerin Nötral Yük Noktasının Belirlenmesi

Adsorpsiyon işleminin hangi pH aralığında daha etkin gerçekleştiğini öğrenmek için SYB-5 hidrojelinin nötral yük noktasının belirlenmesi gerekmektedir. Bu işlem için 100 mL'lik erlenlere 0,1 M KCl çözeltisinden 30 mL alındı. Bu çözeltilerin pH değerleri (pH_{ilk}) 0,1 M NaOH ve 0,1 M HCl çözeltilerinin eklenmesiyle 2-12 arasında ayarlandı. Her bir erlende bulunan çözeltilerin içerisine 0,15 g adsorban ilave edilerek ağzıları kapatıldı ve karıştırıcı da 24 saat çalkalandı. Çalkalama işleminin bitmesinin ardından pH (pH_{son}) değerleri ölçüldü. pH_{ilk} değerleri x eksenine, $pH_{ilk} - pH_{son}$ değerleri ise y eksenine yazılarak grafik çizildi. Grafiğin x eksenin kestiği nokta adsorbanın nötral yük noktası olarak belirlendi.

3.3.5. Adsorpsiyon Çalışmaları

Adsorpsiyon çalışmaları 150 mL'lik kapaklı şişelerde yapıldı. Metilen mavisi çalışmalarında 0,15g; tartrazin çalışmalarında 0,5g; ikili boya karışımlarında 0,15 g adsorban kullanılarak işlem 25 °C'de gerçekleştirildi. Tüm adsorpsiyon çalışmaları 25-1200 ppm farklı başlangıç boya derişimlerinde gerçekleştirildi. Çalışmalarda karıştırma işlemleri 250 rpm hızda gerçekleştirildi. Karıştırma işlemleri sona erdikten sonra numuneler 10 dakika adsorbanın çökmesi için bekletildi. Her bir numunenin absorbans değeri UV-Visspektrofotometre cihazı ile MM için 665 nm'de, TART için 427 nm'de ölçüldü. Her bir boya için hazırlanan kalibrasyon eğrileri yardımı ile ortamda kalan boya miktarı belirlendikten sonra yüzde boya giderimi ve adsorplanan boya miktarı (Q) aşağıda verilen eşitlikler yardımıyla hesaplandı.

$$BG(\%) = ((C_0 - C_t) / C_0) \times 100 \quad Q = (C_0 - C_t) \times V / m$$

Burada;

BG(%): Boya giderim yüzdesi

Q: Bir gram adsorban tarafından adsorplanan boya miktarı (mg/g)

C₀: Boya çözeltisinin başlangıç konsantrasyonu (ppm)

C_t: Boya çözeltisinin denge konsantrasyonu (ppm)

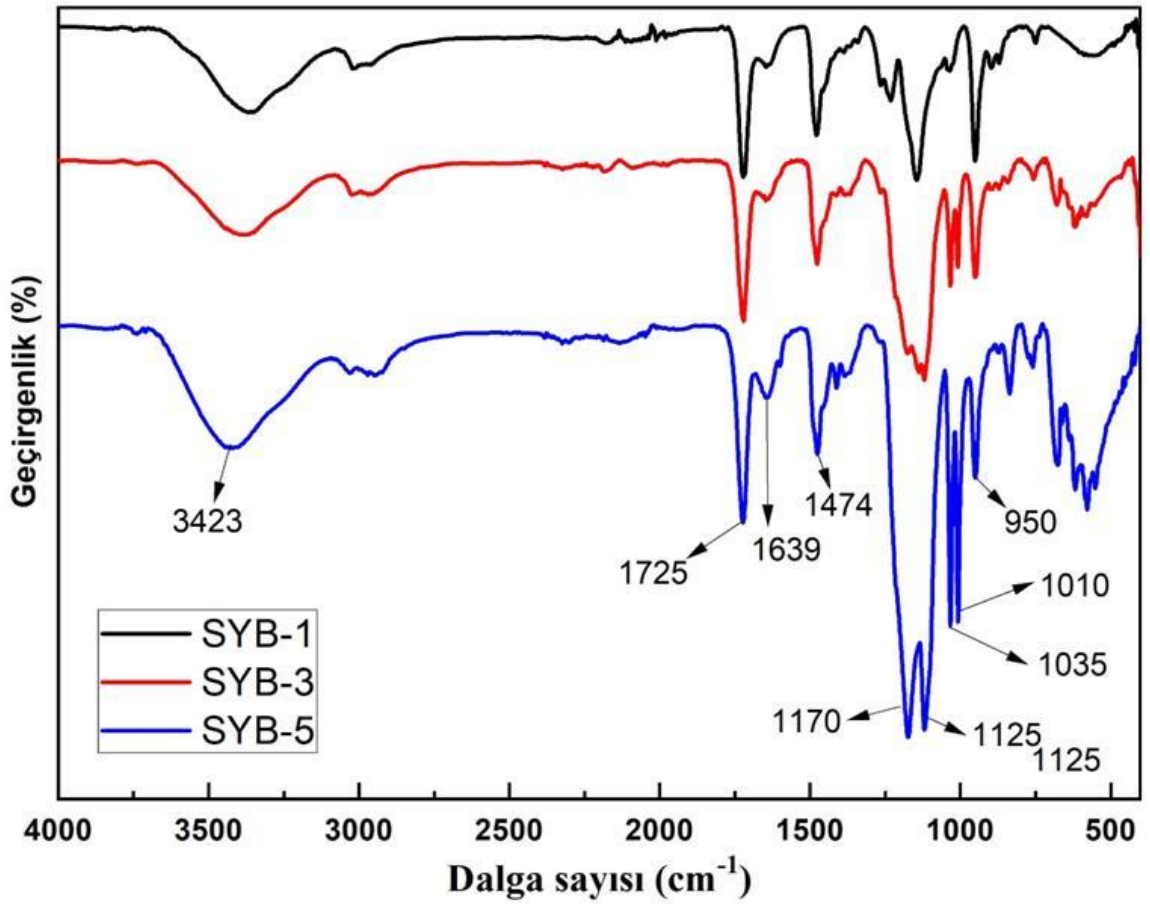
V: Boya çözeltisinin hacmi (L) **m:** Adsorban miktarı (g)

4. BULGULAR VE TARTIŞMA

Bu bölümünde sulu ortamlardan boyar maddelerin uzaklaştırılması için kullanılacak hidrojellerin sentezlenmesi ve karakterizasyon çalışmaları ile ilgili olarak yapılan deneysel çalışmaların sonuçları verildi ve sonuçlar üzerinde gerekli tartışmalar yapıldı.

4.1. Karakterizasyon Çalışmaları

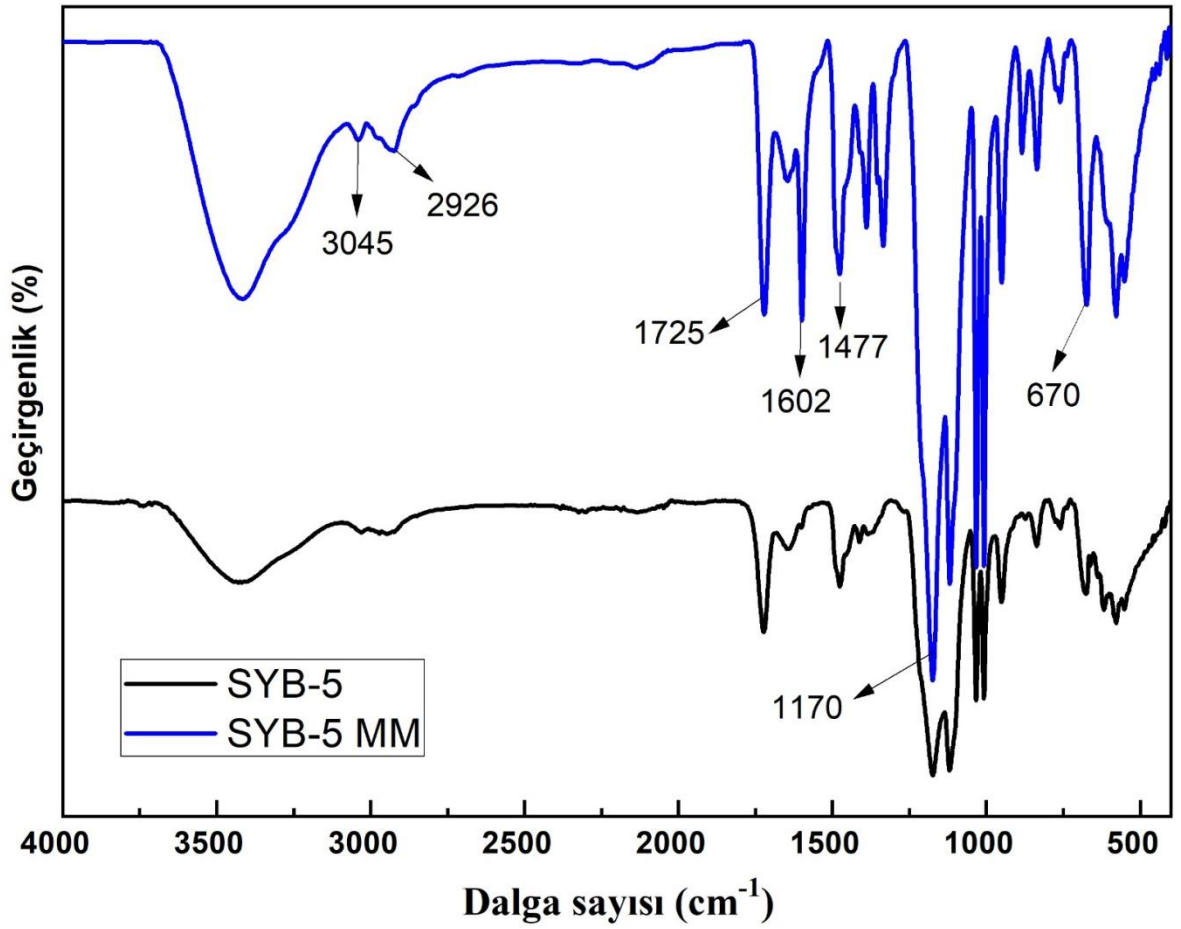
4.1.1. FTIR Çalışmaları



Şekil 4.1. SYB-1, SYB-3 ve SYB-5 hidrojellerinin FTIR Spektrum görüntüleri

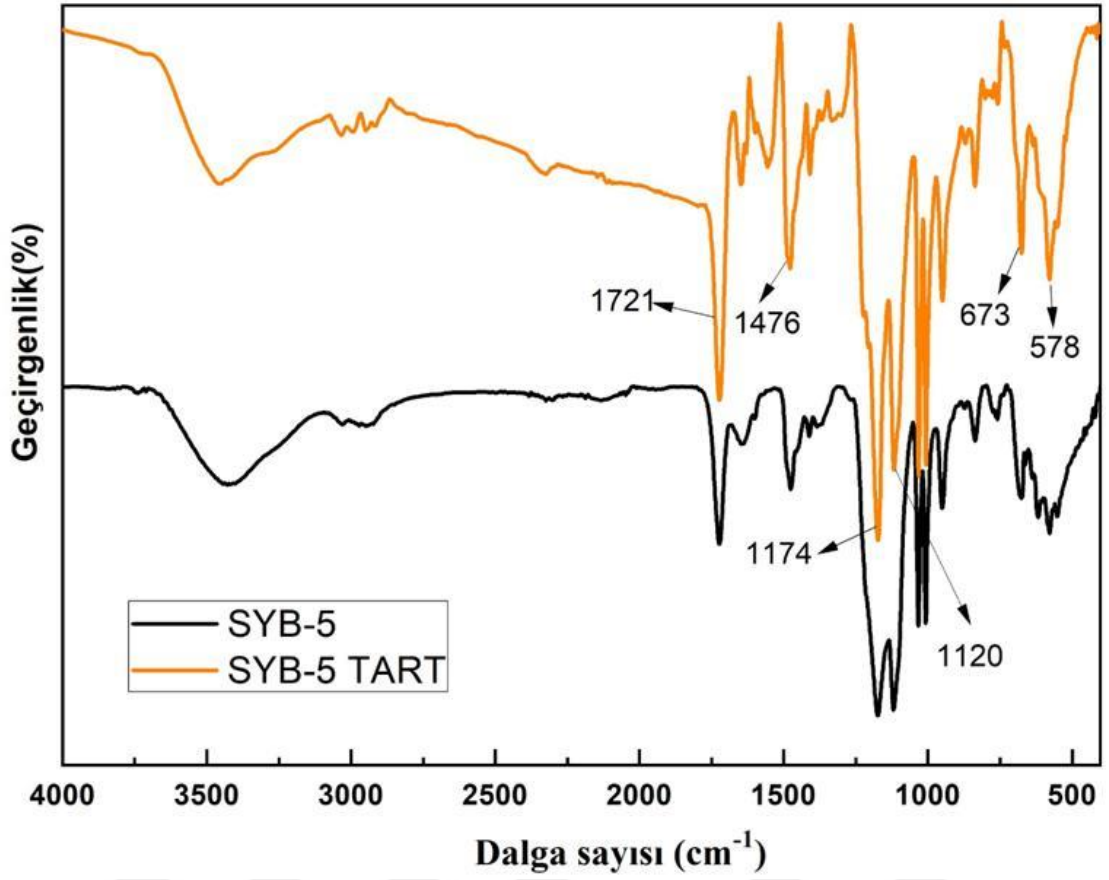
Şekil 4.1’de SYB-1, SYB-3, SYB-5 hidrojellerinin FTIR spektrumları verildi. Şekil 4.1 incelendiğinde, sentezde kullanılan monomerler olan MOEAMCl ile 4VBS bileşiklerinin karakteristik absorpsiyon bandları, hidrojeldeki monomer miktarlarına bağlı olarak aynı dalga sayısında veya hafif kaymış olarak gözlemlendi. SYB-1, SYB-3, SYB-5 hidrojellerinin üçünde de 3100-3700 cm⁻¹ arasında gözlenen bandlar -OH gerilmesine ait

olduğu düşünülmektedir. Bu durum hidrojellerin bir miktar daha nem içerdiğini göstermektedir. SYB-3 ve SYB-5 hidrojellerinde 4VBS monomerinden gelen sülfon gruplarına ($1010\text{-}1035\text{ cm}^{-1}$ ve $1125\text{-}1170\text{ cm}^{-1}$) ait bandlar gözlemlendi ve artan 4VBS monomer oranı ile bandların şiddetinin arttığı görülmektedir (Müller vd., 2012; Hassan vd., 2019). Ayrıca, SYB-1, SYB-3, SYB-5 hidrojellerinde 1725 cm^{-1} 'de MOEAMCl monomerinden gelen ester -C=O grubuna ait gerilme bandı gözlemlendi. Yine MOEAMCl monomerinde yer alan kuarterner amonyum grubuna ait olan 1639 cm^{-1} 'deki band her üç hidrojelin spektrumunda da gözlenmiştir. Azalan MOEAMCl monomer miktarı ile birlikte 950 cm^{-1} 'de yer alan C-N gerilmesine ait bandın şiddetinde azalma görülmektedir. 1474 cm^{-1} bölgesinde monomer ünitelerindeki -CH_2 ve -CH gruplarının bükülme, -CH_3 gruplarının ise deformasyon titreşimlerinden, 1100 cm^{-1} 'de -C-O bağı gerilmelerinden, yaygın geniş, keskin şiddetli veya yaygın küçük omuzlar halinde girişimli olarak ve çeşitli şiddetlerde absorpsiyon bandları bulunmaktadır (Demirci, 2022; Duykop, 2020; Özyürek, 2003). Bu sonuçlardan, hidrojellerin başarı ile sentezlenmiş olduğu değerlendirilmiştir.



Şekil 4.2. MM yüklü SYB-5 hidrojinin FTIR analiz sonuçları

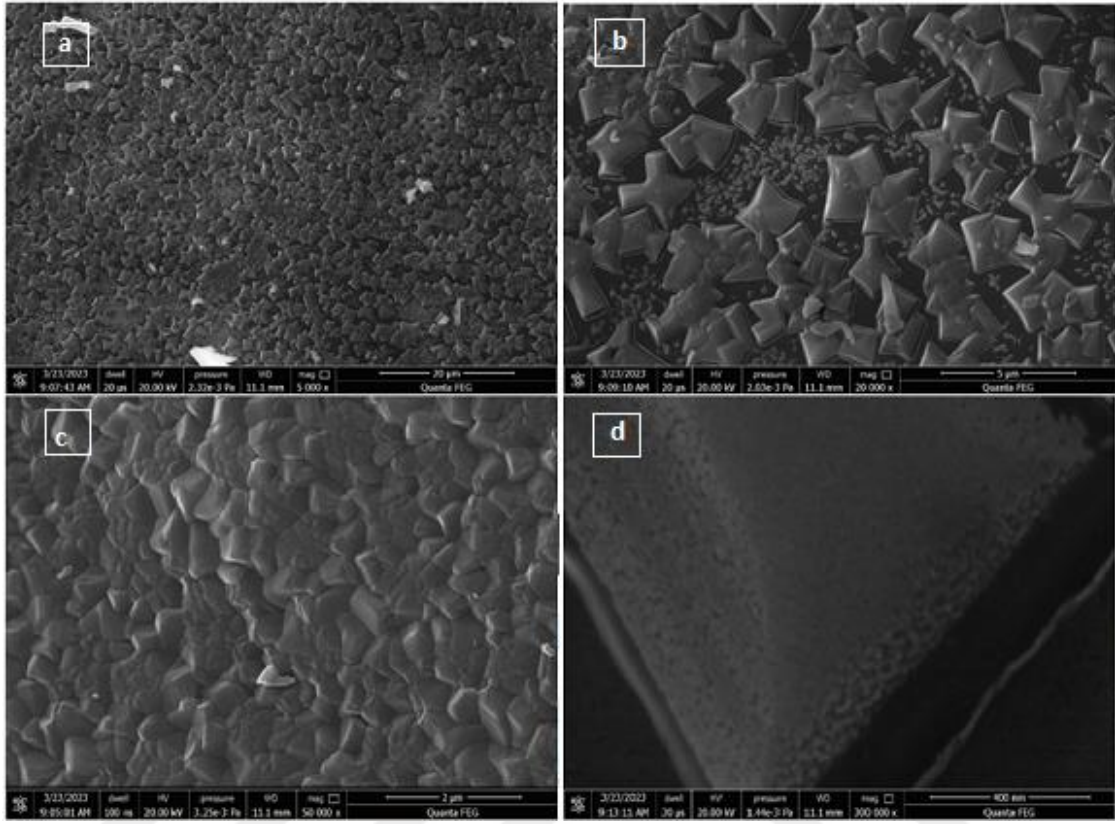
SYB-5 hidrojinin metilen mavisini adsorpladığını doğrulamak için, metilen mavisi tutmuş SYB-5 hidrojinin FT-IR spektrumu SYB-5 hidrojinin FT-IR spektrumu ile karşılaştırılmalı olarak Şekil 4.2’de verilmiştir. FT-IR spektrumlarından açıkça görüldüğü gibi adsorpsiyon sonrası spektrumlar farklılıklar ihtiva etmektedir. Özellikle metilen mavisinin (MM) yapısında yer alan aromatik halkaya ait 3045 cm^{-1} , $1600\text{--}1650\text{ cm}^{-1}$ ve 1170 cm^{-1} ’de ($\text{C}=\text{C}$ aromatik halka) yer alan yarıbandları içermesinden dolayı ve $-\text{CH}_2$ gerilmelerine karşılık gelen 2926 cm^{-1} ve $1445\text{--}1500\text{ cm}^{-1}$ ’de bandların şiddetlerin artması nedeniyle MM’nin SYB-5 üzerinde adsorbe olduğu aşıkardır (Prahdan vd., 2017).



Şekil 4.3.TART yüklü SYB-5 hidrojinin FT-IR analiz sonuçları

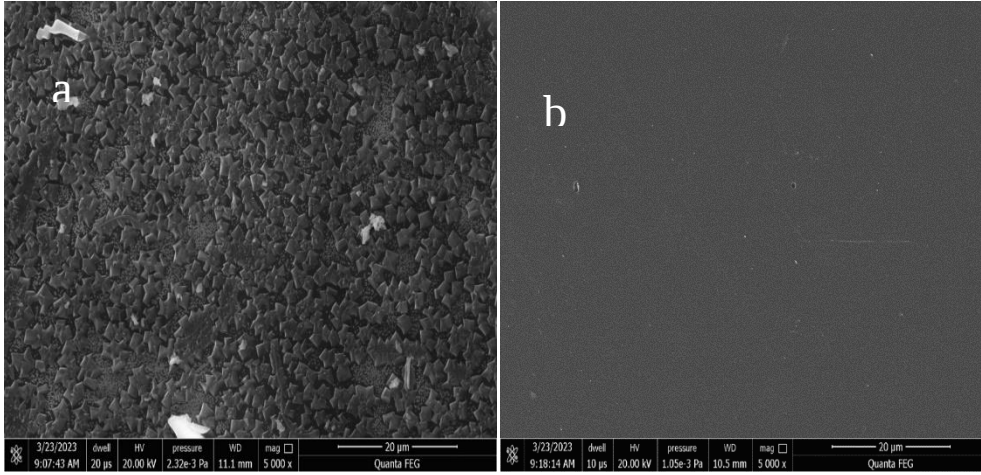
Tartrazin tutmuş SYB-5 hidrojinin FT-IR spektrumları SYB-5 hidrojinin FT-IR spektrumu ile karşılaştırılmalı olarak Şekil 4.3'te verilmiştir. Şekil incelendiğinde bantların konumlarında herhangi bir değişiklik olmadığı bantların şiddetlerinde ve keskinliklerinde artış olduğu gözlemlendi. Adsorpsiyon sonrası boyar maddelerde var olan sülfonil gruplarına ait olan bantların (Chowdhury & Saha, 2016; Leulesco vd,2018) ve 2000-3500 cm⁻¹'de görülen yayvanlaşıp sivrileşen piklerin varlığı, SEM görüntülerinde yüzeyin kaplanması, FT-IR spekturumundaki bantlarda keskinleşmenin ve şiddetlerin artması TART adsorpsiyonunun gerçekleşmiş olarak değerlendirilmektedir (Karanfil, 2021).

4.1.2. SEM Sonuçları

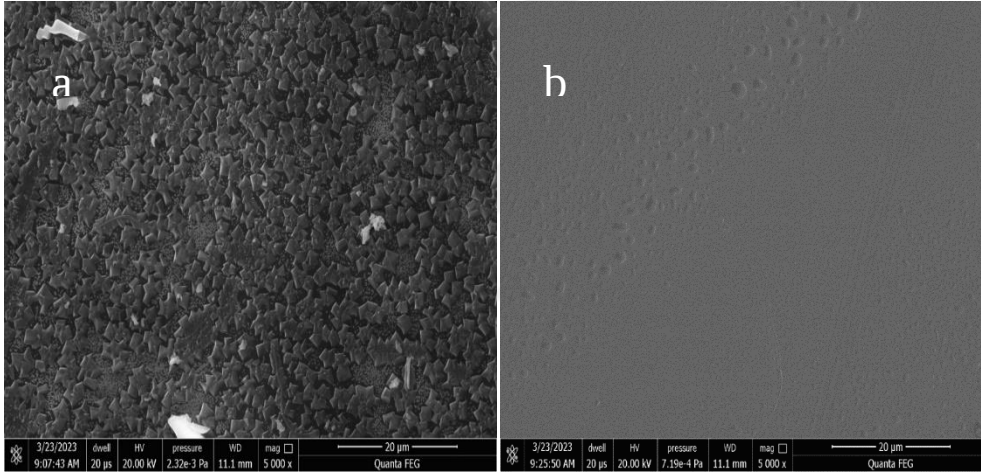


Şekil 4.4.SYB-5 hidrojelinin a) x5000 SEM görüntüsü b) x20000 SEM görüntüsü c) x50000 SEM görüntüsü d) x300000 SEM görüntüsü

SYB-5 hidrojellerine ait farklı büyütme oranlarındaki SEM görüntüleri Şekil 4.4'te verildi. SEM görüntüleri incelendiğinde hidrojel yüzeyinin belirli bir geometrik şekillere sahip taneciklerin yinelenmesi ile meydana geldiği ve pürüzlü bir yapıya sahip olduğu görülmektedir. Yine Şekil 4.4'te verilen son kesit incelendiğinde, kesitin gözenekli yapıda olduğu görülmektedir.



Şekil 4.5.SYB-5hidrojeline MM yüklemmeden önce (a) ve MM yüklemesiyle (b) elde edilen SEM görüntüsü (x5000)



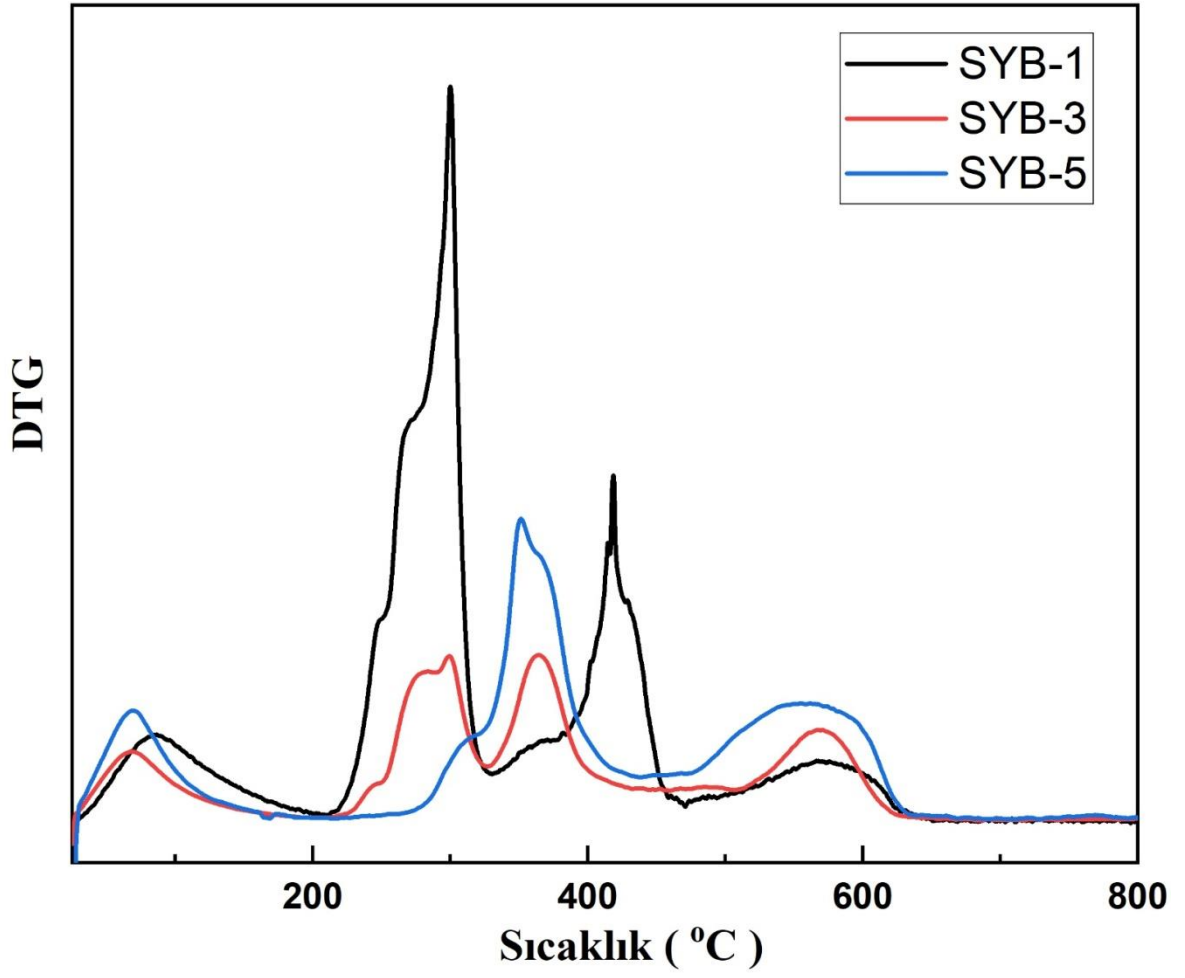
Şekil 4.6. SYB-5 hidrojeline TART yüklenmeden önce (a) ve TART yüklemesiyle (b) elde edilen SEM görüntüsü (x5000)

SYB-5 hidrojeline MM ve TART yüklemesi yapılmasıyla elde edilen SEM görüntüleri Şekil 4.5 ve Şekil 4.6’da verildi. Şekillerden görüldüğü gibi SYB-5 hidrojelinin yüzeyinin tamamen kaplandığı ve yüzeyde yer alan şekillerin yok olduğu, MM ve TART yüklenmesiyle doldurularak kapandığı ve yapının pürüzsüzleştiği görüldü (Coşkun vd., 2021).

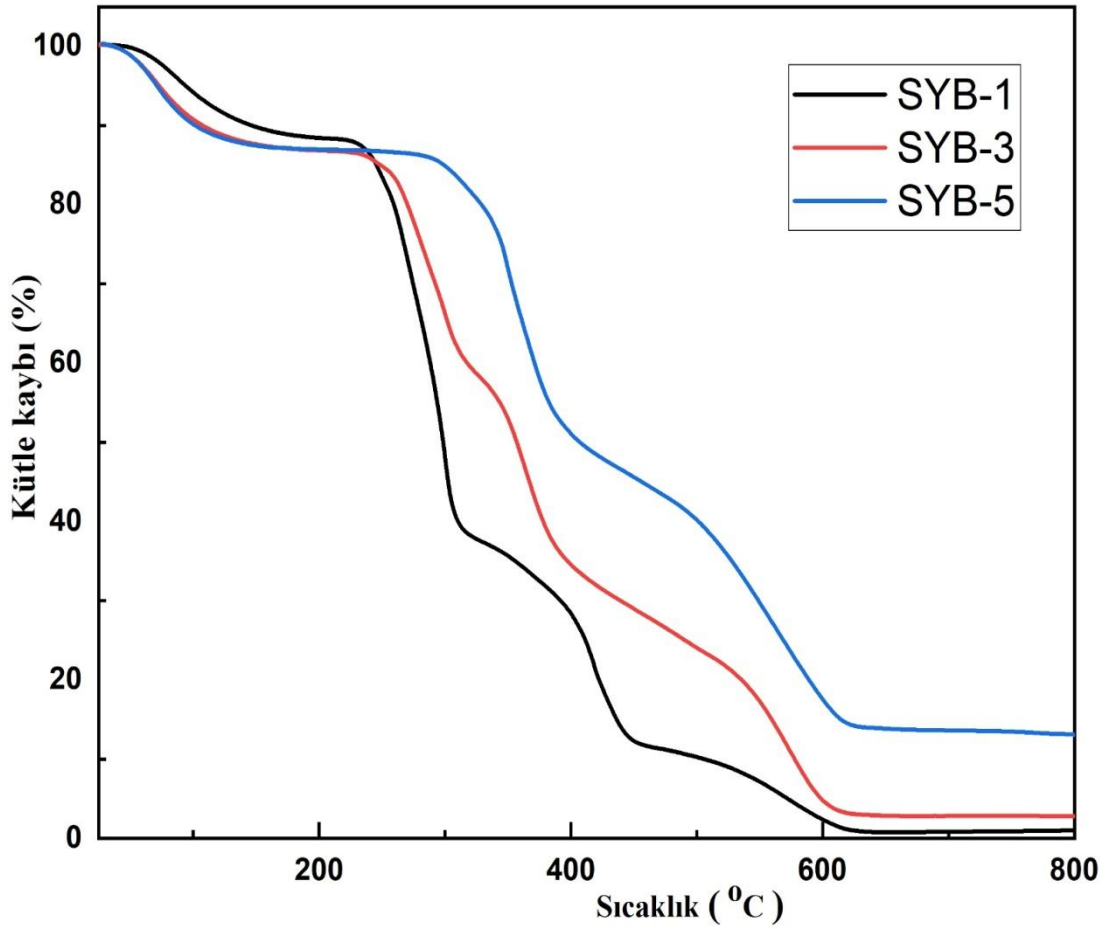
4.1.3. TGA-DTG Sonuçları

SYB-1, SYB-3 ve SYB-5 hidrojellerinin termal kararlılığını belirlemek için alınan örnekler yüksek saflıkta azot atmosferi altında 800°C değerine kadar 10°C/dak ısıtma hızındaisıtıldı.

Sıcaklık artışına bağılı olarak elde edilen termogramlar Şekil 4.7 ve Şekil 4.8’ de verildi.



Şekil 4.7.SYB-1, SYB-3, SYB-5 hidrojenlerinin DTG grafiği

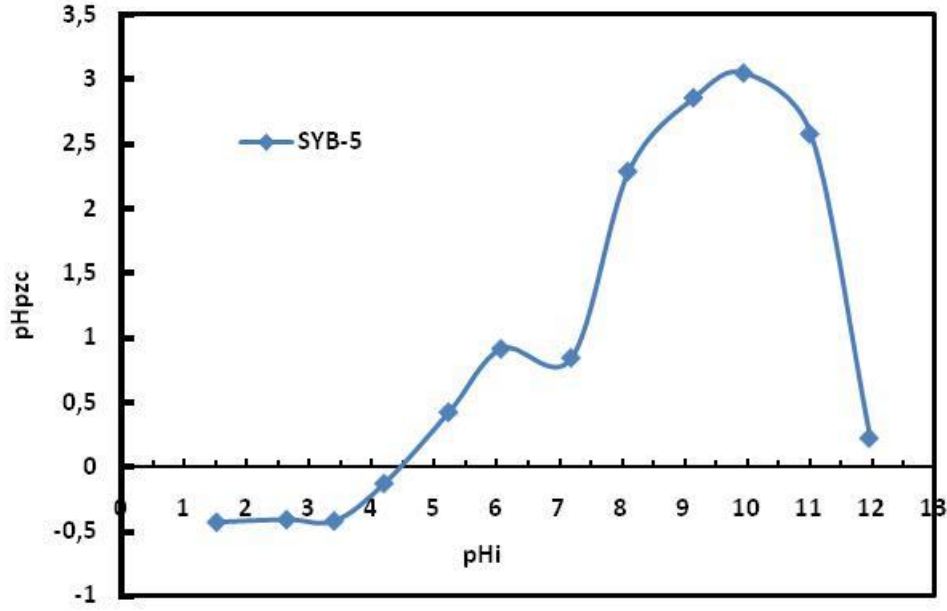


Şekil 4.8. SYB-1, SYB-3, SYB-5 hidrojellerinin TGA grafiği

Her üç hidrojelde de 4 aşamalı bozunma meydana geldiği Şekil 4.8 incelendiğinde görülmektedir. Kütle kaybının en fazla olduğu hidrojel SYB-1 olduğu belirlenmiştir ve neredeyse tamamen termal bozunmaya uğradığı görülmektedir. Hidrojelin yapısındaki MOEAMClmonomer miktarı arttıkça kütle kaybının arttığı ve 4VBS monomerinin termal kararlılığı artırdığı belirlendi. Grafiğin başlangıç kısmından yaklaşık 250 °C'ye kadar devam eden kütle kaybının, hidrojellerin içeriğindeki suyun dehidrasyonundan kaynaklandığı düşünüldü. İkinci kısımdaki, 250 °C ile 400 °C arasındaki kütle kaybının hidrojellerin içeriğinde bulunan yan grupların parçalanması, 400 °C'nin üzerinde görülen kütle kaybının ise polimer zincirindeki ve matrislerdeki ana zincirlerin parçalanması sonucu olduğu düşünülmektedir (Demirci vd., 2022; Hegazy vd., 2004).

4.1.4. Adsorbanın Nötral Yük Noktasının (pH_{pzc}) Belirlenmesi

Adsorbanın verimli şekilde çalıştığı pH aralığını tespit etmek için, adsorbanın nötral yük noktası belirlendi. Nötral yük noktasını gösteren grafik Şekil 4.9’da verilmiştir.

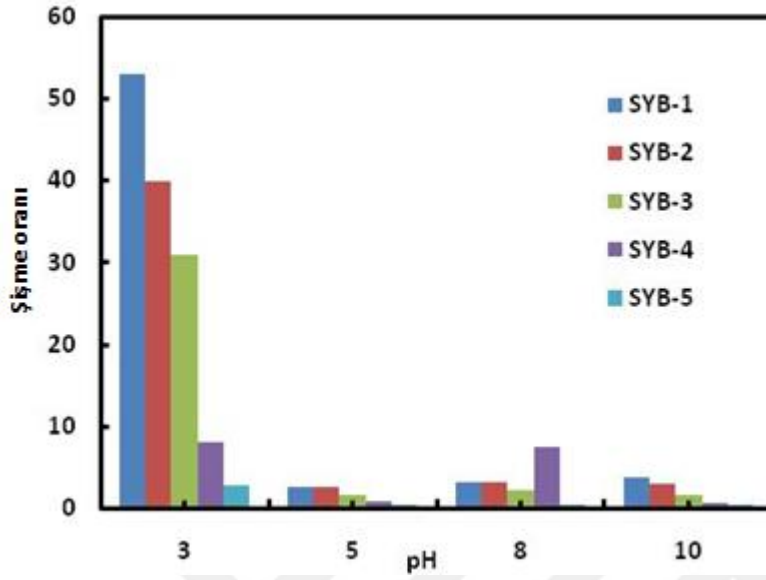


Şekil 4.9. SYB-5 hidrojelinin nötral yük noktası grafiği

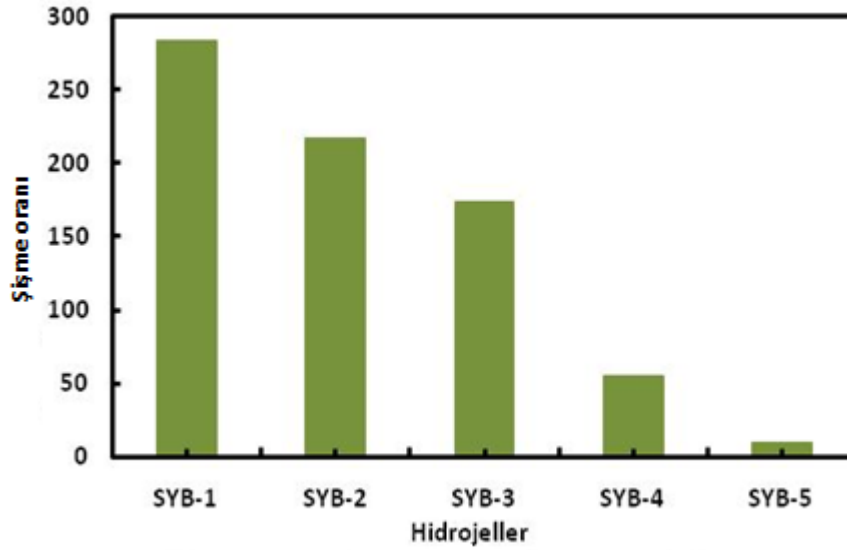
Grafik incelendiğinde SYB-5 hidrojelinin nötral yük noktasının 4,5 olduğu görülmektedir. Bu durum ortam pH'nın 4,5'ten küçük olması durumunda hidrojel yüzeyinin pozitif olacağını ifade etmektedir. Yani ortam pH'nın 4,5'ten büyük olması durumunda adsorban yüzeyinin negatif olacağını ve yüzeye pozitif iyonların tutunabileceğini gösterir. Ortam pH'nın 4,5'ten küçük olması durumunda ise adsorban yüzeyinin protonlanacağını ve negatif iyonların tutunabileceği adsorpsiyon bölgelerinin oluşacağını ifade eder. Grafikten anlaşılacağı üzere adsorbanın asidik yüzeye sahip olduğu ve ortama proton verdiği gözlemlendi (Karanfil, 2021).

4.2. Hidrojellerin Şişme Çalışmaları

4.2.1. Şişmeye pH Etkisi



Şekil 4.10. Hidrojellerin şişme değerlerinin pH ile değişimi (m=0,1 g, t=24 s, T=25 °C)

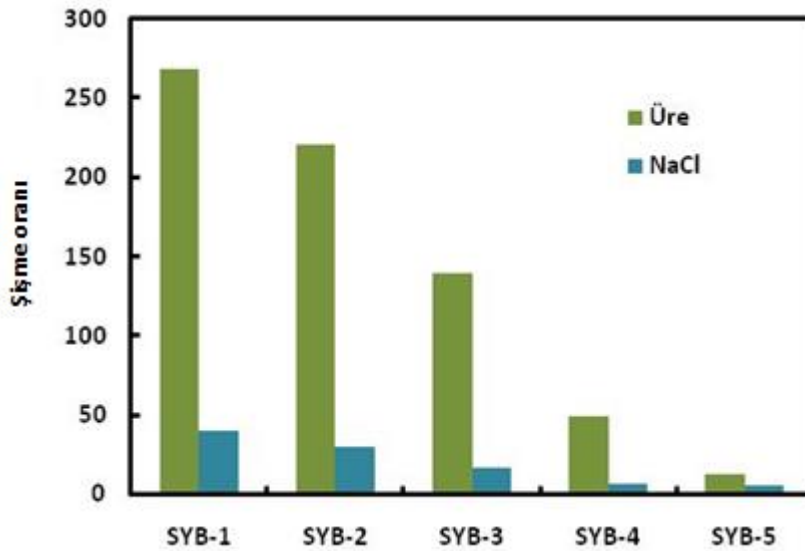


Şekil 4.11. Hidrojellerin şişme değerlerinin saf sudaki değişimi (m=0,1 g, t=24 s, T=25 °C)

pH değişimine bağlı olarak tüm hidrojellerin şişme değerleri Şekil 4.10'da verildi. Grafik incelendiğinde, hidrojeller pH3'te en yüksek şişme değerinde iken, pH değerlerinin artması ile şişme değerleri önemli miktarda tüm hidrojeller için azaldı. Bu durum pH 3'te tüm hidrojellerin en fazla iyonlaşmaya sahip olması ile açıklanabilir.

Şekil 4.11 incelendiğinde saf su içerisindeki şişme değerlerinin SYB-1>SYB-2>SYB-3>SYB-4>SYB-5 sırasında azaldığı, sadece katyonik monomer içeren SYB-1 hidrojelinin saf su içerisinde en fazla şişme değerine sahip olduğu, 50:50 oranında anyonik ve katyonik monomer içeren SYB-5 hidrojelinin diğerlerine göre az şişme sergilemiştir. SYB-1 hidrojelini daima su içerisinde pozitif yüklü olarak yer alabildiğinden en fazla şişmeyi göstermektedir. Diğer hidrojellerdeki şişmenin az olması ise, hidrojellerdeki monomer birimlerinin pozitif ve negatif yüklerinin elektrostatik çekiminden kaynaklanabileceği düşünülmektedir (Deen vd.,2016; Demirci vd., 2022).

4.2.2. Şişmeye Elektrolit Etkisi



Şekil 4.12. Hidrojellerin şişme değerlerine elektrolit etkisi (m=0,1 g, t=24 s, T=25 °C)

Şekil 4.12 incelendiğinde SYB-1, SYB-2, SYB-3, SYB-4 hidrojellerinin şişme kapasitelerinin elektrolit türünden oldukça fazla etkilendiği, SYB-5 hidrojelinin diğer hidrojellere göre daha fazla amfoterik yapıya sahip olmasından dolayı daha az etkilendiği görülmektedir. Genellikle, tuz çözeltilerindeki jel ve sulu fazlar arasındaki ozmotik basınç azalması sonucu şişme miktarı azalır. Şişmenin etkili olarak azalmasının ortama eklenen NaCl tuzuna bağlı olduğu görülmektedir. Sulu ortamda elektrolit bulunması, hidrojel ağına karşıt yüklü iyonlar, hidrojel ağı ve çözelti arasındaki ozmotik basıncın azalmasına sebep olur ve bundan dolayı hidrojellerin denge şişme oranları azalır. Ayrıca çözeltide fazla miktarda katyonun bulunması polimer zincirindeki anyonik gruplar arasındaki

itmeleri azaltarak polimer zincirlerinin birbirine yaklařmalarına sebep olur. Bu da aslında bir nevi apraz baēlayıcı řeklinde grev yapması olarak yorumlanabilir. Tm bu etkenlere baēlı olarak denge řiřme oranlarında azalma meydana gelir (Kařgz vd., 2005; Xie vd.,2009).

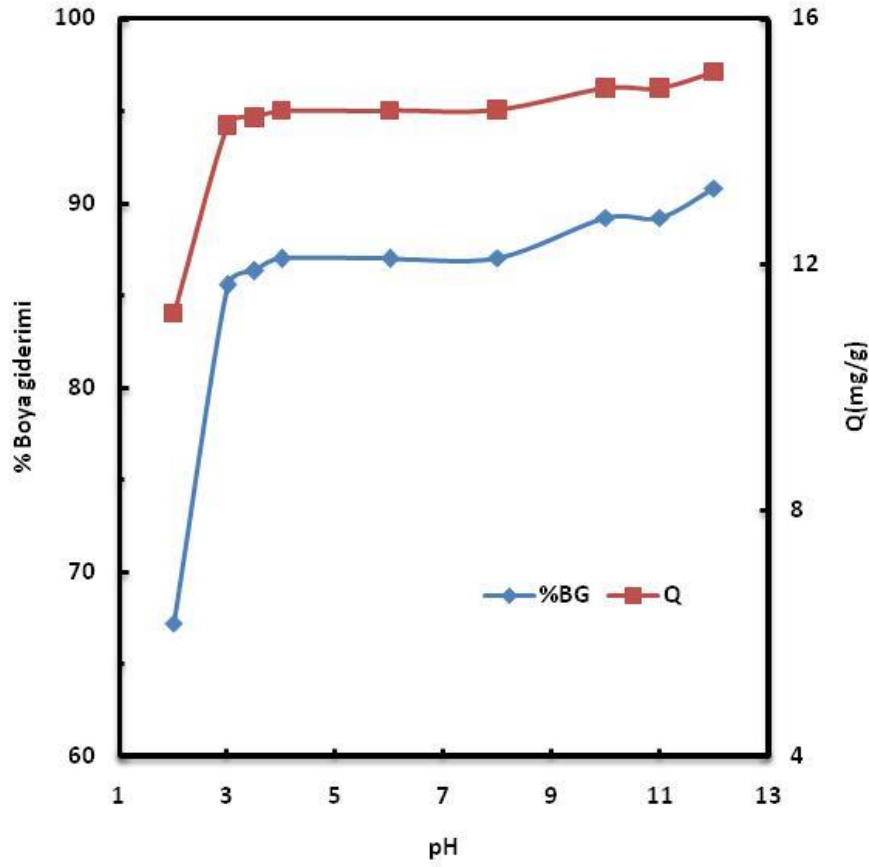
4.3. Adsorpsiyon alıřmaları

4.3.1. Metilen mavisi (MM) ve Tartrazin (TART) iin Adsorpsiyon alıřmaları

4.3.1.1. Adsorpsiyona pH etkisi

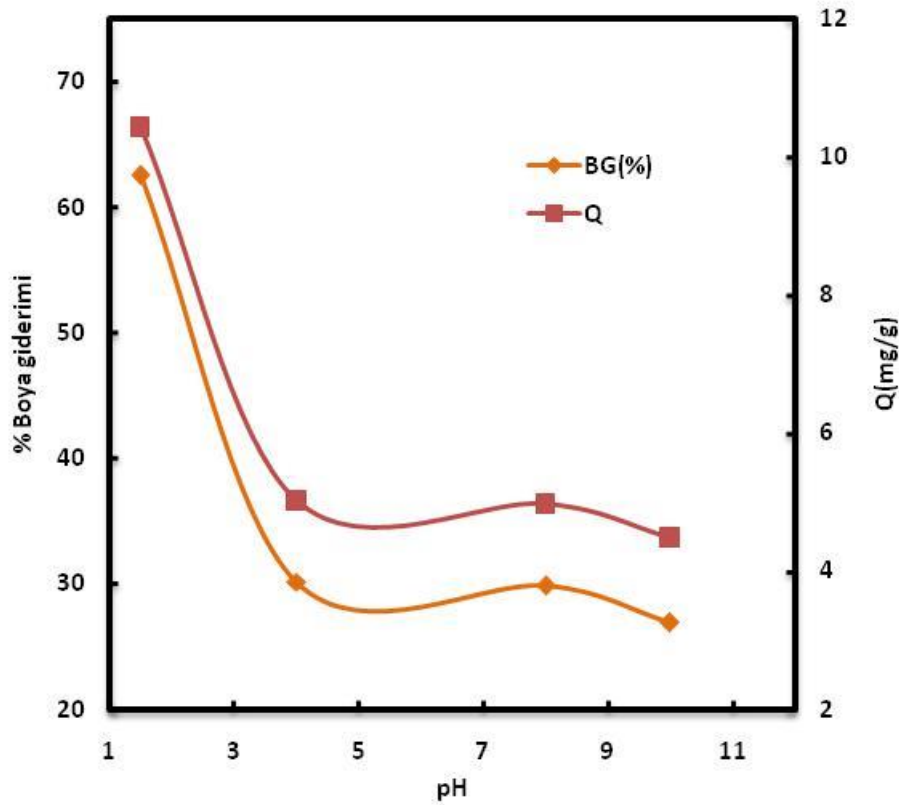
Amfoterik hidrojel sentezlendiēinden SYB-1, SYB-2, SYB-3, SYB-4 ve SYB-5 hidrojellerinden 50:50 katyonik veanyonikmonomer kullanılarak hazırlanan SYB-5 hidrojeli ile bundan sonraki alıřmalara devam edildi.

MM ve TART adsorpsiyonu iin hazırlanan 50ppm’lik zeltiden 50ml hacminde alınan rneklerin pH’ları MM iin 2-12 arasında, TART iin 1,5-10 arasında olacak řekilde ayarlandı. SYB-5 hidrojelinden 0,1g zelti ierisine eklendikten sonra 5 saat boyunca 250 rpm’de ve 25 ’de alkalanarak yapılan alıřmaların sonuları řekil 4.13 ve řekil 4.14’te verildi.



Şekil 4.13.SYB-5 Hidrojelinin MM adsorpsiyonunda pH değişiminin etkisi ($C_{MM}=50\text{ppm}$, $T=25^\circ\text{C}$, $V=50\text{ mL}$, $m=0,1\text{g}$, $t=5\text{s}$)

Şekil 4.13 incelendiğinde pH 2’de SYB-5 hidrojelinin MM’de boya giderim oranı diğer pH değerlerine göre en az olarak belirlendi. pH değeri arttıkça boya giderim oranı artış gösterdi. Bu çalışma sonucunda SYB-5 hidrojelininMM’de en iyi çalıştığı pH değeri 10 olarak tespit edildi. MM ile yapılan diğer çalışmalarda ortam pH’sı 10 olarak ayarlandı.

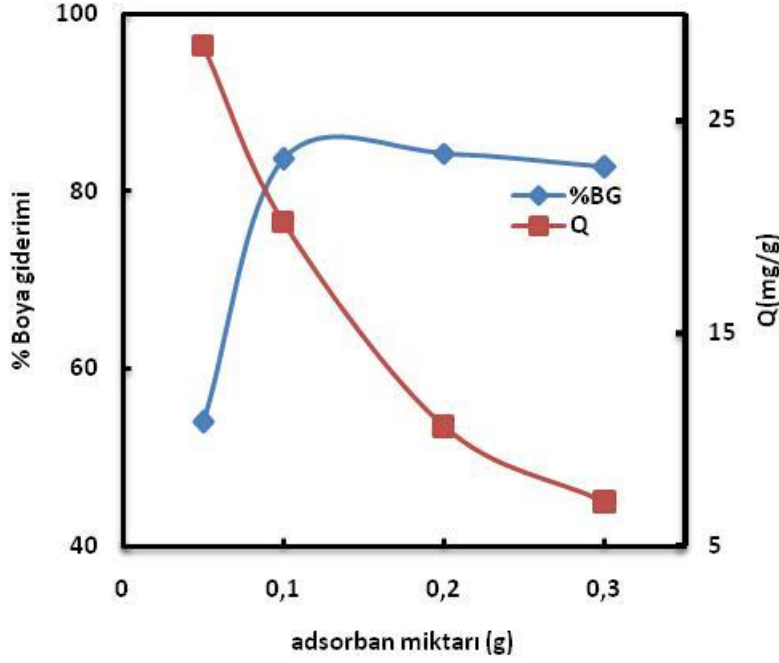


Şekil 4.14. SYB-5 Hidrojelinin TART adsorpsiyonunda pH değişiminin etkisi ($C_{TART}=50\text{ppm}$, $T=25^\circ\text{C}$, $V=50\text{ mL}$, $m=0,1\text{g}$, $t=5\text{s}$)

Şekil 4.14 incelendiğinde pH 1,5'ta SYB-5 hidrojelinin TART boya giderim oranı diğer pH değerlerine göre en fazladır. SYB-5 hidrojelinin nötral yük noktasına (pH_{pzc}) bakıldığında 4,5 olduğu ve bu değer altında adsorpsiyonun yüksek giderimli olması beklenir. Yapılan TART adsorpsiyonunda da benzer şekilde pH 4,5'in altında maksimum boya giderimi gözlemlendi. Bu çalışma sonucunda SYB-5 hidrojelinin TART'ın en iyi çalıştığı pH değeri 1,5 olarak tespit edildi. TART ile yapılan diğer çalışmalarda ortam pH'sı 1,5 olarak ayarlandı.

4.3.1.2. Adsorpsiyona Adsorban Miktarının Etkisi

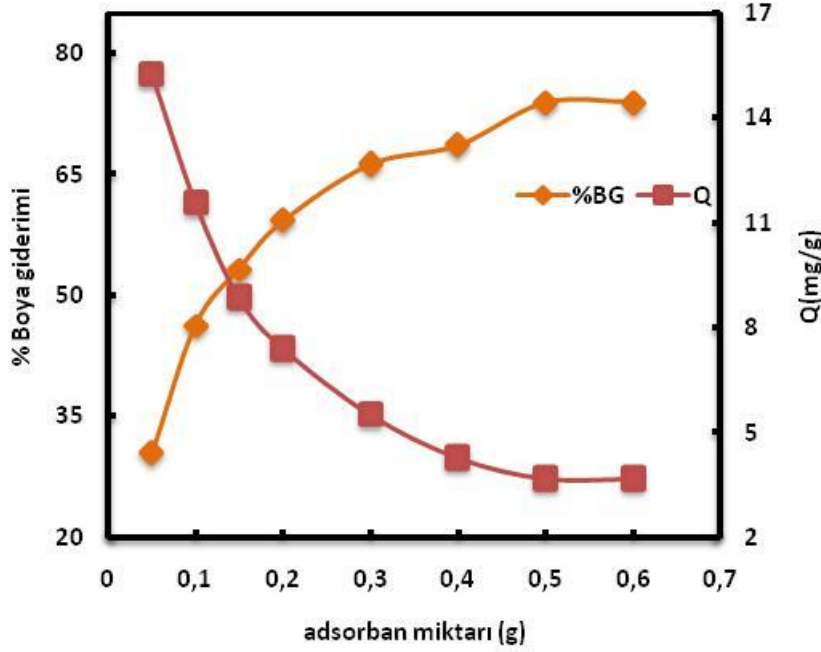
Metilen mavisinden (MM) 50ppm'lik çözelti hazırlanarak adsorbsiyon işlemine adsorban miktarının etkisini incelemek için 50ml alınan çözeltiye 0,05- 0,1- 0,2 ve 0,3gram olacak şekilde SYB-5 hidrojelinden eklenerek pH 10'a ayarlanan ortamda 250rpm'de 5 saat çalkalandı. Elde edilen sonuçlar Şekil 4.15'de verildi.



Şekil 4.15. SYB-5 Hidrojelinin MM adsorpsiyonuna adsorban miktarının değişiminin etkisi ($C_{MM}=50\text{ppm}$, $\text{pH}=10$, $V=50\text{mL}$, $t=5\text{s}$)

Şekil 4.15 incelendiğinde belirli bir değere kadar artan adsorban miktarı ile boya giderim miktarının arttığı ancak belli bir değerden sonra bir miktar azaldığı gözlemlendi. Adsorban miktarının artması ile birim adsorban başına aktif grup sayısı artmakta olup, bir değerden sonra azalması ise belli bir adsorban miktarından sonra aktif fonksiyonel grupların kendi aralarındaki etkileşim sonucu birim adsorban başına düşen aktif grup sayısındaki azalma ile açıklanabilir (Duykop, 2020). Buna göre en yüksek yüzde boya gideriminin adsorban miktarının 0,15g olduğu durumda elde edildi. Metilen mavisi (MM) için yapılan çalışmalarda adsorban miktarı 0,15 g olarak alındı.

Tartrazinden (TART) 50 ppm'lik çözelti hazırlanarak adsorbsiyon işlemine adsorban miktarının etkisini incelemek için 50ml alınan çözeltiye 0,05- 0,1- 0,2 – 0,3- 0,4- 0,5 ve 0,6 gram olacak şekilde SYB-5 hidrojelinden eklenerek pH 1,5'ta ayarlanan ortamda 250 rpm'de 5 saat çalkalandı. Elde edilen sonuçlar Şekil 4.16'da verildi.

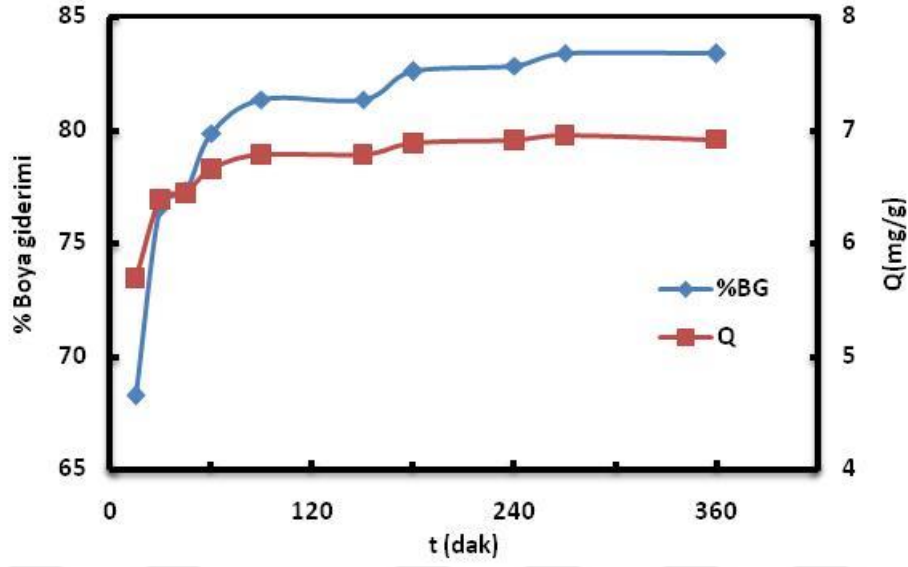


Şekil 4.16. SYB-5 Hidrojelinin Tartrazin adsorpsiyonuna adsorban miktarının değişiminin etkisi ($C_T=50$ ppm, pH=1,5, V=50mL, t=5s)

Şekil 4.16’da görüldüğü gibi adsorban miktarı ile boya giderim miktarının arttığı belli bir değerden sonra sabit kaldığı gözlemlendi. Bundan sonraki TART çalışmalarında adsorban miktarı 0,5 g olarak alındı.

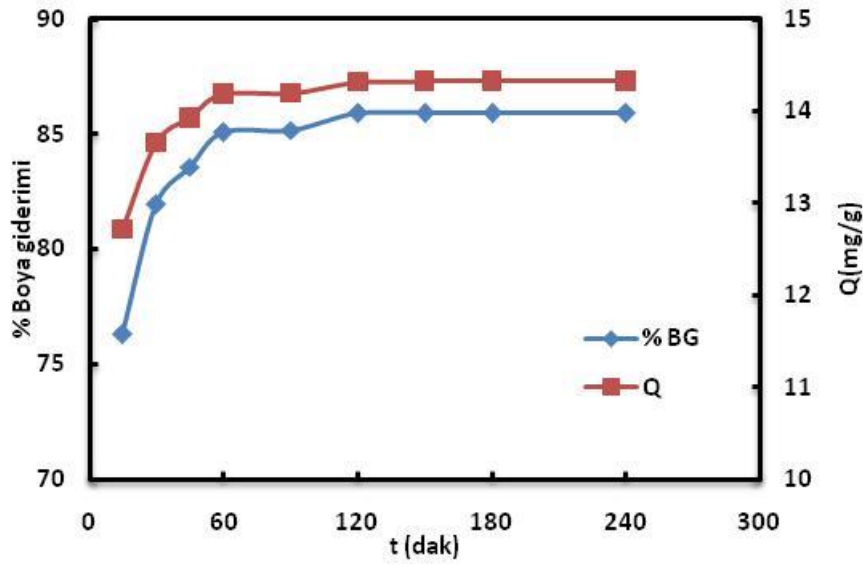
4.3.1.3. Adsorpsiyona Sürenin Etkisi

SYB-5 hidrojelinin Metilen mavisi (MM) ve Tartrazin (TART) adsorpsiyonunda sürenin etkisini belirlemek için Metilen mavisinden 25, 50 ve 100 ppm’lik boya derişimlerinde, Tartrazin için 25 ve 50 ppm’lik boya derişimlerinde; Metilen mavisi için pH 10, Tartrazin için pH 1,5’te çalışıldı. Elde edilen sonuçlar Şekil 4.17, Şekil 4.18, Şekil 4.19, Şekil 4.20 ve Şekil 4.21’de verildi.



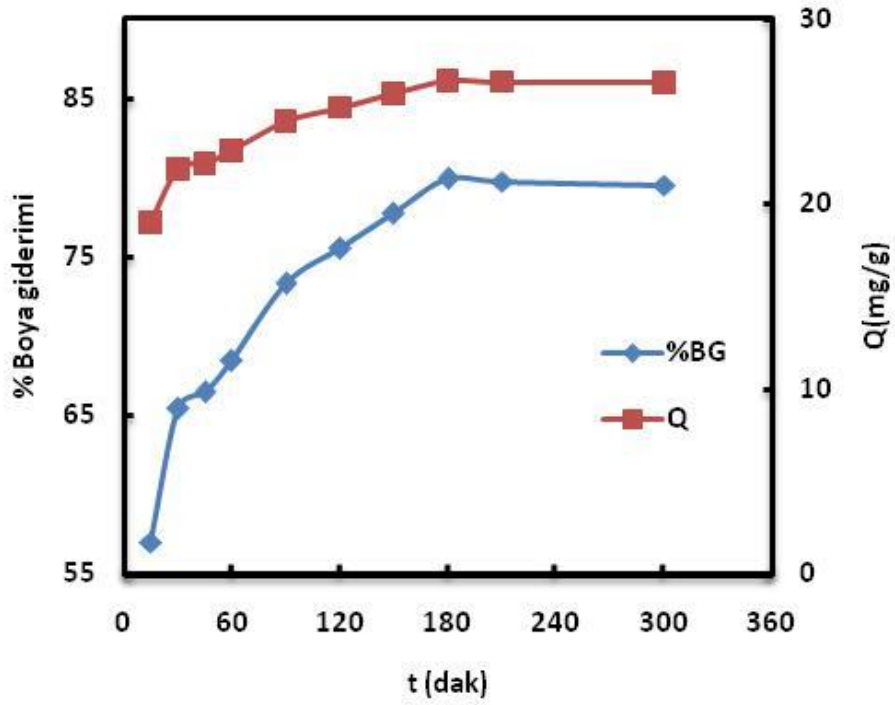
Şekil 4.17. SYB-5 Hidrojelinin MM adsorpsiyonunda sürenin etkisi ($C_{MM}=25\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $m=0,15\text{g}$, $T=25^\circ\text{C}$, $\text{pH}=10$)

Şekil 4.17 incelendiğinde 25 ppm'lik Metilen mavisi adsorpsiyonunda boya giderim miktarının zamana bağlı olarak arttığı belirli bir süre sonunda ise artmanın sabitlendiği gözlemlendi.



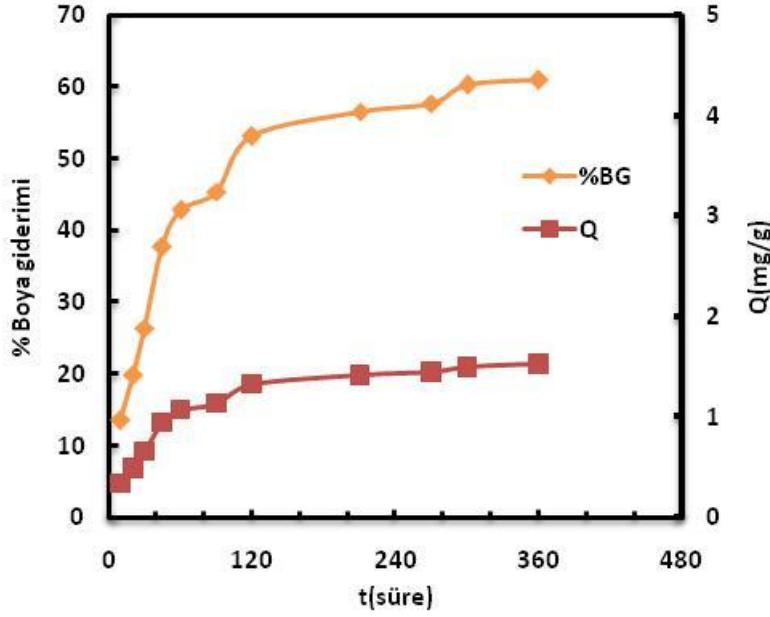
Şekil 4.18. SYB-5 HidrojelininMMadsorpsiyonunda sürenin etkisi ($C_{MM}=50\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $m=0,15\text{g}$, $T=25^\circ\text{C}$, $\text{pH}=10$)

Şekil 4.18’den görüldüğü üzere 50 ppm’lik MM adsorpsiyonunda boya giderim miktarının zamana bağlı olarak genellikle arttığı belli bir süre sonunda ise artmanın sabitlendiği gözlemlendi.



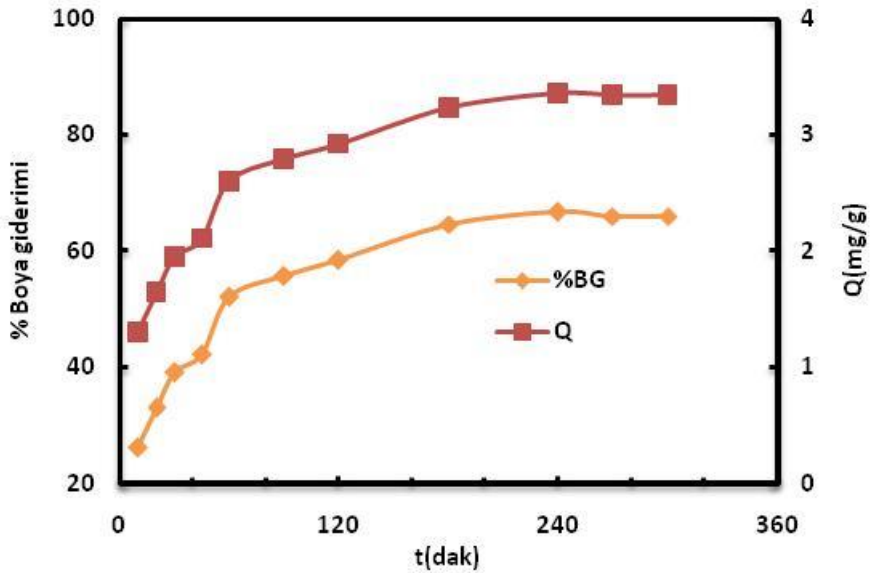
Şekil 4.19. SYB-5 Hidrojelinin MM adsorpsiyonunda sürenin etkisi ($C_{MM}=100\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $m=0,15\text{g}$, $T=25^\circ\text{C}$, $\text{pH}=10$)

Şekil 4.19’den görüldüğü üzere 100 ppm’lik metilen mavisi (MM) adsorpsiyonunda boya giderim miktarının zamana bağlı olarak genellikle arttığı belli bir süre sonunda ise artmanın sabitlendiği gözlemlendi.



Şekil 4.20. SYB-5 HidrojelininTARTadsorpsiyonunda sürenin etkisi ($C_{TART}=25\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $m=0,5\text{g}$, $T=25^\circ\text{C}$, $\text{pH}=1,5$)

Şekil 4.20 incelendiğinde 25 ppm’lik TART adsorpsiyonunda boya giderim miktarının zamana bağlı olarak genellikle arttığı bir süre sonunda ise artmanın sabitlendiği gözlemlendi.

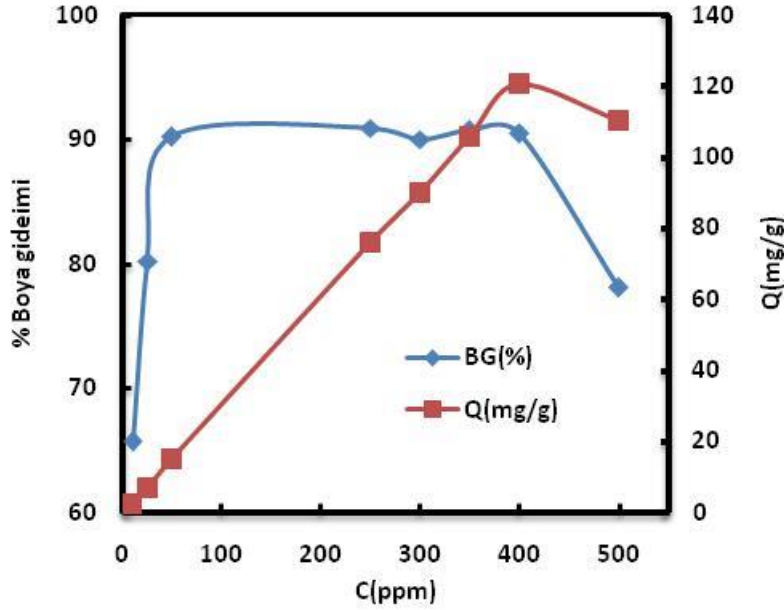


Şekil 4.21. SYB-5 HidrojelininTARTadsorpsiyonunda sürenin etkisi($C_{TART}=50\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $m=0,5\text{g}$, $T=25^\circ\text{C}$, $\text{pH}=1,5$)

Şekil 4.21’den görüldüğü üzere 50 ppm’lik TART adsorpsiyonunda boya giderim miktarının zamana bağlı olarak arttığı bu süre sonunda ise artmanın sabitlendiği gözlemlendi.

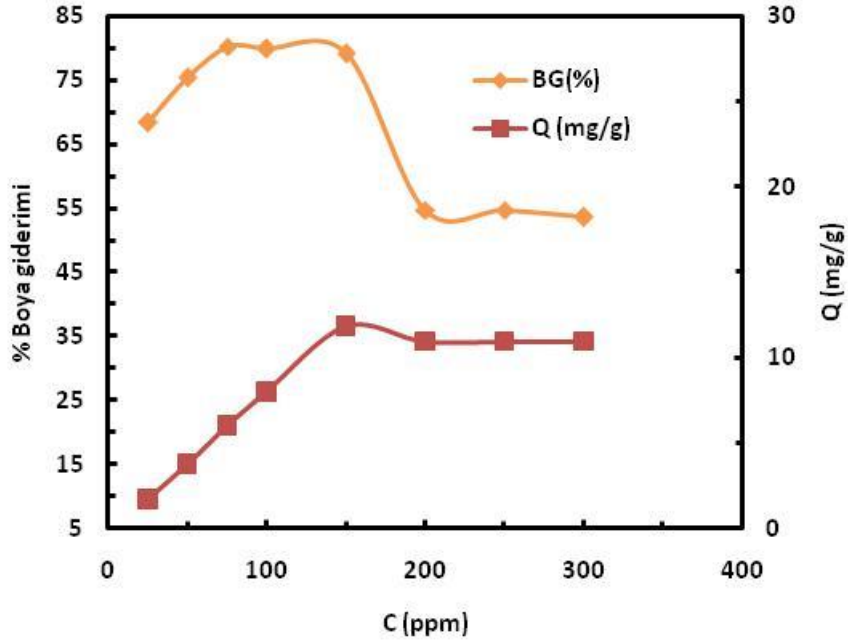
4.3.1.4. Adsorpsiyona Boya Konsantrasyonunun Etkisi

SYB-5 hidrojelinin metilen mavisi (MM), Tartrazin (TART) adsorpsiyonunda başlangıç boya derişiminin etkisini araştırmak için elde edilen sonuçlar Şekil 4.22 ve Şekil 4.23'te verildi.



Şekil 4.22. SYB-5 hidrojelinin MM adsorpsiyonuna boya konsantrasyonu etkisi (pH=10, V=50mL, T=25 °C, t=5s, m=0,15g)

Şekil 4.22 incelendiğinde SYB-5 MM adsorpsiyon kapasitesinin derişim arttıkça arttığı belli bir yerden sonra sabit bir düzeyde devam ettiği ve daha sonra azalma gerçekleştiği görüldü. Grafik incelendiğinde en fazla boya gideriminin 50ppm'de olduğu daha sonra 400ppm'den sonra boya gideriminin düştüğü gözlemlendi. 10-500 ppm aralığında yapılan çalışmalarda 50ppm ile devam edildi. Başlangıç boya derişiminin artması ile adsorplanan madde miktarı da doğru orantılı olarak artış göstermektedir. Başlangıç boya derişiminin artması, adsorban ve boya arasındaki etkileşimin de artmasına yol açar. Fakat artan boya derişimi ile birlikte polimerin adsorpsiyon kapasitesi dolmakta ve bunun sonucu olarak da daha fazla adsorpsiyon gerçekleşmez. Bu nedenle boyanın yüzde tutunma miktarı belli bir değerden sonra artan derişimle birlikte düşer (Sarıkaya & Göçenoğlu, 2019).

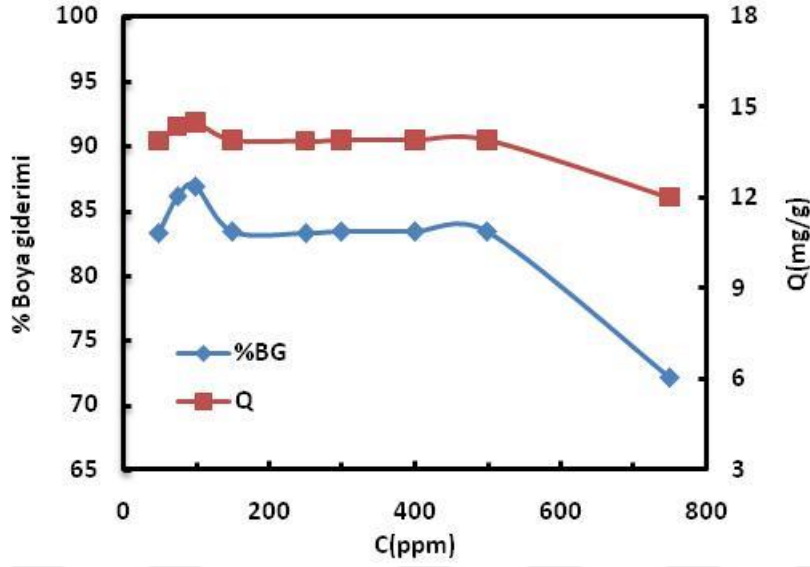


Şekil 4.23. SYB-5 hidrojelinin TART adsorpsiyonuna konsantrasyon etkisi (pH=1,5, V=50mL, t=5s, m=0,5g, T=25 °C)

Şekil 4.23 incelendiğinde SYB-5 hidrojelinin TART adsorpsiyon kapasitesinin derişimle birlikte artış gösterdiği görüldü. Grafik incelendiğinde en fazla boya gideriminin bir yere kadar arttığı bir bölge sabit kaldıktan sonra düştüğü gözlemlendi. Çalışmalarda 50 ppm ile devam edildi.

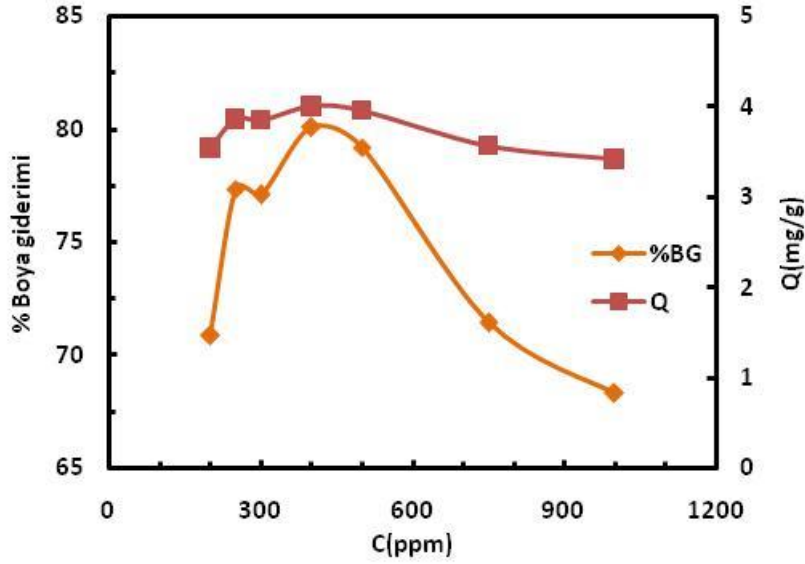
4.3.1.5. Adsorpsiyona İyonik Şiddetin Etkisi

SYB-5 hidrojelinin içeriği verilen sentetik deniz suyunda (SDS) boya giderim yüzdeleri Şekil 4.24 ve Şekil 4.25'te verildi.



Şekil 4.24. Adsorpsiyona iyonik şiddet değişiminin etkisi ($C_{MM}=50\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $T=25^\circ\text{C}$, $m=0,15\text{g}$, $t=5\text{s}$, $\text{pH}=10$)

Şekil 4.24 incelendiğinde iyonik şiddetin MM adsorpsiyonunu arttırdığını daha sonra 600 ppm'e kadar sabit kaldığını ve 600 ppm'den sonra azaldığı gözlemlendi.

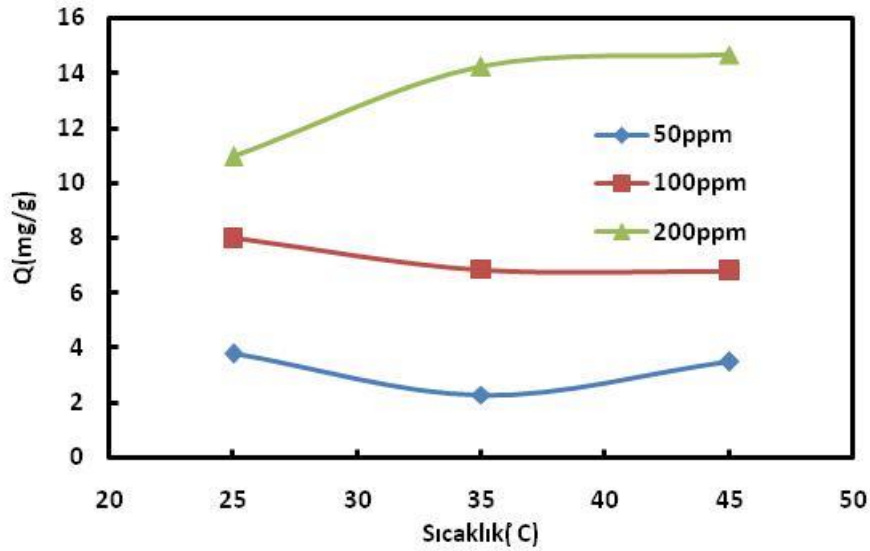


Şekil 4.25. Adsorpsiyona iyonik şiddet değişiminin etkisi ($C_{TART}=50\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $T=25^\circ\text{C}$, $m=0,5\text{g}$, $t=5\text{s}$, $\text{pH}=1,5$)

Şekil 4.25'te görüldüğü gibi SYB-5 hidrojelinin TART adsorpsiyonunda iyonik şiddetin boya giderim yüzdesini 600 ppm'e kadar arttırdığı, 600 ppm'den sonra %80 boya gideriminden %67 boya giderimine azaldığı, sonrasında iyonik şiddetin artmasına rağmen boya giderim yüzdesinin sabit kaldığı gözlemlendi.

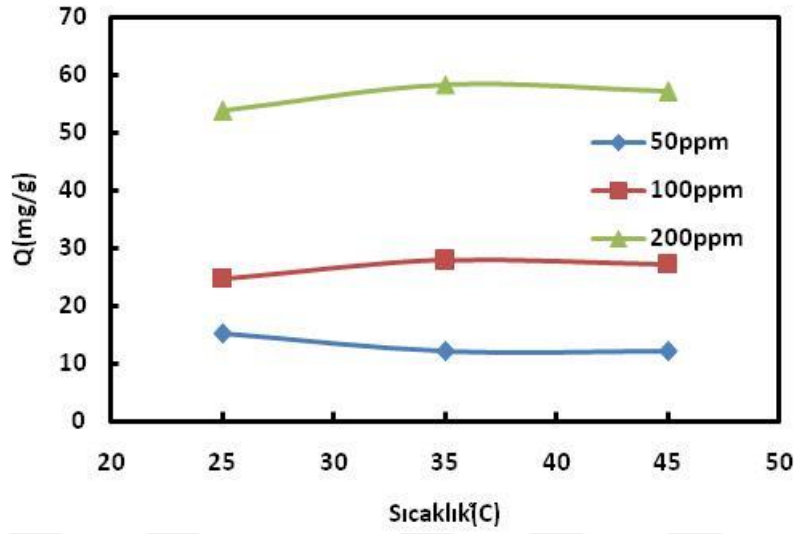
4.3.1.6. Adsorpsiyona Sıcaklık Etkisi

Adsorpsiyona sıcaklığın etkisini araştırmak için farklı sıcaklık değerlerinde (25 °C, 35 °C ve 45 °C) ve farklı başlangıç derişimlerinde (50, 100 ve 200 ppm) çalışıldı. SYB-5 hidrojeline MM, TART adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisi için bulunan sonuçlar aşağıda Şekil4.26 ve Şekil 4.27’de verildi.



Şekil 4.26. SYB-5 hidrojeline TART adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisi ($C_{TART}=50\text{ppm}$, $\text{pH}=1,5$, $V=50\text{mL}$, $m=0,5\text{g}$, $t=5\text{s}$)

Şekil 4.26 incelendiğinde 50 ppm’de sıcaklık artmasıyla adsorpsiyonun arttığı, ancak 100 ve 200 ppm’lik çalışmalarda sıcaklıkla bir miktar düştüğü ve yakın değerlerde seyrettiği görüldü.



Şekil 4.27. SYB-5 hidrojeline MM adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisi (CMM=50ppm, pH=10, V=50mL, m=0,15g, t=5s)

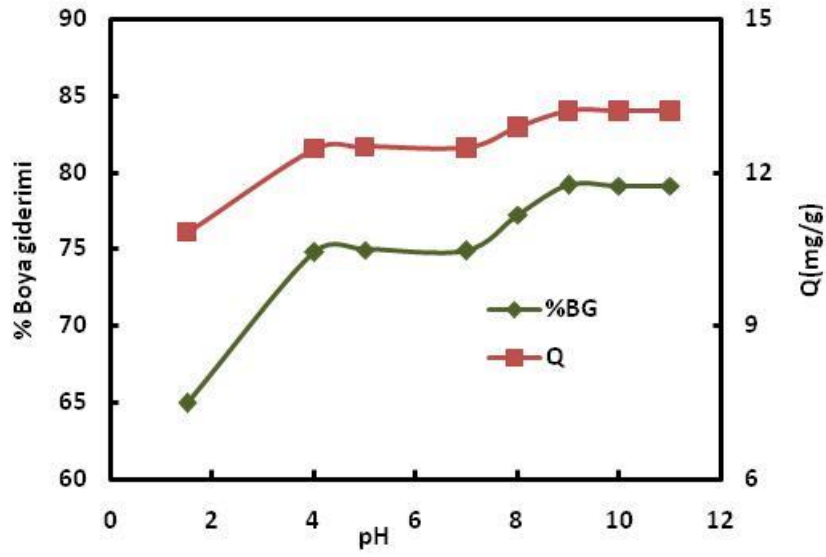
Şekil 4.27 incelendiğinde 100 ve 200 ppm’lik çalışmalarda sıcaklık artışıyla bir miktar arttığı görüldü. Bu durum hidrojinin MM adsorpsiyonunda sıcaklık değişiminden yüksek derişimlerde olumlu yönde etkilendiğini gösterir.

4.3.2. İkili Boya Karışımı Adsorpsiyon Çalışmaları

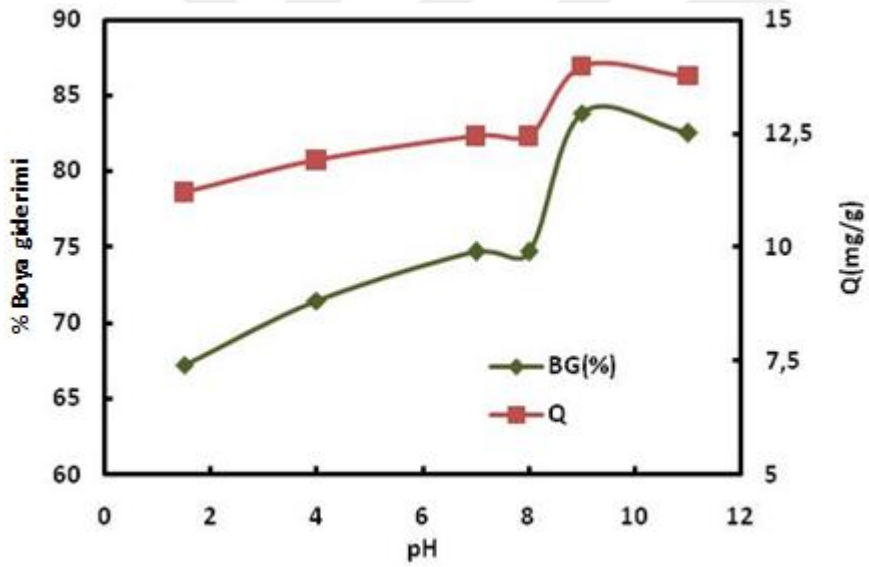
İkili boya karışımı çalışmalarında 25ppm-TART/25ppm-MM, 25ppm-TART/50ppm-MM, 50ppm-TART/50ppm-MM boya derişimlerinde adsorpsiyona sürenin etkisi, pH etkisi, adsorban miktarının etkisi, boya konsantrasyon etkisi, sıcaklık etkisi çalışıldı. Tüm parametreler SYB-5 üzerine TART adsorpsiyon çalışmalarında TART adsorpsiyonunun çok düşük olduğu (%10’un altında boya giderimi) belirlendi. Boya karışımı çalışmalarında MM için elde edilen sonuçlar aşağıdaki bölümlerde (4.3.2.1, 4.3.2.3, 4.3.2.4, 4.3.2.5 ve 4.3.2.6) verildi.

4.3.2.1. Adsorpsiyona pH Etkisi

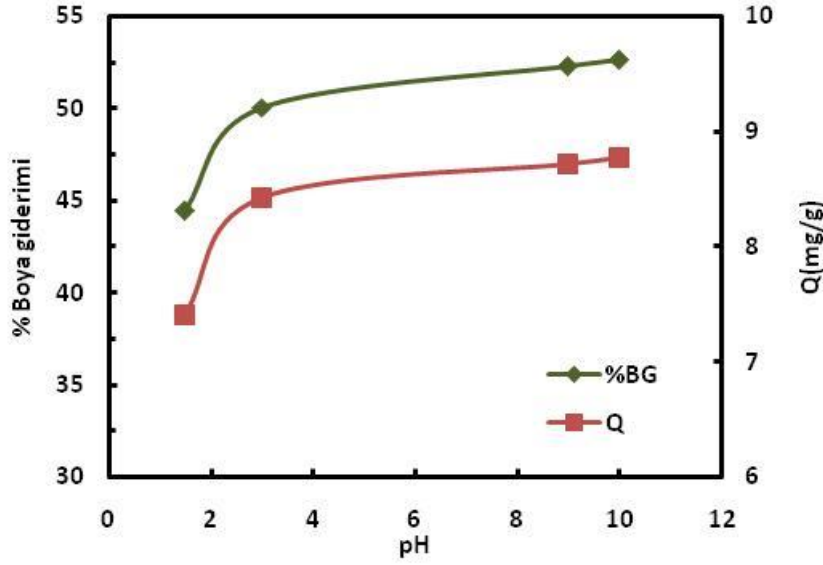
İkili boya karışımlarında pH 1,5 – 12 aralığı kullanılarak SYB-5 hidrojinin MM’de adsorpsiyon pH etkisi incelenerek sonuçları grafiklerde verildi. MM adsorpsiyonu için dalga boyu 665 nm olarak çalışıldı.



Şekil 4.28. SYB-5 HidrojelininBK'da MM adsorpsiyonundapHdeğişiminin etkisi($T=25\text{ }^{\circ}\text{C}$, $V=50\text{ mL}$, $m=0,15\text{ g}$, $C_{\text{TART}}=25\text{ ppm}$, $C_{\text{MM}}=25\text{ ppm}$, $t=5\text{ s}$)



Şekil 4.29. SYB-5 HidrojelininBK'da MM adsorpsiyonunapH değişiminin etkisi($T=25\text{ }^{\circ}\text{C}$, $V=50\text{ mL}$, $m=0,15\text{ g}$, $C_{\text{TART}}=25\text{ ppm}$, $C_{\text{MM}}=50\text{ ppm}$, $t=5\text{ s}$)

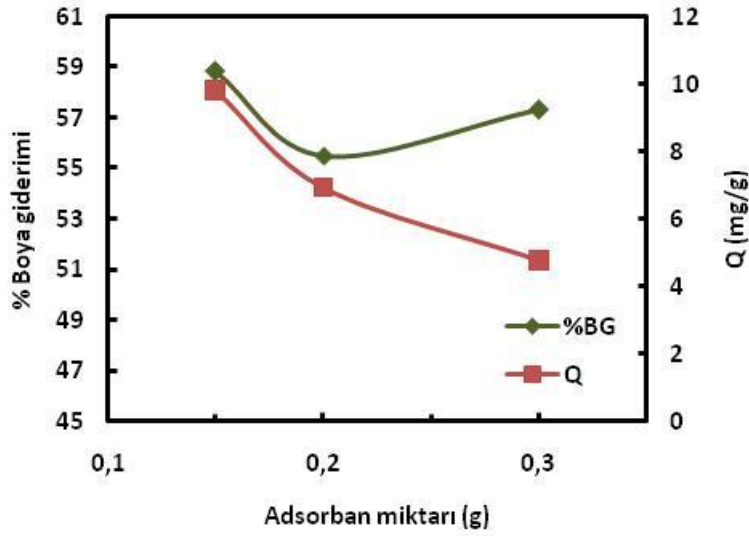


Şekil 4.30. SYB-5 HidrojelininBK'da MM adsorpsiyonuna pH değişimi ($T=25\text{ }^{\circ}\text{C}$, $V=50\text{ mL}$, $m=0,15\text{ g}$, $C_{\text{TART}}=50\text{ ppm}$, $C_{\text{MM}}=50\text{ ppm}$, $t=5\text{ s}$)

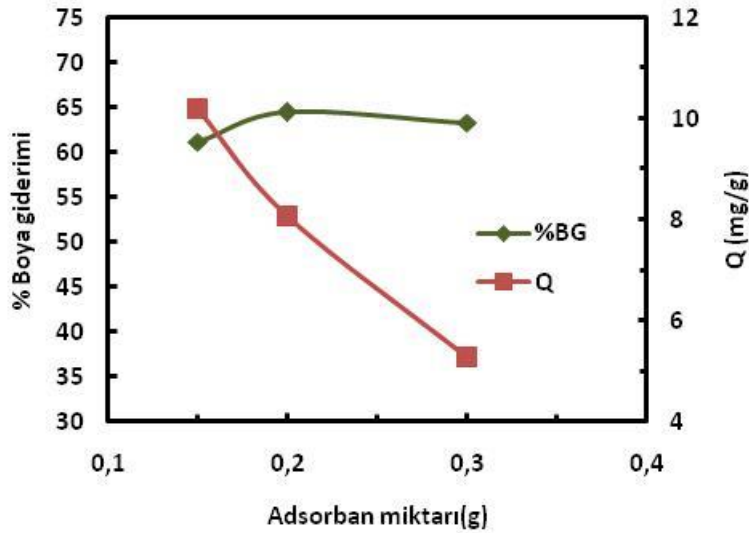
Şekil 4.28 incelendiğinde 25ppm-TART/25ppm-MM boya karışımı adsorpsiyonuna pH'nın artmasıyla boya gideriminin arttığı ve %80 boya gideriminin gerçekleştiği görüldü. Şekil 4.29'a bakıldığında pH artmasıyla birlikte boya gideriminin %83'e ulaşıldığı pH 10'dan sonra boya gideriminin azaldığı görüldü. Şekil 4.30'a bakıldığında pH artmasıyla boya gideriminin arttığı en fazla boya gideriminin %52 olduğu görüldü.

4.3.2.2. Adsorban Miktarının Etkisi

İkili boya karışımında (25ppm-TART/50ppm-MM) çözelti hazırlanarak adsorbsiyon işlemine adsorban miktarının etkisini incelemek için 50ml alınan çözeltiye 0,15ve0,2 gram olacak şekilde SYB-5 hidrojelinden eklenerek pH 1,5 ve pH 10'da ayarlanan ortamda 250rpm'de 5 saat çalkalandı. MM için değerler ölçüldü. Elde edilen sonuçlar Şekil 4.31 ve Şekil 4.32'de verildi.



Şekil 4.31. SYB-5 HidrojelininBK'da MM adsorpsiyonuna adsorban miktarının değişimi ($C_{TART}=25\text{ppm}$, $C_{MM}=50\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $t=5\text{s}$, $\text{pH}=1,5$)



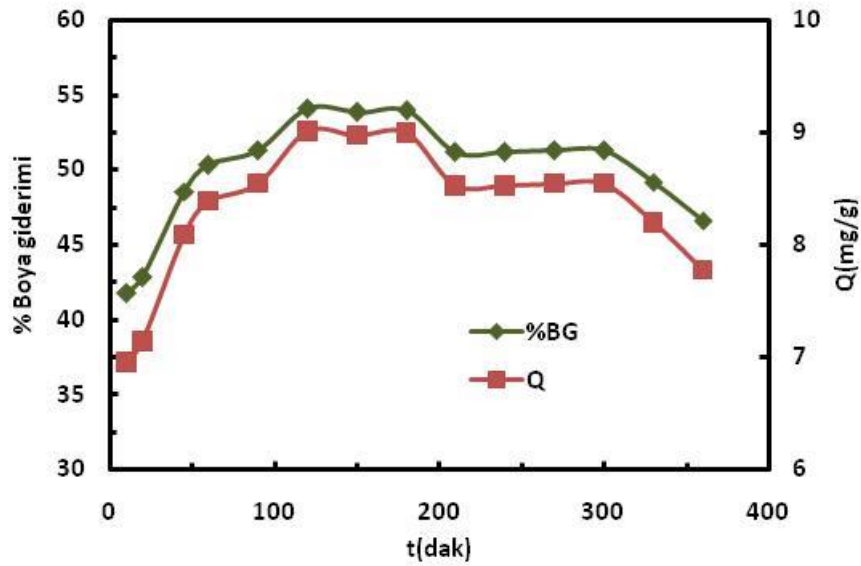
Şekil 4.32. SYB-5 HidrojelininBK'da MM adsorpsiyonuna adsorban miktarının etkisi ($C_{TART}=25\text{ppm}$, $C_{MM}=50\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $t=5\text{s}$, $\text{pH}=10$)

Şekil 4.31 incelendiğinde MM'de ve pH 1,5'ta adsorban miktarı arttıkça boya gideriminin düştüğü en fazla boya giderimi hidrojel miktarının 0,15 g olduğu durumda elde edildi. Bundan sonraki ikili boya çalışmalarında adsorban miktarı 0,15 g olarak alındı.

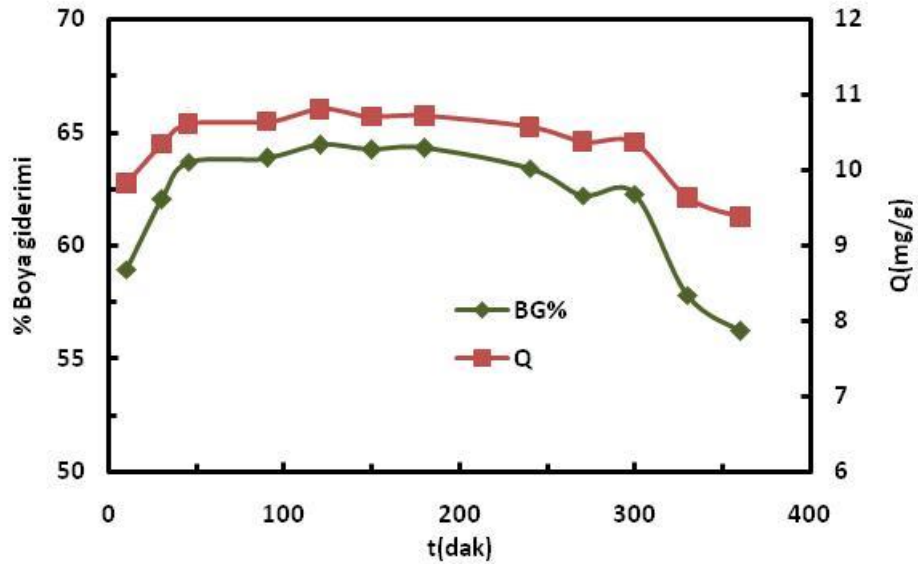
Şekil 4.32 incelendiğinde MM'de ve pH 10'da adsorban miktarı arttıkça boya gideriminin arttığı ancak bir değerden sonra azalma gerçekleştiği görüldü. Ortalama olarak en fazla

boya gideriminin gerçekleştiği hidrojel miktarının 0,15 g olduğu görüldü. Bundan sonraki ikili boya çalışmalarında adsorban miktarı 0,15 g olarak alındı.

4.3.2.3. Adsorpsiyona Sürenin Etkisi



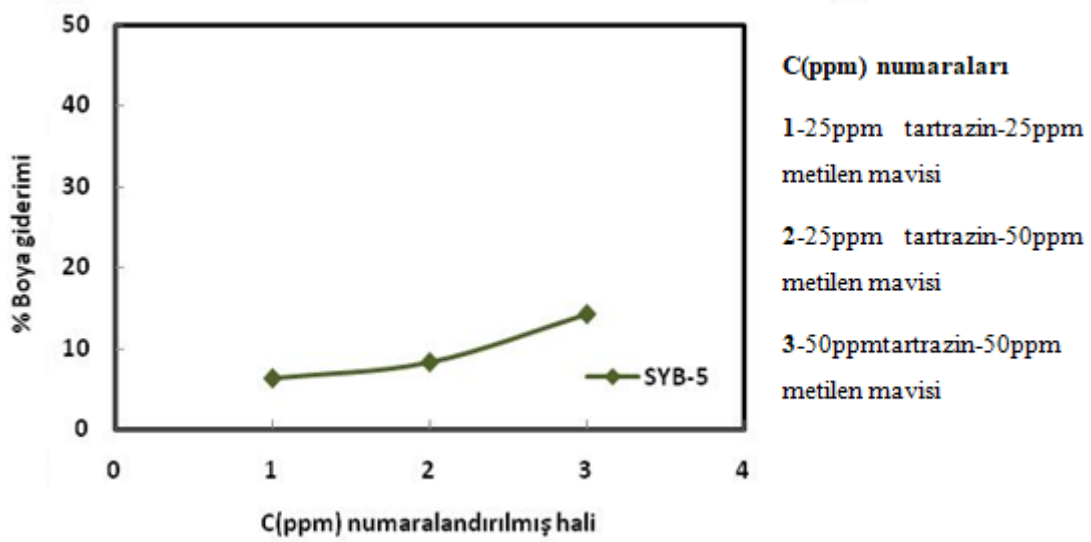
Şekil 4.33. SYB-5 HidrojelininBK’da MM adsorpsiyonundasürenin etkisi ($C_{MM}=50\text{ppm}$, $C_{TART}=25\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $m=0,15\text{g}$, $T=25^\circ\text{C}$, $\text{pH}=1,5$)



Şekil 4.34. SYB-5 HidrojelininBK’da MM adsorpsiyonunda sürenin etkisi($C_{MM}=50\text{ppm}$, $C_{TART}=25\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $m=0,15\text{g}$, $T=25^\circ\text{C}$, $\text{pH}=10$)

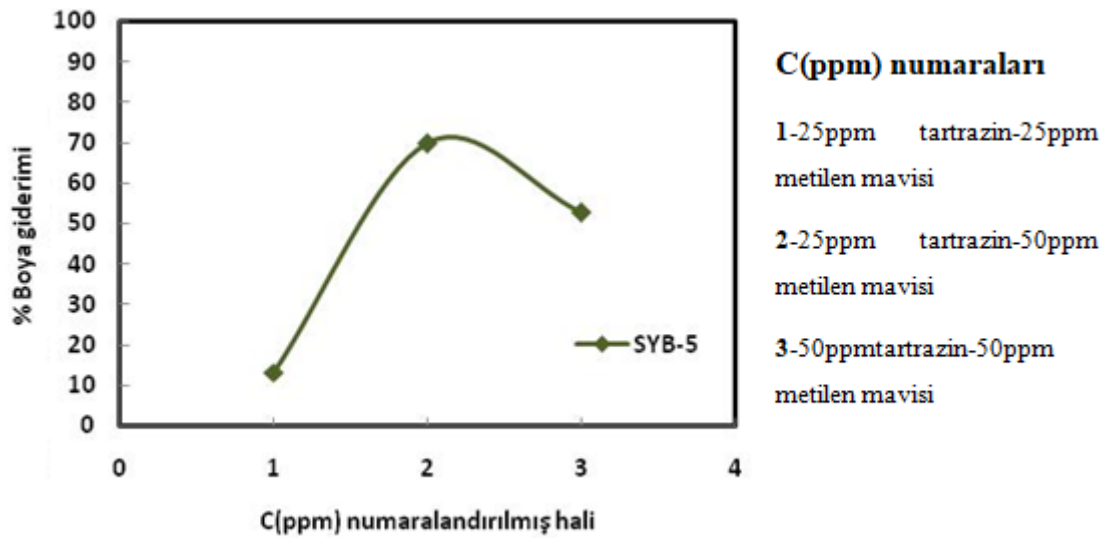
Şekil 4.33 ve Şekil 4.34 incelendiğinde sürenin artmasıyla birlikte boya giderim yüzdesinin arttığı gözlemlenmiş olup belli bir süreden sonra düştüğü gözlemlendi.

4.3.2.4.Adsorpsiyona Boya Konsantrasyonunun Etkisi



Şekil 4.35. SYB-5 hidrojelinin BK adsorpsiyonuna konsantrasyon etkisi (V=50mL, m=0,15g, t=5s, pH=1,5)

Şekil 4.35 incelendiğinde ikili boya karışımında(BK)pH 1,5'ta adsorpsiyon kapasitesinin arttığı gözlemlendi. Yine boya konsantrasyonu ile boya giderim yüzdesinin arttığı görüldü.



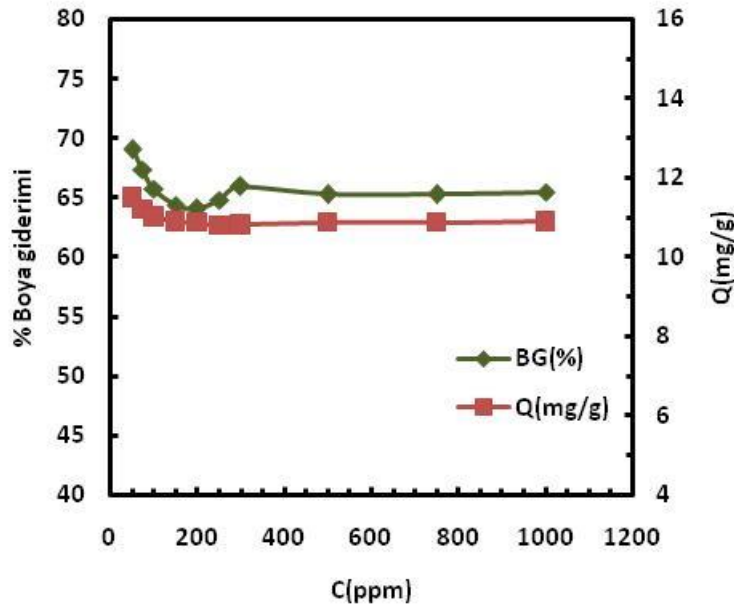
Şekil 4.36. SYB-5 hidrojelinin BK adsorpsiyonuna konsantrasyon etkisi (V=50mL, m=0,15g, t=5s, pH=10)

Şekiller incelendiğinde pH 10'da ikili boya karışımı adsorpsiyon kapasitesinin 25ppmTART-50ppmMM konsantrasyonunda en yüksek olduğu bu değerden sonra düştüğü

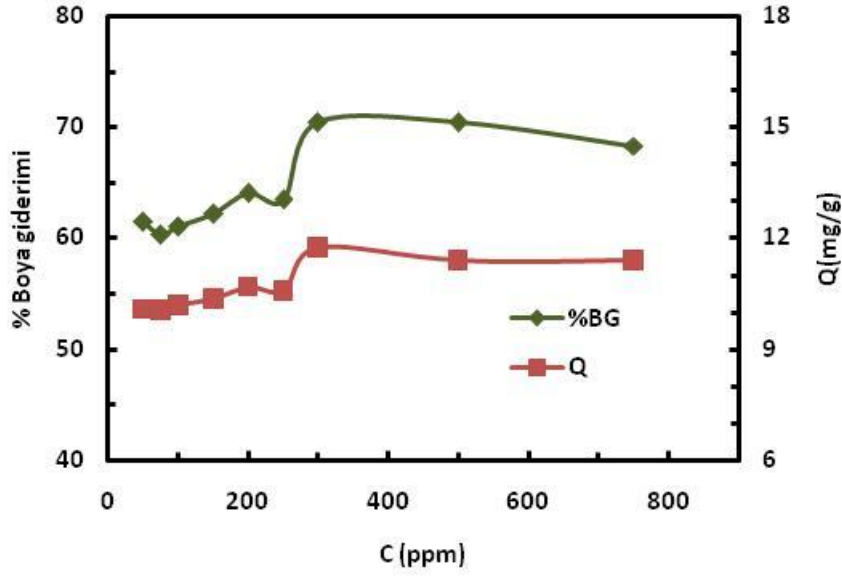
gözlemlendi. Boya giderim yüzdesinin artış gösterdiği en yüksek değere 25ppmTART-50ppmMM konsantrasyonunda ulaşıldığı bu değerden sonra düşme yaşandığı görüldü.

4.3.2.5.Adsorpsiyona İyonik Şiddetin Etkisi

SYB-5 hidrojelinin içeriği verilen sentetik deniz suyunda (SDS) boya giderim yüzdeleri Şekil 4.37 ve Şekil 4.38’de verildi.



Şekil 4.37. Adsorpsiyona MM’de BK’na iyonik şiddet değişimi ($C_{TART}=25\text{ppm}$, $C_{MM}=50\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $T=25\text{ }^{\circ}\text{C}$, $m=0,15\text{g}$, $t=5\text{s}$, $\text{pH}=1,5$)

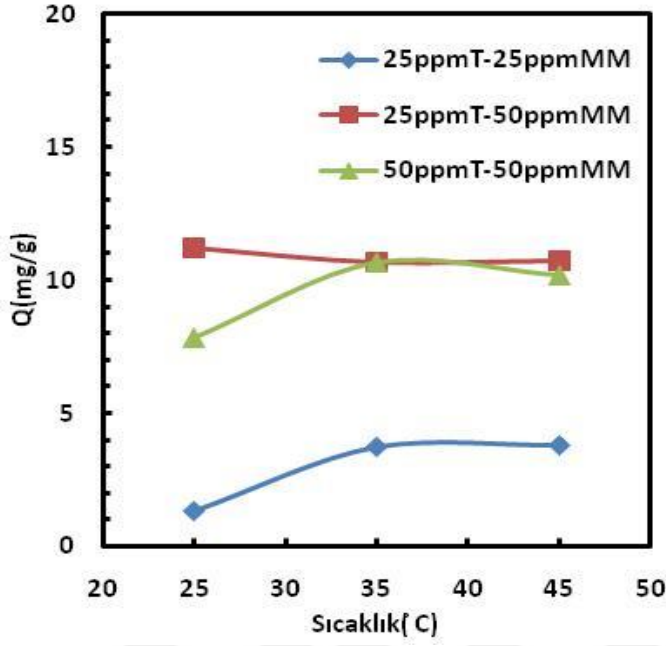


Şekil 4.38. Adsorpsiyona MM'de BK'na iyonik şiddet değişiminin etkisi ($C_{TART}=25\text{ppm}$, $C_{MM}=50\text{ppm}$, $V=50\text{mL}$, $T=25\text{ }^{\circ}\text{C}$, $m=0,15\text{g}$, $t=5\text{s}$, $\text{pH}=10$)

Şekil 4.37 ve Şekil 4.38'de de görüldüğü gibi tüm ikili boya karışımları adsorpsiyonunda hidrojel içinde boya giderim değerlerinin bir noktaya kadar arttığı daha sonra sabit kaldığı görüldü.

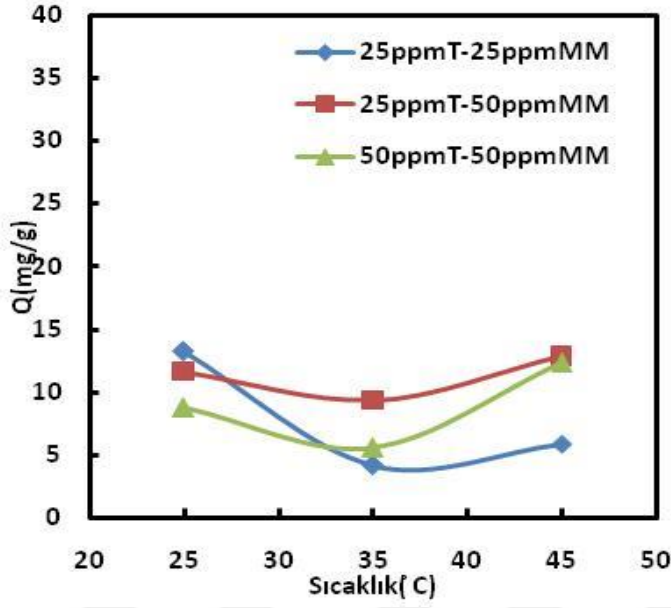
4.3.2.6. Adsorpsiyona Sıcaklık Etkisi

Adsorpsiyona sıcaklığın etkisini araştırmak için farklı sıcaklık değerlerinde ($25\text{ }^{\circ}\text{C}$, $35\text{ }^{\circ}\text{C}$ ve $45\text{ }^{\circ}\text{C}$) ve farklı başlangıç derişimlerinde (50, 100 ve 200 ppm) çalışıldı. SYB-5 hidrojeline BK adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisi için bulunan sonuçlar aşağıdaki Şekil 4.39 ve Şekil 4.40'da verildi.



Şekil 4.39. SYB-5 hidrojeline MM'deBK adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisi (pH=1,5, V=50mL, m=0,15 g, t=5s)

Şekil 4.39 incelendiğinde sıcaklık değişimi 25ppmTART-50ppmMM çalışmasını bir miktar azalttığı daha sonra sabit olarak devam ettiğini, diğer iki derişim çalışmalarında sıcaklık artışıyla adsorpsiyonun arttığı ancak daha sonra sabit kaldığı gözlemlendi. Bunun nedeni olarak, boyanın artan yüzey aktivitesi ve artan kinetik enerjisi gösterilebilir (Aksu vd., 2006).

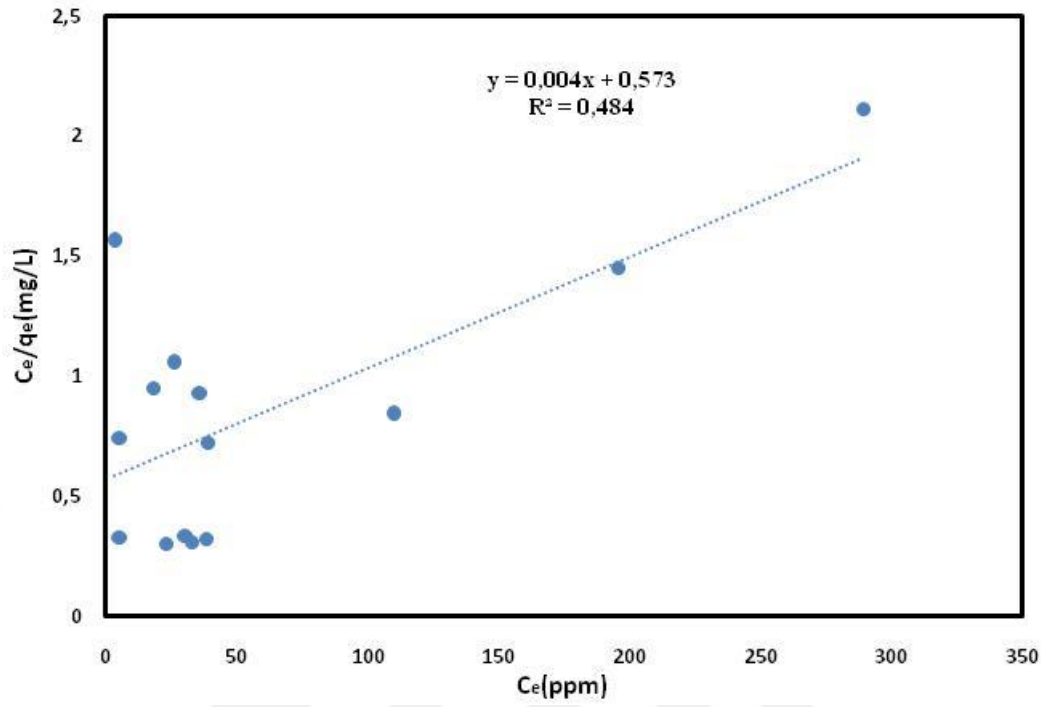


Şekil 4.40. SYB-5 hidrojelineBK'na MM adsorpsiyonunda sıcaklığın etkisi (pH=10, V=50mL, m=0,15 g, t=5s)

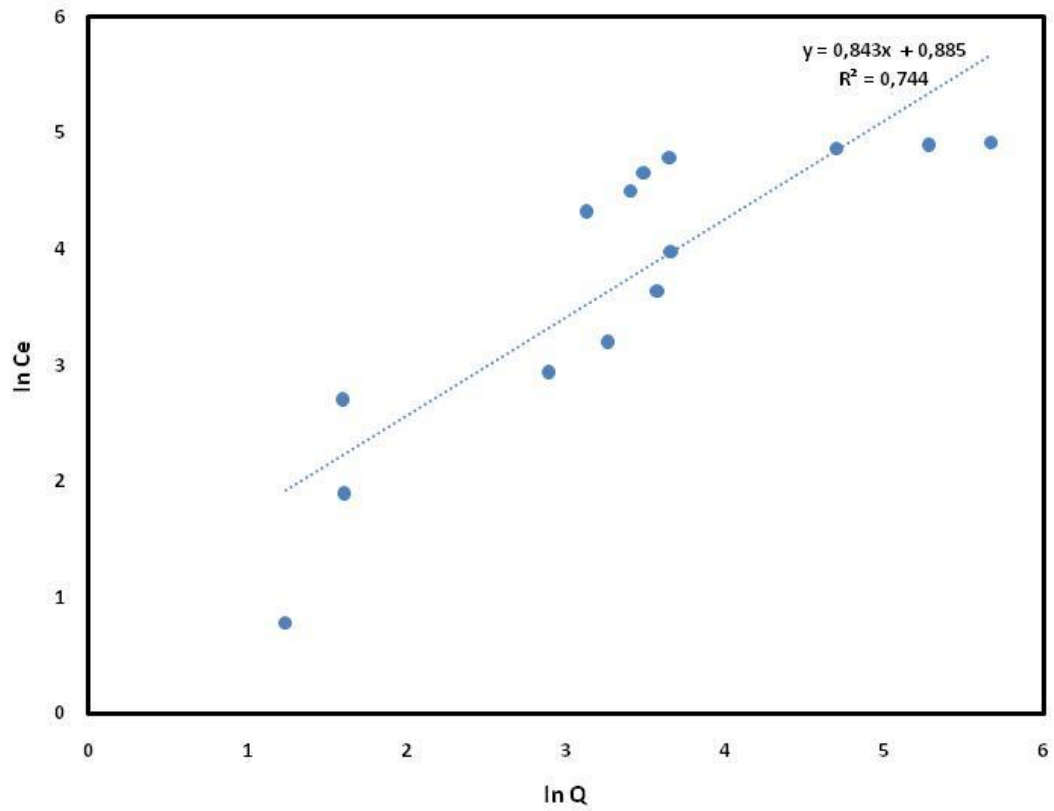
Şekil 4.40 incelendiğinde sıcaklık artışıyla her üç çalışmada da adsorpsiyonun azaldığı belli bir sıcaklık değerinden sonra tekrar arttığı görüldü. Burada gerçekleşen azalmanın adsorbent yüzeyin deaktive edilmesi ya da adsorbentin yüzeyindeki bazı aktif bölgelerin tahrip edilmesi ile ilgili olduğu düşünüldü (Alpat vd., 2010).

4.4. Adsorpsiyon İzotermeleri Çalışma Sonuçları

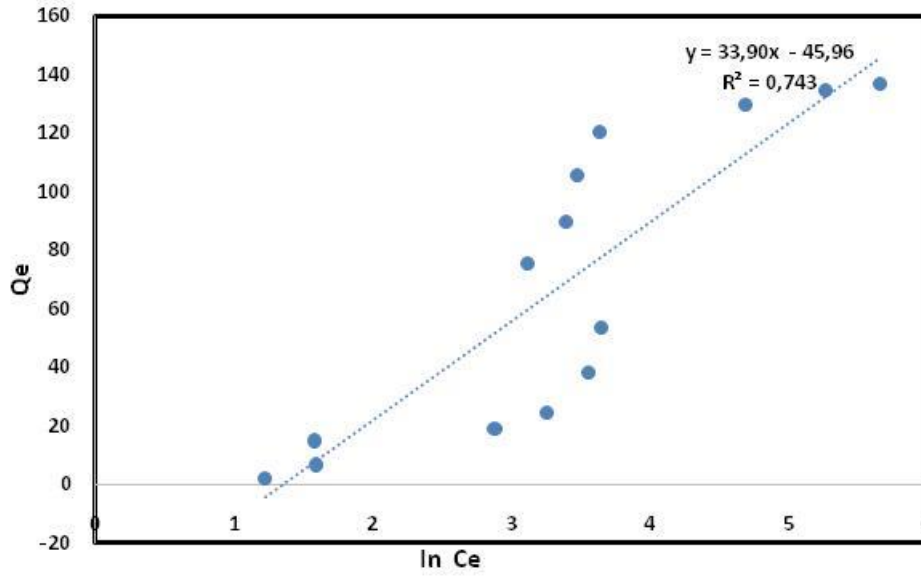
Hazırlanan jellerin MM ve TART adsorpsiyonu izoterm davranışlarını belirlemek için Langmuir, Freundlich ve Temkin izoterm modelleri kullanıldı. Elde edilen grafikler Şekil 4.41, Şekil 4.42, Şekil 4.43'te verildi.



Şekil 4.41. Metilen Mavisinin (MM) SYB-5 adsorpsiyonunda Langmuir izoterm grafiği



Şekil 4.42. Metilen Mavisinin (MM) SYB-5 adsorpsiyonunda Freundlich izoterm grafiği



Şekil 4.43. Metilen Mavisinin (MM) SYB-5 adsorpsiyonunda Temkin izoterm grafiği

Elde edilen sonuçlar Langmuir, Freundlich ve Temkin adsorpsiyon izoterm modellerine göre değerlendirildi. R^2 değerlerinden SYB-5 hidrojeline MM ve TART adsorpsiyonunun belirtilen izoterm modellerine uymadığı belirlendi.

5. SONUÇLAR

Bu çalışmada, 4VBS ve MOEAMCl monomerleri ile N,N'-metilenbisakrilamit çapraz bağlayıcısı ve amonyum persülfat radikalik başlatıcısı kullanılarak hazırlanan hidrojellerin şişme davranışları ve sulu çözeltilerden boyar madde uzaklaştırılmasında kullanımları incelendi.

FTIR spektrum sonuçlarına göre SYB-1, SYB-3, SYB-5 hidrojellerinin FTIR spektrumu, sentezlendiği monomerler MOEAMCl ile 4VBS ve çapraz bağlayıcı N,N-Metilen bisakrilamit bileşiklerinin yapısına ait karakteristik absorpsiyon bandlarını içermektedir. Buradan hidrojellerin sentezlendiği sonucuna varıldı.

SEM analizlerine göre hidrojellerin pürüzlü yapıda olduğu adsorpsiyon sonrası yüzeyin pürüzlü yapısının kaybolduğu görüldü. Adsorpsiyon sonrası yüzey morfolojisinin değişmesi de adsorpsiyonun gerçekleştiğini gösterdi.

Şişmeye pH etkisi incelendiğinde, hidrojellerin pH'nın artmasıyla şişme değerlerinin önemli ölçüde azaldığı belirlendi. En iyi şişme sonuçları tüm hidrojeller için pH3 olarak belirlendi. Hidrojeller NaCl çözeltisi içerisinde çok az miktarda şişerken, üre çözeltisi içerisinde çok daha fazla şişme davranışı sergilediler.

Adsorpsiyon için optimum şartlar metilen mavisi(MM) çalışmasında pH 10, süre 5 saat ve adsorban miktarı 0,15 g olarak belirlendi. Tartrazin (TART) için ise pH=1,5, süre 5 saat ve adsorban miktarı 0,5 g olarak belirlendi. İkili boya karışımı için süre 5 saat ve adsorban miktarı 0,15 olarak belirlendi.

Boya gideriminin metilen mavisi ve tartrazin için boya konsantrasyonu ile birlikte boya giderim yüzdesinin arttığı daha fazla artmasıyla değişme olmadığı gözlemlendi. SYB-5 hidrojeline MM adsorpsiyonunda adsorpsiyon kapasitesi 137 mg/g ve TART adsorpsiyonunda (m=0,5 g; pH=1,5 ve V=50 mL) adsorpsiyon kapasitesi 16 mg/g olarak belirlendi. Boya karışımlarında (50 ppm MM: 25 ppm TART karışımı) MM adsorpsiyonu etkin bir şekilde gerçekleşirken TART adsorpsiyonu zayıf olarak gerçekleşti.

KAYNAKLAR

- Aharoni, C., & Ungarish, M. (1977). Kinetics of activated chemisorption. Part 2.— Theoretical models. *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions 1: Physical Chemistry in Condensed Phases*, 73, 456-464. <https://doi.org/10.1039/F19777300456>.
- Ahmed, E. M. (2013). Hydrogel: Preparation, characterization, and applications. *Journal of Advanced Research*, 5, 2-16. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jare.2013.07.006>.
- Akköz, Y. (2018). Aktive Edilmiş Biyoadsorbanlar ile Sulu Çözeltilerden Boyar Madde Adsorpsiyonu, (Yayın No: 540304). [Yüksek Lisans Tezi, Yozgat Bozok Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.
- Aksu, Z., & Çağatay, Ş. Ş. (2006). Investigation of biosorption of Gemazol Turquoise Blue-G reactive dye by dried *Rhizopus arrhizus* in batch and continuous systems. *Separation and Purification Technology*, 48(1), 24-35. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2005.07.017>.
- Ali, R. M., Hamad, H. A., Hussein, M. M., & Malash, G. F. (2016). Potential of using green adsorbent of heavy metal removal from aqueous solutions: adsorption kinetics, isotherm, thermodynamic, mechanism and economic analysis. *Ecological Engineering*, 91, 317-332. <https://doi.org/10.1016/j.ecoleng.2016.03.015>.
- Ali, H. E., Nasef, S. M., & Gad, Y. H. (2022). Remediation of Astrazon blue and Lerui acid brilliant blue dyes from waste solutions using amphoteric superparamagnetic nanocomposite hydrogels based on chitosan prepared by gamma rays. *Carbohydrate Polymers*, 283, 119149. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2022.119149>.
- Allen, S. J., Gan, Q., Matthews, R., & Johnson, P. A. (2003). Comparison of optimised isotherm models for basic dye adsorption by kudzu. *Bioresource Technology*, 88(2), 143-152. [https://doi.org/10.1016/S0960-8524\(02\)00281-X](https://doi.org/10.1016/S0960-8524(02)00281-X).
- Alpat, S., Alpat, S. K., Çadirci, B. H., Özbayrak, Ö., & Yasa, İ. (2010). Effects of biosorption parameter: kinetics, isotherm and thermo Dynamics for Ni (II)

- biosorption from aqueous solution by *Circinella* sp. *Electronic Journal of Biotechnology*, 13(5), 4-5. <http://dx.doi.org/10.2225/vol13-issue5-fulltext-20>.
- Aslan, S., Polat, A., & Topcu, U. S. (2015). Assessment of the adsorption kinetics, equilibrium and thermo Dynamics for the potential removal of Ni²⁺ from aqueous solution using waste eggshell. *Journal of Environmental Engineering and Landscape Management*, 23(3), 221-229. <https://doi.org/10.3846/16486897.2015.1005015>.
- Banerjee, S., & Chattopadhyaya, M. C. (2017). Adsorption characteristics for the removal of a toxic dye, tartrazine from aqueous solutions by a low cost agricultural by-product. *Arabian Journal of Chemistry*, 10, S1629-S1638. <https://doi.org/10.1016/j.arabjc.2013.06.005>.
- Bansal, R. C., & Goyal, M. (2005). Activated carbon adsorption. CRC press. <https://doi.org/10.1201/9781420028812>.
- Berger, J., Reist, M., Mayer, J. M., Felt, O., Peppas, N. A., & Gurny, R. J. E. J. O. P. (2004). Structure and interactions in covalentlyan dionically crosslinked chitosan hydrogels for biomedical applications. *European journal of pharmaceutics and biopharmaceutics*, 57(1), 19-34. [https://doi.org/10.1016/S0939-6411\(03\)00161-9](https://doi.org/10.1016/S0939-6411(03)00161-9).
- Bhattacharya, S., & Shunmugam, R. (2020). Polymer basedgels and their applications in remediation of dyes from textile effluents. *Journal of Macromolecular Science, Part A*, 57(12), 906-926. <https://doi.org/10.1080/10601325.2020.1782229>.
- Bozgeyik, K., & Toprak, A. (2020). Sulu Çözeltilerden Metilen Mavisinin Giderilmesi için ARCF₃O₄ Nanokompozitlerinin Sentezlenmesi. *El-Cezeri*, 7(2), 667-678. <https://doi.org/10.31202/ecjse.689309>.
- Bülbül, A. (2019), Aktive edilmiş meşe mangal kömürüne metilen mavisinin adsorpsiyonu, (Yayın No: 606968), [Yüksek Lisans Tezi, Yozgat Bozok Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.
- Büyükbektas, A. (2018), Kompozit hidrojeliler ile sulu çözeltilerden boyar madde uzaklaştırılması, (Yayın No: 540341), [Yüksek Lisans Tezi, Yozgat Bozok Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.

- Carliell, CM, Barclay, SJ & Buckley, C. A. (1996). Treatment of exhausted reactive dye bath effluent using anaerobic digestion: laboratory and full-scale trials. *Water SA*, 22(3), 225-233. https://journals.co.za/doi/pdf/10.10520/AJA03784738_1419.
- Coşkun, R., Delibaş, A., & Öncel, K. (2022). Efficient removal of azo dyes with nano-flower formation using nano-basiscresins. *International Journal of Environmental Science and Technology*, 1-18. <http://dx.doi.org/10.1007/s13762-021-03215-3>.
- Çakmak, H. (2013). Fiziksel ve kimyasal çapraz bağlı DNA Hidrojellerinin sentezi ve karakterizasyonu, (Yayın no: 349753). [Yüksek Lisans Tezi, İstanbul Teknik Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.
- Çetinkaya, G. (2023). Hidrojel üretimi ve karakterizasyonu, (Yayın no: 832710), [Yüksek Lisans Tezi, Sakarya Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.
- Deen, G. R., Wei, T. T., & Fatt, L. K. (2016). New stimuli-responsive polyampholyte: Effect of chemical structure and composition on solution properties and swelling mechanism. *Polymer*, 104, 91-103. <https://doi.org/10.1016/j.polymer.2016.09.094>.
- Delen, Ç. M. (2023). Manyetik Reçine Sentezi: Sulu Çözeltilerden Boyarmadde Giderimi, (Yayın no: 801590), [Yüksek Lisans Tezi, Yozgat Bozok Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.
- Demirci, S., Ari, B., Aktas, N., & Sahiner, N. (2022). pH-responsive amphoteric p (APTMACI-co-AMPS) hydrogel as effective multiple dyesponge network from aqueous media. *Frontiers in Materials*, 9, 837701. <https://doi.org/10.3389/fmats.2022.837701>.
- Deng, L., Zhai, Y., Guo, S., Jin, F., Xie, Z., He, X., & Dong, A. (2009). Investigation on properties of P ((MAA-co-DMAEMA)-g-EG) polyampholyte nanogels. *Journal of Nanoparticle Research*, 11, 365-374. <http://dx.doi.org/10.1007/s11051-008-9391-2>
- Dey, M. D., Shukla, R., Bordoloi, N. K., Doley, R., & Mukhopadhyay, R. (2015). Mechanism of adsorptive removal of methylene blue using dried biomass of *Rhizopusoryzae*. *Applied biochemistry and biotechnology*, 177, 541-555. <https://doi.org/10.1007/s12010-015-1761-5>.

- Doğar, Ç. (2000). Bazı Reaktif Boyaların Elektrokoagülasyonunun Kavramsal ve İstatistiksel Olarak İncelenmesi (Yayın No: 96428), [Yüksek Lisans Tezi, Erzurum Atatürk Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.
- Duykop, H. (2020), Katyonik Hidrojellerin Sentezi, Karakterizasyonu ve Anyonik Boya Gideriminde Kullanılması, (Yayın No: 620527), [Yüksek Lisans Tezi, Yozgat Bozok Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.
- Ebara, M., Kotsuchibashi, Y., Narain, R., Idota, N., Kim, Y. J., Hoffman, J. M., ... & Hoffman, J. M. (2014). Smart nanoassemblies and nanoparticles. *Smart Biomaterials*, 67-113. <http://dx.doi.org/10.1007/978-4-431-54400-5>.
- Ezell, R. G., & McCormick, C. L. (2007). Electrolyte-and pH-responsive polyampholytes with potential as viscosity-controlagents in enhanced petroleum recovery. *Journal of applied polymer science*, 104(5), 2812-2821. <https://doi.org/10.1002/app.24999>.
- Foo, K. Y., & Hameed, B. H. (2010). Insights in the modeling of adsorption isotherm systems. *Chemical engineering journal*, 156(1), 2-10. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2009.09.013>.
- Giles, C. H., Smith, D., & Huitson, A. (1974). A general treatment and classification of the solute adsorption isotherm. I. Theoretical. *Journal of colloid and interface science*, 47(3), 755-765. [https://doi.org/10.1016/0021-9797\(74\)90252-5](https://doi.org/10.1016/0021-9797(74)90252-5).
- Güntekin, G., (2010), Tekstil boyar maddelerinin akıllı hidrojeller ile uzaklaştırılması, (Yayın No: 274934), [Yüksek Lisans Tezi, Çanakkale Onsekiz Mart Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.
- Hassan, M. I. U., Taimur, S., Khan, I. A., Yasin, T., & Ali, S. W. (2019). Surface modification of polypropylene waste by the radiation grafting of styrene and upcycling in to a cation-exchangeresin. *Journal of Applied Polymer Science*, 136(10), 47145. <https://doi.org/10.1002/app.47145>.
- Hegazy, E. S. A., Abd El-Aal, S. E., Abou Taleb, M. F., & Dessouki, A. M. (2004). Radiation synthesis and characterization of poly (N-vinyl-2-pyrrolidone/acrylicacid) and poly (N-vinyl-2-pyrrolidone/acrylamide) hydrogels for some metal-ionseparation. *Journal of applied polymer science*, 92(4), 2642-2652. <https://doi.org/10.1002/app.20208>.

- Ho, Y. S. (2003). Removal of copperions from aqueous solution by tree fern. *Waterre search*, 37(10), 2323-2330. [https://doi.org/10.1016/S0043-1354\(03\)00002-2](https://doi.org/10.1016/S0043-1354(03)00002-2).
- Ho, Y. S., Chiang, T. H., & Hsueh, Y. M. (2005). Removal of basic dye from aqueous solution using tree fern as a biosorbent. *Process Biochemistry*, 40(1), 119-124. <https://doi.org/10.1016/j.procbio.2003.11.035>.
- Ho, Y. y Mckay, G. (1998). Kinetic models for the sorption of dye from aqueous solution by wood. *Transactions of theInstitute of Chemical Engineering B*, 76, 189-232. [https://doi.org/10.1016/S0923-0467\(98\)00076-1](https://doi.org/10.1016/S0923-0467(98)00076-1).
- Huang, X., Xu, S., Zhong, M., Wang, J., Feng, S., & Shi, R. (2009). Modification of Na-bentonite by polycations for fabrication of amphoteric semi-IPN nanocomposite hydrogels. *Applied clays cience*, 42(3-4), 455-459. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2008.05.008>.
- Huang, Y., Shen, B., Zheng, C., Huang, B., Zhang, G., & Fei, P. (2023). Preparation of amphoteric double network hydrogels based on low methoxy pectin: Adsorption kinetics and removal of anionic and cationic dyes. *International Journal of Biological Macromolecules*, 252, 126488. <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2023.126488>.
- Karanfil, D. Y. (2021), Yeni Bir Adsorban Sentezi: Sulu Çözeltilerden Asidik Boyar Maddelerin Eş Zamanlı Adsorpsiyonu, (Yayın No: 705735), [Yüksek Lisans Tezi, Yozgat Bozok Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.
- Karanfil, D. Y., Coşkun, R., & Delibaş, A. (2022). Aminated magnetic polymericresin for removal of anthraquinone and azo dyes from aqueous solutions. *Journal of Polymer Research*, 29(3), 87. <http://doi.org/10.1007/s10965-022-02945-3>.
- Kaşgöz, H. (2005). Amino functionalized acrylamide–maleicacid hydrogels: Adsorption of indigocarmine. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 266(1-3), 44-50. <https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2005.05.044>.
- Kavzak, B. (2005). Carrageenan Jellerin UV-Görünür Bölge Spektrometreyle incelenmesi. (Yayın No:197892), [Yüksek Lisans Tezi, Trakya Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.

- Kayacan, S. (2007). Kömür ve Koklarla Sulu Çözeltilerden Boyar Maddelerin Uzaklaştırılması. (Yayın No: 213801), [Yüksek Lisans Tezi, Ankara Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.
- Keleşoğlu, S. (2007). Comparative adsorption studies of heavy metal ions on chitin and chitosan biopolymers. (Yayın No: 202153), [Yüksek Lisans Tezi, İzmir Teknoloji Enstitüsü], YÖK Tez Merkezi.
- Kocaer, F. O., & Alkan, U. (2002). Boyarmadde içeren tekstil atık sularının arıtım alternatifleri. *Uludağ Üniversitesi Mühendislik Mimarlık Fakültesi Dergisi*, 7, 47-55. <https://dergipark.org.tr/tr/download/article-file/202895>.
- Kong, L., & Adidharma, H. (2019). A new adsorption model based on generalized van der Waals partition function for the description of alltypes of adsorption isotherms. *Chemical Engineering Journal*, 375, 122112. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2019.122112>.
- Köylü, E., Gonen, F., & Önalın, F. (2015). Asidik Boyarmadde İçeren Tekstil Endüstrisi Atıksularından Adsorpsiyon Yöntemiyle Renk Giderilmesi. *Anadolu University Journal of Science and Technology A-Applied Sciences and Engineering*, 16(2), 145-153. <https://doi.org/10.18038/btd-a.48423>.
- Leulescu, M., Rotaru, A., Pălărie, I., Moanță, A., Cioateră, N., Popescu, M., ... & Rotaru, P. (2018). Tartrazine: Physical, thermal and biophysical properties of the most widelyemployed synthetic yellow food-colouring azo dye. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 134, 209-231. <http://dx.doi.org/10.1007/s10973-018-7663-3>.
- Li, Y., Gao, H., Wang, C., Zhang, X., & Zhou, H. (2018). One-step fabrication of chitosan-Fe (OH) 3 beads for efficient adsorption of anionicdyes. *International journal of biological macromolecules*, 117, 30-41. <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2018.05.137>.
- Lin, S. H. (1993). Adsorption of disperse dye byvarious adsorbents. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, 58(2), 159-163. <https://doi.org/10.1002/jctb.280580209>.

- Mahida, V. P., & Patel, M. P. (2016). Removal of heavy metal ions from aqueous solution by süperabsorbent poly (NIPAAm/DAPB/AA) amphoteric nanohydrogel. *Desalination and Water Treatment*, 57(29), 13733-13746. <https://doi.org/10.1080/19443994.2015.1060171>.
- Mahmoodi, N. M., & Arami, M. (2009). Numerical finite volume modeling of dye decolorization using immobilized titania nanophoto catalysis. *Chemical Engineering Journal*, 146(2), 189-193. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2008.05.036>.
- Müller, F., Ferreira, C. A., Franco, L., Puiggali, J., Aleman, C., & Armelin, E. (2012). New sulfonated polystyrene and styrene–ethylene/butylene–styrene block copolymers for applications in electrodialysis. *The Journal of Physical Chemistry B*, 116(38), 11767-11779. <https://doi.org/10.1021/jp3068415>.
- Ngulube, T., Gumbo, J. R., Masindi, V., & Maity, A. (2017). An update on synthetic dyes adsorption onto clay based minerals: A state-of-art review. *Journal of environmental management*, 191, 35-57. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2016.12.031>.
- Nicolet, L., & Rott, U. (1999). Recirculation of powdered activated carbon for the adsorption of dyes in municipal waste water treatment plants. *Water science and technology*, 40(1), 191-198. [https://doi.org/10.1016/S0273-1223\(99\)00380-7](https://doi.org/10.1016/S0273-1223(99)00380-7).
- Okumuş, Z. Ç., & Doğan, T. H. (2019). Biyodizeldeki suyun reçine ile uzaklaştırılması: adsorpsiyon izotermi, kinetiği ve termodinamik incelemesi. *Avrupa Bilim ve Teknoloji Dergisi*, (15), 561-570. <https://doi.org/10.31590/ejosat.535977>.
- Omidi, S., & Kakanejadifard, A. (2018). Eco-friendly synthesis of graphene–chitosan composite hydrogel as efficient adsorbent for Congo red. *RSC advances*, 8(22), 12179-12189. <https://doi.org/10.1039/C8RA00510A>.
- Oruç, S. (2023). İletken hidrojel kompozitlerin sentezlenmesi ve karakterizasyonu, (Yayın no: 800048). [Yüksek Lisans Tezi, Malatya İnönü Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.
- Öncel, K. (2022). Polimerizasyon ve modifikasyonla multifonksiyonel polimerik reçine sentezi: Sulu çözeltilerden asidik ve bazik boyaların adsorpsiyonu, (Yayın no: 716610), [Yüksek Lisans Tezi, Yozgat Bozok Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.

- Özcan, N.(2014), Lipaz immobilize edilmiş poliakrilamit hidrojellerinin şişme, aktivite ve salım davranışlarının incelenmesi, (Yayın no: 374734), [Yüksek Lisans Tezi Yalova Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.
- Özyürek, C.(2003), Maleik Asit ve İtanoik Asit Esaslı Poli(2-Hidroksietil Metakrilat) Hidrojellerinin Hazırlanması, Karakterizasyonu ve Uranil İyonlarının Adsorpsiyonunda Kullanımı, (Yayın No: 133466), [Doktora Tezi, Ankara Gazi Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.
- Palantöken, S. (2015), A study on halloysitereinforcedchitosanhydrogelnanocomposites: Synthesis, characterization&dyeadsorptionproperties, (Yayın no: 410496), [Yüksek Lisans Tezi, İstanbul Boğaziçi Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.
- Philippova, O. E. (2000). Responsive polymergels. *Polyme rScience Series CC/C of Vysoko molekuliarnye Soedineniia*, 42(2), 208-228. https://www.researchgate.net/publication/284814275_Responsive_polymer_gel_s.
- Pradhan, A. C., Paul, A., &Rao, G. R. (2017). Sol-gel-cum-hydro thermal synthesis of mesoporous Co-Fe@ Al₂O₃– MCM-41 for methylene blue remediation. *Journal of Chemical Sciences*, 129, 381-395. <http://dx.doi.org/10.1007/s12039-017-1230-5>.
- Putra, E. K., Pranowo, R., Sunarso, J., Indraswati, N., & Ismadji, S. (2009). Performance of activated carbon and bentonite for adsorption of amoxicillin from waste water: mechanisms, isotherms and kinetics. *Waterre search*, 43(9), 2419-2430. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2009.02.039>.
- Salleh, M. A. M., Mahmoud, D. K., Karim, W. A. W. A., & Idris, A. (2011). Cationic and anionic dye adsorption by agricultural solid wastes: a comprehensive review. *Desalination*, 280(1-3), 1-13. <https://doi.org/10.1016/j.desal.2011.07.019>.
- Sanjuan, S., & Tran, Y. (2008). Stimuli-responsive interfaces using random polyampholyte brushes. *Macromolecules*, 41(22), 8721-8728. <https://doi.org/10.1021/ma8018798>
- Sarıkaya, A. G. (2019). Direct Blue 2 diazo-boyarmaddesinin sulu çözeltiden P (HEMA) nanopartiküller ile uzaklaştırılması. *Balıkesir Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi*, 21(1), 278-294.<https://doi.org/10.25092/baunfbed.546653>.

- Sarmah, D., & Karak, N. (2020). Double network hydrophobic starch based amphoteric hydrogel as an effective adsorbent for both cationic and anionic dyes. *Carbohydrate polymers*, 242, 116320. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2020.116320>.
- Saygılı, H. (2015). Bazı Bitkisel Posalardan Nanogözenekli Aktif Karbonlar Üretilmesi ve Bazı Adsorpsiyon Uygulamalarında Kullanılabilirliğinin İncelenmesi, (Yayın no: 392584), [Doktora Tezi, Diyarbakır Dicle Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.
- Shahir, S. (2015). Antimikrobiyal Ajan Salan Hidrojel Bazlı Doku Genişleticilerin Geliştirilmesi, (Yayın no: 415214), [Yüksek Lisans Tezi, Ankara Hacettepe Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.
- Shukla, N. B., Rattan, S., & Madras, G. (2012). Swelling and dye-adsorption characteristics of an amphoteric superabsorbent polymer. *Industrial & engineering chemistry research*, 51(46), 14941-14948. <https://doi.org/10.1021/ie301839z>.
- Shukla, N.B., & Madras, G. (2013). Adsorption of anionic dyes on a reversibly swelling cationic superabsorbent polymer. *Journal of applied polymer science*, 127(3), 2251-2258. <https://doi.org/10.1002/app.37929>.
- Tekneci, E. (2019). Preparation of poly(3 – sulfopropylmethacrylate –co- 2-(diethylamino) ethylmethacrylate) hydrogels for removal of dyes from water, (Yayın no: 558709). [Yüksek Lisans Tezi, İstanbul Teknik Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.
- Tezcan, M.(2013), Fotokatalitik özellikli TiO₂/Polimerik jel kompozit yapıların üretilmesi ve atık suların arıtımında kullanılabilirliği, (Yayın no: 343611), [Yüksek Lisans Tezi, Muğla Sıtkı Koçman Üniversitesi], YÖK Tez Merkezi.
- Tosun, E., Boztepe, C., Baysar, A., & Künkül, A. (2019). Asidik boyaların poli (akrilamid-vinilimidazol) hidrojel kullanılarak atık sulardan giderimi. *Pamukkale Üniversitesi Mühendislik Bilimleri Dergisi*, 25(8), 914-921. <https://dx.doi.org/10.5505/pajes.2019.13914>.
- Üzüm, Ö. B., & Karadağ, E. (2007). Swelling characterization of novel ternary semi-IPNs: acrylamide/1-vinylimidazole/PEG hydrogels. *Polymers for Advanced Technologies*, 18(6), 483-489. <https://doi.org/10.1002/pat.908>.

- Xie, Y., & Wang, A. (2009). Effects of modified vermiculite on water absorbency and swelling behavior of chitosan-g-poly (acrylicacid)/vermiculite superabsorbent composite. *Journal of composite materials*, 43(21), 2401-2417. <http://dx.doi.org/10.1177/0021998309344644>.
- Yagub, M. T., Sen, T. K., Afroze, S., & Ang, H. M. (2014). Dye and its removal from aqueous solution by adsorption: a review. *Advances in colloid and interface science*, 209, 172-184. <https://doi.org/10.1016/j.cis.2014.04.002>.
- Yan, H., & Jin, B. (2012). Influence of environmental solution pH and microstructural parameters on mechanical behavior of amphoteric pH-sensitive hydrogels. *The European Physical Journal E*, 35, 1-11. <https://doi.org/10.1140/epje/i2012-12036-Z>.
- Yan, J., & Li, K. (2021). A magnetic allyrecyclable polyampholyte hydrogel adsorbent functionalized with β -cyclodextrin and graphene oxide for cationic/anionic dyes and heavy metal ion waste water remediation. *Separation and Purification Technology*, 277, 119469. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2021.119469>.
- Yang, K. K., Wang, X. L., Wang, Y. Z., Wu, B., Jin, Y. D., & Yang, B. (2003). Kinetics of thermal degradation and thermal oxidative degradation of poly (p-dioxanone). *European polymer journal*, 39(8), 1567-1574. [https://doi.org/10.1016/S0014-3057\(03\)00052-1](https://doi.org/10.1016/S0014-3057(03)00052-1).
- Zauro, S. A., & Vishalakshi, B. (2017). Amphoteric gellan gum-based terpolymer-montmorillonite composite: synthesis, swelling, and dye adsorption studies. *International Journal of Industrial Chemistry*, 8, 345-362. <https://doi.org/10.1007/s40090-017-0126-z>.
- Zhao, Y., Yang, Y., Yang, X., & Xu, H. (2006). Preparation and pH-sensitive swelling behavior of physically crosslinked polyampholyte gels. *Journal of applied polymer science*, 102(4), 3857-3861. <https://doi.org/10.1002/app.24877>.



**T.C.
YOZGAT BOZOK ÜNİVERSİTESİ
LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ**