

**T.C.
ADNAN MENDERES ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ
KİMYA ANABİLİM DALI
2016-YL-032**

**ZEOLİT İÇEREN YENİ BİYOHİBRİT
HİDROJELLERİN HAZIRLANIŞI,
KARAKTERİZASYONU VE BİYOPOTANSİYEL
KULLANIM ÖZELLİKLERİ**

Belgin YEL

**DANIŞMAN
Prof. Dr. Erdener KARADAĞ**

AYDIN – 2016

T.C.
ADNAN MENDERES ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ MÜDÜRLÜĞÜNE
AYDIN

Kimya Anabilim Dalı Yüksek Lisans Programı öğrencisi Belgin YEL tarafından hazırlanan “Zeolit İçeren Yeni Biyohibrit Hidrojellerin Hazırlanışı, Karakterizasyonu ve Biyopotansiyel Kullanım Özellikleri” başlıklı tez, 20 Haziran 2016 tarihinde yapılan savunma sonucunda aşağıda isimleri bulunan jüri üyelerince kabul edilmiştir.

	Ünvanı, Adı Soyadı	Kurumu	İmza
Başkan:	Prof. Dr. Erdener KARADAĞ	ADÜ	
Üye:	Yrd. Doç. Dr. Elif VARGÜN	MSKÜ	
Üye:	Doç. Dr. Ömer Barış ÜZÜM	ADÜ	

Jüri üyeleri tarafından kabul edilen bu Yüksek lisans tezi, Enstitü Yönetim KurulununSayılı kararıyla tarihinde onaylanmıştır.

Prof. Dr. Aydın ÜNAY
Enstitü Müdürü

T.C.
ADNAN MENDERES ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ MÜDÜRLÜĞÜNE
AYDIN

Bu tezde sunulan tüm bilgi ve sonuçların, bilimsel yöntemlerle yürütülen gerçek deney ve gözlemler çerçevesinde tarafımdan elde edildiğini, çalışmada bana ait olmayan tüm veri, düşünce, sonuç ve bilgilere bilimsel etik kuralların gereği eksiksiz olarak uygun atıf yaptığımı ve kaynak göstererek belirttiğimi beyan ederim.

/ /2016

Belgin YEL

ÖZET

ZEOLİT İÇEREN YENİ BİYOHİBRİT HİDROJELLERİN HAZIRLANIŞI, KARAKTERİZASYONU ve BİYOPOTANSİYEL KULLANIM ÖZELLİKLERİ

Belgin YEL

Yüksek Lisans Tezi, Kimya Anabilim Dalı
Tez Danışmanı: Prof. Dr. Erdener KARADAĞ
2016, 176 sayfa

Bu çalışmada, akrilamid monomeri ile birlikte yardımcı monomer olarak sodyum vinilsülfonat, zeolit ve doğal bir polimer olan sodyum karboksimetil selüloz kullanılarak yeni biyohibrit hidrojel sentezlenmiştir. Çalışmada elde edilen polimerik örnekler, poli(etilen glikol) diakrilat gibi bir çapraz bağlayıcı kullanılarak çözelti ortamında serbest radikalik polimerleşme tepkimesi ile hazırlanmıştır. Tepkimede başlatıcı olarak amonyum persülfat, hızlandırıcı olarak N,N,N',N' -tetrametiletilendiamin kullanılmıştır. Kimyasal çapraz bağlı polimerlerin yapısal karakterizasyonu Fourier Transform İnfrared Spektroskopisi (Azalan tam yansıma özellikli) (FT-IR/ATR) analizi ile yapılmıştır. Elde edilen çapraz bağlı biyohibrit hidrojel ve semi-IPN hidrojellerin su/sıvı soğurum faktörlerini araştırmak amacıyla 25°C'da dinamik su/sıvı soğurum testleri uygulanmıştır. Elde edilen veriler yardımıyla su/sıvı soğurum faktörü ve geçirim mekanizması ile ilgili parametreler hesaplanmıştır. Biyohibrit hidrojel ve semi-IPN hidrojellerin yüzey gözenekliliği hakkında bilgi edinebilmek için SEM mikrografları alınmıştır. Çapraz bağlı biyohibrit hidrojel ve semi-IPN hidrojellerin boya uzaklaştırma performanslarının araştırılması amacıyla, model molekül olarak metil viyole seçilmiştir. Çalışma sonunda sentezlenen biyohibrit ve semi-IPN hidrojellerin metil viyole boyarmaddesini sulu çözeltilerden yüksek oranda soğurdukları belirlenmiştir.

Anahtar Sözcükler: Akrilamid, biyohibrit, zeolit, sodyum karboksimetil selüloz, hidrojel, metil viyole, boya uzaklaştırma, soğurum, geçirim, sodyum vinilsülfonat.

ABSTRACT

PREPARATION, CHARACTERIZATION and BIOPOTENTIAL USING PROPERTIES of NEW BIOHYBRID HYDROGELS CONTAINING ZEOLITE

Belgin YEL

M.Sc. Thesis, Department of Chemistry
Supervisor: Prof. Dr. Erdener KARADAĞ
2016, 176 pages

In this study, it was synthesized that the new biohybride hydrogels by using acrylamide monomer, sodium vinylsulfonate as a comonomer, zeolite and a natural polymer such as sodium carboxymethyl cellulose. Polymeric hydrogels were prepared by free radical polymerization in aqueous solution using poly (ethylene glycol) diacrylate as a crosslinker. Structural characterization of prepared chemically crosslinked polymers were tried to determine by using Fourier Transform Infrared Spectroscopy/Attenuated Total Reflectance (FT-IR/ATR). SEM micrographs were taken for determination of surface porosity of hydrogel systems. Dynamic water/liquid sorption tests were applied at 25°C for the purpose of investigation of water/liquid sorption properties of biohybride hydrogels and semi-IPN hydrogels. According to obtained data, parameters concerning swelling kinetics and diffusion mechanism were calculated. A cationic dye such as methyl violet was selected as model molecule to investigate of adsorption properties of biohybrid hydrogels and semi-IPN hydrogels. It was determined that crosslinked biohybrid hydrogels and semi-IPN hydrogels have adsorbed dye of methyl violet from aqueous solutions in high level.

Key Words: Acrylamide, biohybrid, zeolite, sodium carboxymethyl cellulose, hydrogel, methyl violet, dye removal, sorption, diffusion, sodium vinylsulfonate.

ÖNSÖZ

Değişik özelliklere sahip malzemelerin bilinen iyi özelliklerini yeni ve tek bir malzemede toplamak amacıyla, iki veya daha fazla mikro veya makro bileşenin karışımı veya birleşimiyle oluşan malzemelere “kompozit malzemeler” denmektedir. Bu kompozit grubu malzemelere değişik özellikler katmak için zeolit mineralleri ile çapraz bağlı polimerin değişik özellikleri birleştirilerek polimer biyohibrit kompozit sistemler oluşturulabilir.

Hidrofilik polimerler olarak da adlandırılan hidrojeller ve bazı iç içe geçmiş ağ yapılı sistemler, yüksek oranda su tutma kapasiteleri, canlı dokulara olan uyumluluğu nedeni ile adsorpsiyon için oldukça uygun sistemlerdir. Bu çalışmada, doğal ve yapay polimerlerin kullanılması ile akrilamid esaslı semi-IPN ve biyohibrit hidrojeller üretilerek spektroskopik ve SEM analizleri, su/sıvı soğurum karakterizasyonları yapılmış, seçilen bir boyarmaddenin sulu çözelti ortamından uzaklaştırılması ile parametreler hesaplanarak incelenmiştir.

Lisansüstü eğitimim süresince ve tez çalışmalarımın planlanıp yürütülmesinde büyük titizlik, sabır ve özveriyle destek olan, çalışmalarımın her aşamasında beni yönlendiren yol gösteren, bilgi ve tecrübelerini paylaşmaktan çekinmeyen danışman hocam Sayın Prof. Dr. Erdener KARADAĞ’a teşekkürlerimi sunarım.

Tez çalışmalarımı yürütebilmek için ihtiyaç duyduğum olanakları bana sağlayan Adnan Menderes Üniversitesi Fen-Edebiyat Fakültesi Kimya Bölümü’ne ve FEF 15038 no’lu araştırma projeme kaynak sağlayan Adnan Menderes Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Komisyonu’na teşekkür ederim.

Tez çalışmalarım sırasında yardımlarını esirgemeyen Sayın Doç. Dr. Ömer Barış ÜZÜM ve Arş. Gör. Dr. Semiha KUNDAKCI’ya, uzun laboratuvar çalışmalarım sırasında hep yanımda olan ve geçen iki yılı daha keyifli kılan sevgili arkadaşım Ebru YURDAKUL’a çok teşekkür ederim.

FT-IR analizleri için, Çanakkale Onsekiz Mart Üniversitesi Nanobilim ve Teknoloji Araştırma Uygulama Merkezi Müdürü Sayın Prof. Dr. Nurettin ŞAHİNER’e ve SEM mikrografların alındığı, İzmir Yüksek Teknoloji Enstitüsü (İYTE) Malzeme Araştırma Merkezi Müdürlüklerine teşekkür ederim.

Hayatımın her anında olduğu gibi lisansüstü eğitimim sırasında da her konuda desteklerini, sevgilerini ve sabırlarını benden esirgemeyen babam İnan YEL, annem Nesrin YEL ve ablam Yeliz ANALIOĞLU’na sonsuz teşekkür ederim.

Belgin YEL

İÇİNDEKİLER

KABUL VE ONAY SAYFASI.....	iii
BİLİMSEL ETİK BİLDİRİM SAYFASI.....	v
ÖZET.....	vii
ABSTRACT.....	ix
ÖNSÖZ.....	xi
KISALTMALAR VE SİMGELER DİZİNİ.....	xvii
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	xxi
ÇİZELGELER DİZİNİ	xxxiii
EKLER DİZİNİ.....	xxxv
1. GİRİŞ.....	1
2. KAYNAK ÖZETLERİ.....	6
2.1. Zeolitler.....	6
2.1.1. Bilinen Zeolitler.....	8
2.2. Kompozit Malzemeler.....	10
2.3. Polimer Biyohibrit Kompozitler.....	11
2.3.1. Polimer Biyohibrit Kompozitlerin Kullanım Alanları.....	11
2.4. Hidrojeller.....	12
2.4.1. Hidrojellerin Sınıflandırılması.....	13
2.4.2. Hidrojellerin Kullanım Alanları.....	14
2.4.3. İç İç Geçmiş Ağ Yapılı Polimerik Hidrojeller (IPN).....	15
2.4.3.1. IPN'lerin Sınıflandırılması.....	15
2.4.4. Semi-IPN Oluşumunda Kullanılan Polimerler.....	15
2.4.5. Polisakkaritler.....	16
2.4.5.1. Karboksimetil selüloz (CMC).....	16
2.5. Hidrojel Sentezi.....	17

2.6. Hidrojellerde Su/Sıvı Soğurumu ve Geçirim.....	19
2.7. Hidrojellerde Karakterizasyon.....	19
2.7.1. Spektroskopik Karakterizasyon.....	20
2.7.2. Sem Analizi.....	20
2.7.3. Su/Sıvı Soğurum Karakterizasyonu.....	20
2.7.4. Geçirim.....	22
2.8. Su Kirliliği ve Çevre	23
2.8.1. Kirli suların arıtılması	24
2.9. Adsorpsiyon.....	24
2.9.1. Adsorpsiyon Türleri.....	25
2.9.2. Adsorpsiyon İzotermi.....	26
2.9.3. Denge Adsorpsiyon Çalışmaları.....	27
2.9.4. Sulu Ortamlardan Boyarmadde Uzaklaştırılması.....	28
3. MATERYAL VE YÖNTEM.....	29
3.1. Kullanılan Kimyasallar.....	29
3.2. Polimerik Örneklerin Hazırlanması.....	31
3.2.1. Hidrojel ve yarı-IPN'lerin Sentezi.....	31
3.3. Polimerik Örneklerin Karakterizasyonu.....	34
3.3.1. Spektroskopik Karakterizasyon.....	35
3.3.2. Su/Sıvı Soğurum Karakterizasyonu.....	35
3.3.2.1. Farklı Su-Çözücü Karışımlarında Sıvı Soğurum Çalışmaları.....	35
3.3.3. SEM Analizi.....	36
3.3.4. Boyarmadde Soğurumu.....	36

4. BULGULAR VE TARTIŞMA.....	38
4.1. Çapraz Bağlı Polimerlerin Hazırlanması.....	38
4.2. Spektroskopik Karakterizasyon.....	42
4.3. Su/Sıvı Soğurum Faktörü.....	46
4.3.1. Dinamik Su/Sıvı Soğurum Çalışmaları.....	46
4.3.1.1. Dengede Su/Sıvı Soğurumu.....	46
4.3.2. Su Soğurumuna Yardımcı Monomer (SVS) Etkisi.....	80
4.3.3. Dengede Su/Sıvı Tutma Kapasitesi (DSTK).....	81
4.3.3.1. Farklı Çözücü-su karışımlarında DSTK değişimi.....	83
4.3.4. Hidrojel Sistemlerde Su/sıvı Soğurum Kinetiği.....	84
4.3.4.1. Farklı Çözücü-Su Karışımlarında Sıvı Soğurum Kinetiği.....	90
4.3.5. Suyun Geçirimi.....	105
4.3.5.1. Farklı Çözücü-Su Karışımlarında Sıvının Geçirimi.....	111
4.3.6. Hidrojel sistemlerde Su/Sıvı Soğurum Hız Katsayısı.....	125
4.3.6.1. Farklı Su-Çözücü Karışımlarında Su/Sıvı Soğurum Hız Katsayısı.....	130
4.4. Sem Çalışmaları.....	141
4.5. Yüzeye Soğurum.....	147
5. SONUÇ.....	156
KAYNAKLAR.....	161
EKLER.....	173
ÖZGEÇMİŞ.....	175

KISALTMALAR VE SİMGELER DİZİNİ

AAm	Akrilamid
AAm/SVS	Akrilamid/sodyum vinilsülfonat
AAm/SVS/CMC	Akrilamid/sodyum vinilsülfonat/ karboksimetil selüloz
AAm/SVS/ZEO	Akrilamid/sodyum vinilsülfonat/zeolit
AAm/SVS/CMC/ZEO	Akrilamid/sodyum vinilsülfonat/karboksimetil selüloz/zeolit
APS	Amonyum persülfat
ASE-su	%60'lik aseton-su karışımı
%BS	Yüzde boya soğurum
C	Çözeltinin başlangıç derişimi
C _b	Hidrojel tarafından soğurulan boyanın derişimi
cm	Santimetre
C _s	Çözeltinin denge derişimi
CMC	Sodyum karboksimetil selüloz
D	Geçirim katsayısı
dak	Dakika
dS/dt	Su/sıvı soğurum hızı
DSTK	Dengede su/sıvı tutma kapasitesi
F	Su/sıvı soğurum kesri
FT-IR	Fourier transform infrared spektroskopisi
g	Gram
k	Geçirim sabiti
K _d	Dağılma katsayısı
k _s	Su/sıvı soğurum hız sabiti
k _{ss}	Su/sıvı soğurum hız katsayısı

MV	Metil violet (Basic violet 1)
m	Metre
M	Molar (mol dm^{-3})
M_d	Dengedeki jelin içerdği su/sıvı kütlesi
mg	Miligram
mL	Mililitre
mm	Milimetre
mmol	Milimol
M_n	Sayıcı ortalama mol kütlesi
M_t	t anında jelin içerdği su/sıvı miktarı
MET-su	%60'lık metanol-su karışımı
n	Geçirim üsteli
nm	Nanometre
PEGDA	Poli(etilen glikol) diakrilat
q	1,0 g hidrojelinde boya uzaklaştırma performansı
r	Su/sıvı soğurulmuş jelin yarıçapı
r_0	Başlangıç su/sıvı soğurum hızı
S	t anındaki su/sıvı soğurum faktörü
S_d	Dengede su/sıvı soğurum faktörü
SEM	Taramalı elektron mikroskobu (<i>Scanning Electron Microscopy</i>)
S_{mak}	Jelin denge anındaki (teorik) su/sıvı soğurumu
SVS	Sodyum vinil sülfonat
t	Süre (dakika)
TEMED	<i>N,N,N',N'</i> -Tetrametiletildiamin
THF-su	%60'lık tetrahidrofur-an-su karışımı

v	Hacim (L)
W_d	Dengedeki (su/sıvı soğurulmuş) polimerin kütlesi
W_t	t süre sonraki su/sıvı soğurulmuş polimer kütlesi
W_0	Kuru polimer kütlesi
ZEO	Zeolit
λ_{mak}	Maksimum dalga boyu
π	pi sayısı, (3,141592654)

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 2.1. SiO_4 veya AlO_4 dörtyüzlülerinin kimyasal formülleri ve zeolit yapısında temel yapı birimi	7
Şekil 2.2. Mikro gözenekli yapısıyla zeolit molekülü	7
Şekil 2.3. Klinoptilolit	9
Şekil 2.4. Natrolit	9
Şekil 2.5. Hidrojel yapısı	12
Şekil 2.6. Polimerik bir ağ yapıdaki çapraz bağlar	13
Şekil 2.7. Sodyum karboksimetil selülozun kimyasal yapısı	17
Şekil 2.8. Çapraz bağlı polimerlerin sentezinde görülebilecek üç durumun şematik gösterimi	18
Şekil 3.1. Çalışmada kullanılan ZEO'nun görünümü	29
Şekil 3.2. Polimerik örneklerin hazırlanma şeması	34
Şekil 3.3. Çapraz bağlı hidrojellerin şişme çalışmalarında kullanımı	35
Şekil 3.4. Çapraz bağlı hidrojellerin boyar madde soğurumu	37
Şekil 4.1. AAm (Akrilamid) monomeri ve SVS (sodyum vinilsülfonat) yardımcı monomerinin kimyasal yapısı	9
Şekil 4.2. a) Poli(etilen glikol) diakrilat'ın kimyasal yapısı ve bağlanma noktaları, b) Amonyum persülfat ve TEMED'in kimyasal formülleri	39
Şekil 4.3. APS/TEMED ile serbest radikal oluşumunun şematik gösterimi	40
Şekil 4.4. AAm/SVS kopolimerlerinin olası polimerleşme mekanizması	41
Şekil 4.5. AAm monomerinin FT-IR spektrumu	42
Şekil 4.6. SVS yardımcı monomerinin FT-IR spektrumu	42
Şekil 4.7. CMC polisakkaritinin FT-IR spektrumu	43
Şekil 4.8. ZEO mineralinin FT-IR spektrumu	43
Şekil 4.9. AAm/SVS hidrojellerinin FT-IR spektrumları	44
Şekil 4.10. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinin FT-IR spektrumları	44

Şekil 4.11. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin FT-IR spektrumları	45
Şekil 4.12. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin FT-IR spektrumları ..	45
Şekil 4.13. AAm/SVS hidrojenlerinin su/sıvı soğurum izotermi.....	47
Şekil 4.14. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin su/sıvı soğurum izotermi..	47
Şekil 4.15. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin su/sıvı soğurum izotermi...	48
Şekil 4.16. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin su/sıvı soğurum izotermi	48
Şekil 4.17. AAm/SVS hidrojenlerinin kuru ve suda şişmiş görünümleri.....	49
Şekil 4.18. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve suda şişmiş görünümleri	50
Şekil 4.19. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin kuru ve suda şişmiş görünümleri.....	50
Şekil 4.20. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve suda şişmiş görünümleri.....	51
Şekil 4.21. AAm/SVS hidrojenlerinin ve AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve suda şişmiş görünümleri	51
Şekil 4.22. AAm/SVS hidrojenlerinin ve AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin kuru ve suda şişmiş görünümleri	52
Şekil 4.23. AAm/SVS hidrojenlerinin ve AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve suda şişmiş görünümleri.....	52
Şekil 4.24. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin su/sıvı soğurum izotermi.....	53
Şekil 4.25. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin su/sıvı soğurum izotermi.....	53
Şekil 4.26. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve suda şişmiş görünümleri	54
Şekil 4.27. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin kuru ve suda şişmiş görünümleri	55

Şekil 4.28. AAm/SVS hidrojenlerinin ASE-su'da dinamik sıvı soğurum İzotermi..	56
Şekil 4.29. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin ASE-su'da dinamik sıvı soğurum izotermi	56
Şekil 4.30. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin ASE-su'da dinamik sıvı soğurum izotermi	57
Şekil 4.31. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin ASE-su'da dinamik soğurum izotermi	57
Şekil 4.32. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin ASE-su'da dinamik sıvı soğurum izotermi	58
Şekil 4.33. Farklı CMC içeriğine sahip semi-IPN hidrojenlerinin ASE-su'da dinamik sıvı soğurum izotermi	58
Şekil 4.34. AAm/SVS hidrojenlerinin kuru ve ASE-su'da şişmiş görünümleri	59
Şekil 4.35. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve ASE-su'da şişmiş görünümleri	59
Şekil 4.36. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin kuru ve ASE-su'da şişmiş görünümleri	60
Şekil 4.37. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve ASE-su'da şişmiş görünümleri	60
Şekil 4.38. AAm/SVS hidrojenlerinin ve AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve ASE-su'da şişmiş görünümleri	61
Şekil 4.39. AAm/SVS hidrojenlerinin ve AAm/SVS/CMC biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve ASE-su'da şişmiş görünümleri	61
Şekil 4.40. AAm/SVS hidrojenlerinin ve AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve ASE-su'da şişmiş görünümleri	62
Şekil 4.41. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve ASE-su'da şişmiş görünümleri	62
Şekil 4.42. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin kuru ve ASE-su'da şişmiş görünümleri	63
Şekil 4.43. AAm/SVS hidrojenlerinin MET-su'da dinamik sıvı soğurum İzotermi.	63

Şekil 4.44. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinin MET-su'da dinamik sıvı soğurum izotermi	64
Şekil 4.45. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinin MET-su'da dinamik sıvı soğurum izotermi	64
Şekil 4.46. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinin MET-su'da dinamik sıvı soğurum izotermi	65
Şekil 4.47. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinin MET-su'da dinamik sıvı soğurum izotermi	65
Şekil 4.48. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinin MET-su'da dinamik sıvı soğurum izotermi	66
Şekil 4.49. AAm/SVS hidrojellerinin kuru ve MET-su'da şişmiş görünümleri	67
Şekil 4.50. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinin kuru ve MET-su'da şişmiş görünümleri	67
Şekil 4.51. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinin kuru ve MET-su'da şişmiş görünümleri	68
Şekil 4.52. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinin kuru ve MET-su'da şişmiş görünümleri	68
Şekil 4.53. AAm/SVS ve AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinin kuru ve MET-su'da şişmiş görünümleri	69
Şekil 4.54. AAm/SVS ve AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinin kuru ve MET-su'da şişmiş görünümleri	69
Şekil 4.55. AAm/SVS ve AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinin kuru ve MET-su'da şişmiş görünümleri	70
Şekil 4.56. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinin kuru ve MET-su'da şişmiş görünümleri	70
Şekil 4.57. AAm/SVS ve AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinin kuru ve MET-su'da şişmiş görünümleri	71
Şekil 4.58. AAm/SVS hidrojellerinin THF-su'da dinamik sıvı soğurum İzotermi	71
Şekil 4.59. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinin THF-su'da dinamik sıvı soğurum izotermi	72

Şekil 4.60. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin THF-su'da dinamik sıvı soğurum izotermi	72
Şekil 4.61. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin THF-su'da dinamik sıvı soğurum izotermi	73
Şekil 4.62. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin THF-su'da dinamik sıvı soğurum izotermi	73
Şekil 4.63. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin THF-su'da dinamik sıvı soğurum izotermi	74
Şekil 4.64. AAm/SVS hidrojenlerinin kuru ve THF-su'da şişmiş görünümleri	74
Şekil 4.65. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve THF-su'da şişmiş görünümleri	75
Şekil 4.66. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin kuru ve THF-su'da şişmiş görünümleri	75
Şekil 4.67. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve THF-su'da şişmiş görünümleri	76
Şekil 4.68. AAm/SVS hidrojenlerinin ve AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve THF-su'da şişmiş görünümleri	76
Şekil 4.69. AAm/SVS hidrojenlerinin ve AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin kuru ve THF-su'da şişmiş görünümleri	77
Şekil 4.70. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve THF-su'da şişmiş görünümleri	77
Şekil 4.71. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin kuru ve THF-su'da şişmiş görünümleri	78
Şekil 4.72. Çalışmada üretilen hidrojel sistemlerde Sd değerlerinin SVS içeriği ile değişimi	81
Şekil 4.73. AAm/SVS hidrojenlerinin su soğurum kinetiği eğrileri	85
Şekil 4.74. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin su soğurum kinetiği eğrileri	86
Şekil 4.75. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin su soğurum kinetiği eğrileri	86

Şekil 4.76. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin su soğurum kinetiği eğrileri.....	87
Şekil 4.77. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin su soğurum kinetiği eğrileri.....	88
Şekil 4.78. Farklı CMC içeriğine sahip semi-IPN hidrojenlerinin su soğurum kinetiği eğrileri.....	88
Şekil 4.79. AAm/SVS hidrojenlerinin ASE-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri....	90
Şekil 4.80. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin ASE-su'da sıvı soğurum kinetiği	91
Şekil 4.81. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin ASE-su'da sıvı soğurum kinetiği	91
Şekil 4.82. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin ASE-su'da sıvı soğurum kinetiği	92
Şekil 4.83. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin ASE-su 'da soğurum kinetiği eğrileri	92
Şekil 4.84. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin ASE-su'da soğurum kinetiği eğrileri	93
Şekil 4.85. AAm/SVS hidrojenlerinin MET-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri...93	
Şekil 4.86. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin MET-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri.....	94
Şekil 4.87. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin MET-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri.....	94
Şekil 4.88. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin MET-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri.....	95
Şekil 4.89. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin MET-su'da sıvı soğurum eğrileri.....	95
Şekil 4.90. Farklı CMC içeriğine sahip AAM/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin MET-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri.....	96
Şekil 4.91. AAm/SVS hidrojenlerinin THF-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri....	96

Şekil 4.92. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin THF-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri.....	97
Şekil 4.93. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin THF-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri.....	97
Şekil 4.94. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin THF-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri.....	98
Şekil 4.95. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin THF-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri.....	98
Şekil 4.96. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin THF-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri.....	99
Şekil 4.97. AAm/SVS hidrojenlerinde lnF-lnt değişimi	105
Şekil 4.98. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinde lnF-lnt değişimi.....	106
Şekil 4.99. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinde lnF-lnt değişimi	106
Şekil 4.100. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinde lnF-lnt değişimi ...	107
Şekil 4.101. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinde lnF-lnt değişimi	109
Şekil 4.102. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinde lnF-lnt değişimi	109
Şekil 4.103. AAm/SVS hidrojenlerinde ASE-su'daki lnF-lnt değişimi.....	111
Şekil 4.104. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinde ASE-su'daki lnF-lnt değişimi.....	111
Şekil 4.105. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinde ASE-su'daki lnF-lnt değişimi.....	112
Şekil 4.106. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinde ASE-su'daki lnF-lnt değişimi.....	112
Şekil 4.107. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinde ASE-su'daki lnF-lnt değişimi	113
Şekil 4.108. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinde ASE-su'daki lnF-lnt değişimi	113
Şekil 4.109. AAm/SVS hidrojenlerinde MET-su'daki lnF-lnt değişimi	114

Şekil 4.110. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinde MET-su'daki $\ln F$ - $\ln t$ değişimi.....	114
Şekil 4.111. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinde MET-su'daki $\ln F$ - $\ln t$ değişimi.....	115
Şekil 4.112. AAm/SVS/CMC/ZEO semi-IPN hidrojellerinde MET-su'daki $\ln F$ - $\ln t$ değişimi.....	115
Şekil 4.113. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinde MET-su'daki $\ln F$ - $\ln t$ değişimi	116
Şekil 4.114. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinde MET-su'daki $\ln F$ - $\ln t$ değişimi	116
Şekil 4.115. AAm/SVS hidrojellerinde THF-su'daki $\ln F$ - $\ln t$ değişimi.....	117
Şekil 4.116. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinde THF-su'daki $\ln F$ - $\ln t$ değişimi.....	117
Şekil 4.117. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinde THF-su'daki $\ln F$ - $\ln t$ değişimi.....	118
Şekil 4.118. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinde THF-su'daki $\ln F$ - $\ln t$ değişimi.....	118
Şekil 4.119. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinde THF-su'daki $\ln F$ - $\ln t$ değişimi	119
Şekil 4.120. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinde THF-su'daki $\ln F$ - $\ln t$ değişimi	119
Şekil 4.121. AAm/SVS hidrojellerinin $-\ln(1-F)$ - t değişimi	125
Şekil 4.122. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinin $-\ln(1-F)$ - t değişimi.....	126
Şekil 4.123. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinin $-\ln(1-F)$ - t değişimi	126
Şekil 4.124. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinin $-\ln(1-F)$ - t değişimi	127
Şekil 4.125. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinin $-\ln(1-F)$ - t değişimi	128
Şekil 4.126. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinin $-\ln(1-F)$ - t değişimi	128

Şekil 4.127. AAm/SVS hidrojellerinde ASE-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi.....	130
Şekil 4.128. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinde ASE-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi.....	130
Şekil 4.129. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinde ASE-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi.....	131
Şekil 4.130. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinde ASE-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi.....	131
Şekil 4.131. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinde ASE-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi	132
Şekil 4.132. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinde ASE-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi	132
Şekil 4.133. AAm/SVS hidrojellerinde MET-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi	133
Şekil 4.134. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinde MET-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi.....	133
Şekil 4.135. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinde MET-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi.....	134
Şekil 4.136. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinde MET-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi.....	134
Şekil 4.137. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinde MET-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi.....	135
Şekil 4.138. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinde MET-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi.....	135
Şekil 4.139. AAm/SVS hidrojellerinde THF-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi.....	136
Şekil 4.140. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinde THF-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi.....	136
Şekil 4.141. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinde THF-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi.....	137
Şekil 4.142. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinde THF-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi.....	137

Şekil 4.143. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinde THF-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi	138
Şekil 4.144. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinde THF-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi	138
Şekil 4.145. Çalışmada kullanılan ZEO'in SEM görüntüsü (x2500).....	141
Şekil 4.146. Çalışmada kullanılan ZEO'in SEM görüntüsü (x40000).....	139
Şekil 4.147. AAm hidrojelinin SEM görüntüsü	142
Şekil 4.148. AAm/SVS hidrojelinin SEM görüntüsü (240 μ L SVS).....	143
Şekil 4.149. AAm/ZEO biyohibrit hidrojelinin SEM görüntüsü.....	143
Şekil 4.150. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojelinin SEM görüntüsü (240 μ L SVS).....	144
Şekil 4.151. AAm/CMC semi-IPN hidrojelinin SEM görüntüsü.....	144
Şekil 4.152. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojelinin SEM görüntüsü(240 μ L SVS).....	145
Şekil 4.153. AAm/CMC/ZEO biyohibrit hidrojelinin SEM görüntüsü.....	145
Şekil 4.154. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojelinin SEM görüntüsü (240 μ L SVS).....	146
Şekil 4.155. AAm/SVS hidrojellerine MV soğurumu.....	148
Şekil 4.156. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerine MV soğurumu	148
Şekil 4.157. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerine MV soğurumu	149
Şekil 4.158. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerine MV soğurumu	149
Şekil 4.159. AAm/SVS hidrojellerinin farklı derişimlerde MV çözeltisindeki görünümleri.....	150
Şekil 4.160. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinin farklı derişimlerde MV çözeltisindeki görünümleri.....	151
Şekil 4.161. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinin farklı derişimlerde MV çözeltisinde görünümleri.....	151
Şekil 4.162. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinin farklı derişimlerde MV çözeltisindeki görünümleri.....	152

- Şekil 4.163. AAm/SVS hidrojellerinin ve AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinin kuru, suda ve MV çözeltisindeki görünüşleri..... 154
- Şekil 4.164. AAm/SVS hidrojellerinin ve AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinin kuru, suda ve MV çözeltisindeki görünüşleri..... 155
- Şekil 4.165. AAm/SVS hidrojellerinin ve AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinin kuru, suda ve MV çözeltisindeki görünüşleri 155



ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 3.1. Biyohibrit hidrojel ve yarı-IPN üretiminde kullanılan kimyasalların formülleri ve kısaltmaları.....	30
Çizelge 3.2. Soğurum çalışmalarında kullanılan MV'nin kimyasal formülü ve bazı özellikleri	30
Çizelge 3.3. Biyohibrit polimerik örneklerin hazırlanmasında kullanılan SVS, CMC ve ZEO içeriklerinin bileşimlerine göre değişimleri.....	34
Çizelge 4.1. Hidrojel sistemlerin sudaki Sd değerleri	49
Çizelge 4.2. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 µL SVS içeren hidrojel sistemlerde Sd değerleri	54
Çizelge 4.3. Hidrojel sistemlerin ASE-su; MET-su ve THF-su'daki Sd değerleri ..	78
Çizelge 4.4. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip 240 µL SVS içeren hidrojel sistemlerin ASE-su; MET-su ve THF-su'daki Sd değerleri	79
Çizelge 4.5. Çalışmada üretilen hidrojel sistemlerin DSTK değerlerinin değişimi ..	82
Çizelge 4.6. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip 240 µL SVS içeren hidrojel sistemlerde DSTK değerleri.....	82
Çizelge 4.7. Çalışmada üretilen hidrojel sistemlerde DSK değeri	83
Çizelge 4.8. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 µL SVS içeren hidrojel sistemlerde DSTK değerleri.....	84
Çizelge 4.9. Hidrojel sistemlerde su soğurum kinetiği ile ilgili parametreler	87
Çizelge 4.10. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip 240 µL SVS içeren hidrojel sistemlerde su soğurum kinetiği ile ilgili parametreler	89
Çizelge 4.11. Hidrojel sistemlerin ASE-su'daki sıvı soğurum kinetiği ile ilgili parametreleri	100
Çizelge 4.12. Hidrojel sistemlerin MET-su'daki sıvı soğurum kinetiği ile ilgili parametreleri	101
Çizelge 4.13. Hidrojel sistemlerin THF-su'daki sıvı soğurum kinetiği ile ilgili parametreleri	102

Çizelge 4.14. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 μ L SVS içeren hidrojel sistemlerde ASE-su; MET-su ve THF-su'daki sıvı soğurum kinetiği ile ilgili parametreleri	103
Çizelge 4.15. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 μ L SVS içeren hidrojel sistemlerde THF-su'da sıvı soğurum kinetiği ile ilgili parametreler	104
Çizelge 4.16. Hidrojel sistemlerde su difüzyonu ile ilgili parametreler	108
Çizelge 4.17. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 μ L SVS içeren hidrojel sistemlerde su difüzyonu ile ilgili parametreler	110
Çizelge 4.18. Hidrojel sistemlerin ASE-su'daki sıvı difüzyonu ile ilgili difüzyon parametreleri	120
Çizelge 4.19. Hidrojel sistemlerin MET-su'daki sıvı difüzyon ile ilgili difüzyon parametreleri	121
Çizelge 4.20. Hidrojel sistemlerin THF-su'daki sıvı difüzyon ile ilgili difüzyon parametreleri	122
Çizelge 4.21. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 μ L SVS içeren hidrojel sistemlerin ASE-su ve MET-su'daki sıvı difüzyonu ile difüzyon parametreleri	123
Çizelge 4.22. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 μ L SVS içeren hidrojel sistemlerin THF-su'daki sıvı difüzyonu ile difüzyon parametreleri	124
Çizelge 4.23. Hidrojel sistemde su/sıvı soğurum hız katsayısı değerleri	127
Çizelge 4.24. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 μ L SVS içeren hidrojel sistemlerde su/sıvı soğurum hız katsayısı değerleri	129
Çizelge 4.25. Hidrojel sistemlerin ASE-su; MET-su ve THF-su'daki su/sıvı soğurum hız katsayısı değerleri	139
Çizelge. 4.26. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 μ L SVS içeren hidrojel sistemlerde su/sıvı soğurum hız katsayısı değerleri	140
Çizelge 4.27. Hidrojel sistemlerde yüzeye soğurum ile ilgili parametreler	153
Çizelge 4.28. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 μ L SVS içeren hidrojellerde yüzeye soğurum ile ilgili parametreler	153

EKLER DİZİNİ

Ek 1. Metil viyole çözeltilerinin denge derişimlerinin hesaplanması için kullanılan çalışma eğrisi.....	173
--	-----



1. GİRİŞ

‘Polimer’ kelimesi, Yunanca çok anlamına gelen ‘polus’ ve parça anlamına gelen ‘meros’ kelimelerinden türetilmiş ‘çok parçalı’ anlamına gelen bir kelimedir. Maddeler, molekül ya da atomlar topluluğu olduğuna göre, polimer kimyasında bu anlam, polimer moleküllerinin belli atom gruplarından oluşan birimlerden oluştuğu anlamını taşımaktadır (Basan, 2015). Polimer kimyası, son zamanlarda malzeme biliminin oldukça gelişen alanlarından biridir. Günümüzde insan yaşamının her alanında kullanılan polimerler yüksek mol kütlesine sahip maddelerdir. Daha önceleri sadece gündelik hayatta kullanılan polimerler, bugün uzay teknolojisi, biyotıp, yapay organ yapımı, tarımsal alanda gübrelerin denetimli salınımı ve benzeri pek çok alanda kullanılmaktadır. Polimerlerin bu kullanım alanlarının ortaya çıkmasıyla yeni özelliklere sahip malzeme tasarımı ve sentezi üzerine yoğun ve çeşitli araştırmalar yapılmıştır (Gooch, 2007; Saçak, 2012; Seçkin, 2015). Polimerler; çok sayıda monomerin kovalent bağlarla birbirlerine bağlanmasıyla elde edilen uzun zincirlerden oluşmuş büyük molekülü malzemelerdir. Polimerler, ucuz, hafif, yeterli mekanik özelliklere sahip, kolay şekillendirilebilen, farklı amaçlarda kullanıma uygun, kimyasal yollarla aşınmaya uğramayan maddelerdir. Bu üstün özelliklerinden dolayı, yalnız kimyacıların değil; makine, tekstil, endüstri ve fizik mühendisliği gibi alanlarda çalışanlarında ilgisini çeken materyallerdir. Aynı zamanda tıp, biyokimya, biyofizik ve moleküler biyoloji açısından da polimerlerin önemi oldukça fazladır (Ođian, 1991; Sperling, 2006; Fontanille, 2008; Gnanou ve Fontanille 2008; Seidel, 2008; Sorenson vd., 2011; Saçak, 2012; Seçkin, 2015).

“Kompozit”, farklı kimyasal yapıdaki iki ya da daha fazla sayıda malzemenin, sınırlarını ve özelliklerini koruyarak oluşturduğu çok fazlı malzeme olarak tanımlanabilir. Dolayısıyla kompozit malzeme, kendisini oluşturan bileşenlerden birinin tek başına sahip olamadığı özelliklere sahip olur. Kompozit malzeme, “matris/matriks” olarak adlandırılan bir malzeme içerisine çeşitli güçlendirici malzemelerin katılmasıyla hazırlanır. Matris olarak çeşitli polimerler, cam, karbon ya da polimerik lifler, bazen de mika ve çeşitli toz seramikler kullanılır (Şahin, 2006; Callister ve Rethwisch, 2014).

Polimer kompozitler, korozyona dirençli, uzun süreli kullanıma yatkın, işlenmeleri kolay, hafif, karmaşık geometrilerde biçimlendirilmeleri kolay, birim kütle başına yük taşıma kapasiteleri yüksek malzemelerdir. Polimer biyohibrit kompozitler

üstün özelliklerinden dolayı değişik alanlarda kullanılmaktadırlar. Üretilmelerindeki ana hedefler; en az çelik kadar sağlam, olabildiğince hafif, yüksek kullanım sıcaklıklarına dayanıklı, ekonomik malzeme üretimidir. İlaç, sağlık, çevre, biyomühendislik, biyoteknoloji gibi birçok alanda yoğun olarak kullanılmaktadırlar (Hull vd., 2004; Chu ve Hsiao, 2009; Baybaş ve Ulusoy, 2011; Nalbantoğlu, 2012; Singhon vd., 2012; Chen vd., 2013; Deng vd., 2013; Dragan ve Loghin, 2013; Aydınoglu vd., 2014; Karadağ vd., 2014 a; 2014; Karadağ vd., 2014 b; Unuabonah ve Taubert, 2014; Bonetto vd., 2015; Nasir vd., 2015; Seçkin, 2015; Karadağ ve Kundakçı, 2015; Kasim, 2016).

Biyohibrit kompozit malzeme üretiminde zeolit, kil ve silikajel gibi soğurucuların, uygulamalardaki zorlukları ve kullanımdaki güçlükleri gidermek için, bunların destek bir yapıya bağlanarak kullanılması uygulamalardaki kolaylığı arttırmıştır. Bu anlamda bazı polimerlerin, zeolit, kil, silikajel ya da polisakkaritlerden oluşan kompoziti oluşturularak kullanım için uygun ve yüksek soğurum yeteneğine sahip biyohibrit kompozitler elde edilebilir (Hull vd., 2004; Sperling, 2006; Navalon vd., 2010; Patrickios, 2010; Nalbantoğlu, 2012; Hasgöl, 2013; Chen vd., 2013; Karadağ vd., 2014 a; Karadağ vd., 2014 b; Doğru ve Abdurrahmanoğlu, 2015; Seçkin, 2015; Kasim, 2016).

Zeolit mineralleri; akrilamid, poliakrilamid, poli(N-izopropilakrilamid), poli(akrilik asit), polianilin, polistiren gibi polimerler ile birlikte birçok çalışmada oldukça fazla kullanılmıştır (Missana vd., 2003; Khoonsap ve Amnuaypanich, 2011; Ajbary vd., 2013; Ngha vd., 2013; Dragan, 2014; Lopes vd., 2014; Panic ve Velickovic, 2014; Rashidzadeh vd., 2014; Allawzi ve Al-Asher, 2015; Dragan ve Dinu, 2015).

Zeolit, alkali ve toprak alkali metallerin hidratlı, doğal alümina silikatlarından oluşan bir gruba verilen addır. Zeolitler; alkali ve toprak alkali elementlerin kristal yapıya sahip alüminyum silikatlarıdır. Zeolitlerin en önemli yapısal özelliği, bu boşlukların birleşmesi ile oluşan kanallardır. Zeolitlerin, geniş uygulama alanları için çok özel kullanımı sağlayan, karakteristik yapısal özellikleri vardır (Humelnicu vd., 2011; Khoonsap ve Amnuaypanich, 2011; Ajbary vd., 2013; Ngha vd., 2013; Dragan, 2014; Lopes vd., 2014; Panic ve Velickovic, 2014; Rashidzadeh vd., 2014; Allawzi ve Al-Asher, 2015; Dragan ve Dinu, 2015).

Hidrojeller, su içerisinde çözünmeden şişebilme özelliğine sahip, çapraz bağlı, üç boyutlu ağ yapılı polimerlerdir. Su içeriği kendi kütlesinden %100 daha fazla olan hidrojeller ‘süper soğurucu’ olarak adlandırılır. Bir polimerin hidrojel olabilmesi için ana zincirinde veya yan dallarında hidroksil, karboksil, karbonil, amin ve amid gibi hidrojen bağı oluşturabilen su sever grupların bulunması gerekmektedir. Son yıllarda hidrojellerin önemi artmakta ve geniş kullanım alanlarına sahip olmaktadır. Hidrojeller, çok iyi su tutabilme, sulu ortamda şişebilme yeteneklerinden dolayı biyoteknoloji, biyomühendislik, biyomedikal bilimler, eczacılık gibi alanlarda kullanılırlar (Kopecek ve Yang, 2007; Sahiner, 2007; Patrickios, 2010; Laftah vd., 2011; Hoffman, 2012; Karadağ vd., 2014 a; Karadağ vd., 2014 b; Antic vd., 2015; Seçkin, 2015; Karadağ ve Kundakçı, 2015; Karadağ ve Kundakçı, 2016; Kasim, 2016).

Mekaniksel olarak dayanıklı polimerlerin geliştirilmesi amacıyla, kendisini oluşturan polimerlerden birisinin ya da tümünün çapraz bağlı olduğu, üç boyutlu ağ yapılar olan ‘İç içe geçmiş ağ yapılı polimerler’ (Interpenetrating Polymer Network, IPN) kullanılabilir. IPN’i oluşturan polimerler arasında kimyasal bağ bulunmaması nedeniyle, her iki bileşen de kendi özelliklerini korur ve aranan şartlara sahip bir yapı oluşturabilir. IPN’i oluşturan polimerlerden bir tanesi düz zincirli yapıda ise bu tür yapılar semi-IPN olarak adlandırılır. Semi-IPN hidrojeller de yapılardan biri çapraz bağ içerirken diğeri içermez. IPN’lerin üretiminde karboksimetil selüloz, sodyum aljinat, ksantan gam, jelatin, kitin, kitosan, guar gum gibi doğal polimerlerin yanında poli(vinil alkol), poli(etilen glikol), poliakrilamid, poli(N-izopropil alkol) gibi yapay polimerlerde kullanılabilir. Bu polimerlerin bir araya gelmesiyle farklı özelliklere sahip IPN yapılar oluşturulabilir (Zhao vd., 2006; Patrickios, 2010; Wang vd., 2010; Bhattacharya vd., 2012; Dragan, 2014; Karadağ vd., 2014 a; Karadağ vd., 2014 b; Kundakçı ve Karadağ, 2014; Karadağ ve Kundakçı, 2015; Peng vd., 2014; Karadağ ve Kundakçı, 2016; Kasim, 2016).

Doğal polimerler olan polisakkaritler, biyoyumluluk, biyobozunurluk, toksik olmama ve çevresel koşullara daha kolay uyum sağlama gibi özelliklerinden dolayı IPN üretiminde fazla kullanılan yapılar olmuşlardır. Son zamanlarda çoğu araştırmacı, karboksimetil selüloz, ksantan gam, jelatin, kitin, kitosan gibi doğal polimerler üzerinde çalışmalar yapmaya başlamışlardır. (Patrickios, 2010; Wu vd., 2010; Kundakçı, 2011; Bhattacharya vd., 2012; Nalbantoğlu, 2012; Bardajee ve Hooshyar, 2013; Bueno vd., 2013; Hasgül, 2013; Dragan, 2014; Kundakçı ve

Karadağ, 2014; Maity ve Ray, 2014; Hu vd., 2015; Karadağ ve Kundakçı, 2015; Karadağ ve Kundakçı, 2016; Kasim, 2016).

Yapılan bu çalışmada ana monomer olarak akrilamid (AAm), yardımcı monomer olarak sodyum vinilsülfonat (SVS) ve doğal polimer olarak karboksimetil selüloz (CMC) kullanılmıştır. AAm nötral yapıda bir monomerdir. Yardımcı monomer olarak seçilen SVS, hidrofilik karakterde bir vinil monomerdir (Pourjavadi ve Ghasemzadeh, 2009; Miyazaki vd., 2009; Chanthateyanonth vd., 2009). Yine bu çalışmada zeolit (ZEO) minerali ve doğal bir polimer olan CMC kullanılarak, çapraz bağlı polimer üretiminde yaygın olarak kullanılan AAm'in ana yapı olarak birlikte oluşturacakları yeni bir polimerik taşıyıcı/soğurucu üretimi, karakterizasyonu ve potansiyel soğurum özelliklerinin araştırılması amaçlanmıştır. CMC iyonik-yükü karakterde semi-IPN sistemlerin üretimi için kullanılacaktır. CMC iyi bir polielektrolittir ve bu yüzden pH ve iyonik güce karşı yeni tasarımlarda kullanılabilir (Sannino vd., 2009; Barbucci vd., 2000; Nalbantoğlu, 2012; Karadağ vd., 2014b; Salama vd., 2015).

ZEO ve CMC içeren akrilamid esaslı yeni bir polimerik adsorban veya taşıyıcı sistem sulu çözelti ortamında serbest radikalik katılma polimerleşmesiyle elde edilmiştir. Radikalik polimerleşme tepkimesini başlatmak amacıyla amonyum persülfat ve tepkimenin hızla ilerlemesini sağlamak amacıyla *N,N,N',N'*-tetrametiletilendiamin kullanılmıştır. Sentezlenen semi-IPN ve biyohibrit hidrojellere 25°C'ta dinamik su/sıvı soğurum testleri uygulanarak su/sıvı soğurum karakterizasyonu gerçekleştirilmiştir. Farklı amaçlarla hazırlanmış, hidrojel sistemlerin suda ve farklı çözücülerde şişme-sıvı soğurum davranışlarının bilinmesi, hidrojellerin kullanım alanlarını belirleyecek önemli özelliklerdendir. Değişik amaçlarda hazırlanmış hidrojel sistemlerin farklı çözücülerde şişme davranışlarının bilinmesi önemlidir. Çözünenin bir çözeltiden geri kazanımı, denetimli ilaç salınım sistemlerindeki uygulamalar, çevre duyarlı membran/yarı geçirgen zarların hazırlanması ve farklı ortamlardaki davranışlarının bilinmesi, hidrojellerin faz dönüşüm uygulamalarında hacim ve diğer bazı fiziksel özelliklerin izlenmesi hidrojellerin değişik çözücülerdeki davranışlarının bilinmesi çok önemlidir (Ilavsky vd., 2002; Orlov vd., 2005; Orakdogan ve Okay 2006; Ganji vd., 2010; Kabiri vd., 2010; Patrickios, 2010; Üzümlü ve Karadağ, 2010; Hofmann, 2012). Bu çalışmada aseton, metanol, tetrahidrofuran gibi üç farklı çözücünün %60'lık sulu çözeltileri hazırlanarak hidrojel sistemlere su/sıvı soğurum karakterizasyonlarının temelleri araştırılmıştır.

Spektroskopik (yapısal) karakterizasyon için FT-IR/ATR spektroskopisinden, gözenek yapısının aydınlatılması amacıyla da SEM tekniğinden yararlanılmıştır.

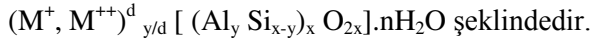
Çalışmanın son bölümünde, semi-IPN ve biyohibrit hidrojellerin sulu ortamlardan boya uzaklaştırma performanslarının araştırılması amacıyla katyonik özellikte bir boyarmadde olan ‘Metil viyole’ model molekül olarak kullanılmıştır. Yapılan çalışmalar sonunda soğurumun temel ilkelerini ortaya koymak amacıyla; yüzde boya soğurumu, boya uzaklaştırma performansı ve dağılma katsayısı gibi soğurum parametreleri hesaplanarak SVS, ZEO ve CMC’nin soğurumu nasıl etkiledikleri araştırılmıştır.

2. KAYNAK ÖZETLERİ

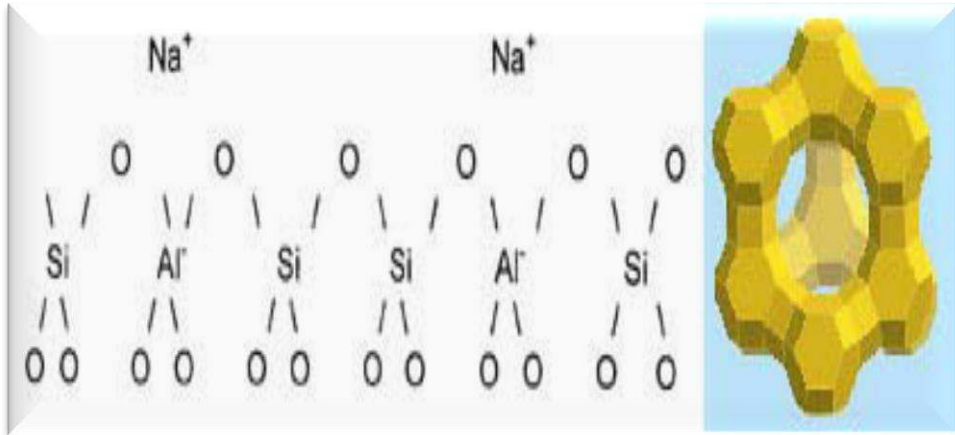
2.1. Zeolitler

Zeolit mineralleri ilk kez İsveçli mineralojist B.Cronstedt tarafından 1756 yılında bulunmuştur. Cronstedt, çeşitli mineral kristallerini ısıttığında bunların toz haline geldiğini ve bu tozların da kaynayan sıvı molekülleri gibi hareket ettiğini gördü. Buradan, Yunanca kaynamak anlamına gelen *zeo* ile taş anlamına gelen *lithos* sözcüklerini birleştirerek kaynayan taş anlamına gelen *zeolit* ismini koydu. Diğer bir tanımlama; Alkali ve toprak alkali metallerin hidratlı, doğal alümino silikatlarından oluşan bir gruba verilen addır. Zeolitler; alkali ve toprak alkali elementlerin kristal yapıya sahip alüminyum silikatlarıdır. SiO_4 ve AlO_4 dörtyüzlülerinin üç boyutta sonsuz bağlanmaları ile oluşan temel silikat yapısına sahiptirler. Yapıdaki her oksijen, iki dörtyüzlü tarafından paylaşılır ve bu şekilde bir zincir oluştururlar. Bu zincirler birbirlerine aralarındaki Na, Ca ve K iyonlarıyla bağlanarak, ortası kanal gibi açık bir yapı oluşturur. Bu boşluk, diğer yabancı iyonlar ve su gibi molekülleri rahatlıkla barındırabilmektedir. Zeolitlerin en önemli yapısal özelliği, bu boşlukların birleşmesi ile oluşan kanallardır (Navalon vd., 2010; Lopes vd., 2014; Allawzi ve Al-Asher, 2015; Sakızcı ve Tanrıverdi, 2015).

Genel yapısal formülleri;

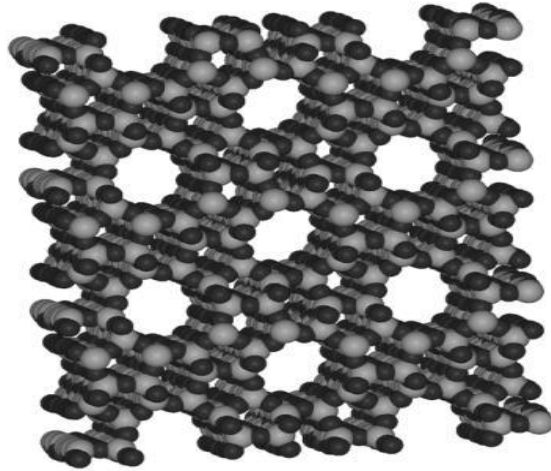


Burada M^+ genellikle Na, K, Li, M^{++} ise genellikle Ca, Mg, Fe, Ba, Sr'dur.



Şekil 2.1. SiO_4 veya AlO_4 dörtyüzlülerinin kimyasal formülleri ve zeolit yapısında temel yapı birimi

Zeolitler kafes şeklindeki yapısı, iyon değişimi ve kimyasal tepkimeler için geniş iç ve dış yüzey alanı oluşturmaktadır. İçindeki gözenekler, hacminin %50 kadarını kapsar. Doğal olarak negatif yüklüdür ve yüksek iyon değiştirme kapasitesine sahiptir. Zeolitler, aynı zamanda moleküler elek (*MOLECULAR SIEVES*) olarak da bilinirler.



Şekil 2.2. Mikro gözenekli yapısıyla zeolit molekülü

Zeolitler, geniş uygulama alanları için spesifik kullanımı sağlayan, karakteristik yapısal özelliklere sahiptir. Bu özellikler yüksek hidrasyon enerjisi, hidrate oldukları zaman sahip oldukları düşük yoğunluk ve boşluk hacmi, kation değişimi özellikleri, dehidrate olmuş kristaller içerisindeki düzgün moleküler boyutlu kanal sistemlerine sahip olması, elektriksel iletkenlik, gaz ve su buharı absorpsiyonu ve katalitik davranışlar şeklinde sıralanabilir (Navalon vd., 2010; Humelnicu vd., 2011; Khoonsap ve Amnuaypanich, 2011; Ajbary vd., 2013; Ngah vd., 2013; Dragan, 2014; Lopes vd., 2014; Panic ve Velickovic, 2014; Rashidzadeh vd., 2014; Allawzi ve Al-Asher, 2015; Dragan ve Dinu, 2015; Sakızcı ve Tanrıverdi, 2015; Zendehtel vd., 2015).

Doğal Zeolitler, bazı volkanik kayalarda boşluk dolguları olarak bulunurlar. Tortul kayalarda ise volkanik camın değişimi ile de oluşurlar. Deniz kökenli tortul kayalarda da zeolitlere rastlanır. Tüm okyanuslarda yaygın zeolit kaynakları vardır (Navalon vd., 2010; Lopes vd., 2014; Allawzi ve Al-Asher, 2015; Sakızcı ve Tanrıverdi, 2015).

2.1.1. Bilinen Zeolitler

Zeolitler literatürde Analsim, Brevsterit, Dakiyardit, Edingtonit, Epistilbit, Eriyonit, Ferriyerit, Filipsit, Foyasit, Gismondit, Gmelinit, Gonardit, Harmotom, Hölandit, Kabazit, Klinoptilolit, Levinit, Lomontit, Mezzolit, Mordenit, Natrolit, Skolesit, Stilbit, Tomsonit, Vairakit, Yugaveralit isimleri ile bilinirler. Burada farklılık oluşturan özellik moleküler formülde yer alan atomların sayı ve pozisyonlarındaki küçük değişikliklerdir. Diğer yandan zeolitin üretildiği bölgeye göre de adlandırmalar yapılabilmektedir.



Şekil 2.3. Klinoptilolit



Şekil 2.4. Natrolit

2.2. Kompozit Malzemeler

Makroskobik olarak birbirinden farklı iki ya da daha fazla malzemenin bir araya getirilmesi ile üretilen malzemeler *kompozit malzemeler* olarak adlandırılır. Bir kompozit malzeme, genelde düşük modül (malzemede biçim değiştirmek üzere uygulanan gerilme) ve dayanıma sahip reçine veya metalik “MATRİKS/MATRİS” ana fazı ile bunun içinde dağılmış daha az oranda kullanılan yan/ikinci/tali fazı olan “TAKVİYE” elemanından oluşmaktadır. Takviye elemanı olarak değişik morfolojiye sahip kısa ve uzun elyaflar, kılcal kristaller (whiskerler), kırılmış veya parçacıklı anorganik katkı maddeleri kullanılmaktadır. Bunların temel fonksiyonu gelen yükü taşımak ve matriksin sertlik (rijitlik) ve dayanımını artırmaktır. Matriksin fonksiyonu ise elyaflara yük ve gerilim transferi sağlayabilmek için elyaf-matriksi birarada tutmak ve çoğu takviye elemanları çok gevrek ve kırılgan olduğundan onların yüzeylerini dış ve çevresel etkilere karşı korumaktır. Matriks kullanımı ayrıca plastiklik (elastik sınırı aşan gerilmelerin malzemeye verdiği kalıcı şekil değiştirme) ve süneklik (kopma noktasında plastik şekil değiştirme) üstünlüğü ile elyaflarda kırılgan çatlakların artarak oluşmasını/yayılmasını önler (Şahin, 2006; Callister ve Rethwisch, 2014).

Kompozit malzemeler, inorganik ve/veya organik bileşenlerin değişik amaçlarla bir arada tasarlanarak ortaya konduğu yeni ve özgün özelliklere sahiptirler. Kompozit malzemelerin hazırlanmasında temel amaç, değişik maddelerin iyi özelliklerini sadece bir üründe birleştirmektedir. Kompozit malzeme üretimi ile yüksek dayanım, yüksek sertlik, mükemmel aşınma direnci, yüksek sıcaklık kapasitesi, iyi korozyon direnci, iyi termal ve ısı iletkenliği, hafif malzeme, ekonomik olma, estetik görünüm gibi yeni özellikler sağlanabilmektedir (Şahin, 2006; Callister ve Rethwisch, 2014).

Kompozit malzemeler yapısal olarak elyaf takviyeli kompozitler, parçacık takviyeli kompozitler, tabakalı kompozitler ve karma kompozitler olarak sınıflandırılabilir. Genel kompozit malzeme türleri üretimlerine göre polimer kompozitler, metal kompozitler, seramik kompozitler ve bilinen diğer kompozit türleri biçiminde sınıflandırılabilir (Şahin, 2006; Callister ve Rethwisch, 2014).

Yeni malzeme üretiminde polimerler/kopolimerler, çapraz bağlı polimerler, iç içe geçmiş ağ yapılı sistemler ve hidrojeller kullanılabilir. Polimer kompozitler,

korozyona dirençli, uzun süreli kullanıma yatkın, işlenmeleri kolay, hafif, karmaşık geometrilerde biçimlendirilmeleri kolay, birim kütle başına yük taşıma kapasiteleri yüksek malzemelerdir. Polimer biyohibrit kompozitler üstün özelliklerinden dolayı değişik alanlarda kullanılmaktadırlar. Bu malzemelerin üretilmelerinde; mekanik özellik, yüksek sıcaklık ve ekonomik özellikler ön planda tutulur. İlaç, sağlık, çevre, biyomühendislik, biyoteknoloji gibi birçok alanda yoğun olarak kullanılmaktadırlar (Hull vd., 2004; Chu ve Hsiao, 2009; Baybaş ve Ulusoy, 2011; Nalbantoğlu, 2012; Chen vd., 2013; Deng vd., 2013; Aydınoglu vd., 2014; Karadağ vd., 2014 a; Karadağ vd., 2014 b; Bonetto vd., 2015; Hosseinzadeh vd., 2015; Hu vd., 2015; Nasir vd., 2015; Seçkin, 2015; Karadağ ve Kundakçı, 2015; Kasim, 2016).

2.3. Polimer Biyohibrit Kompozitler

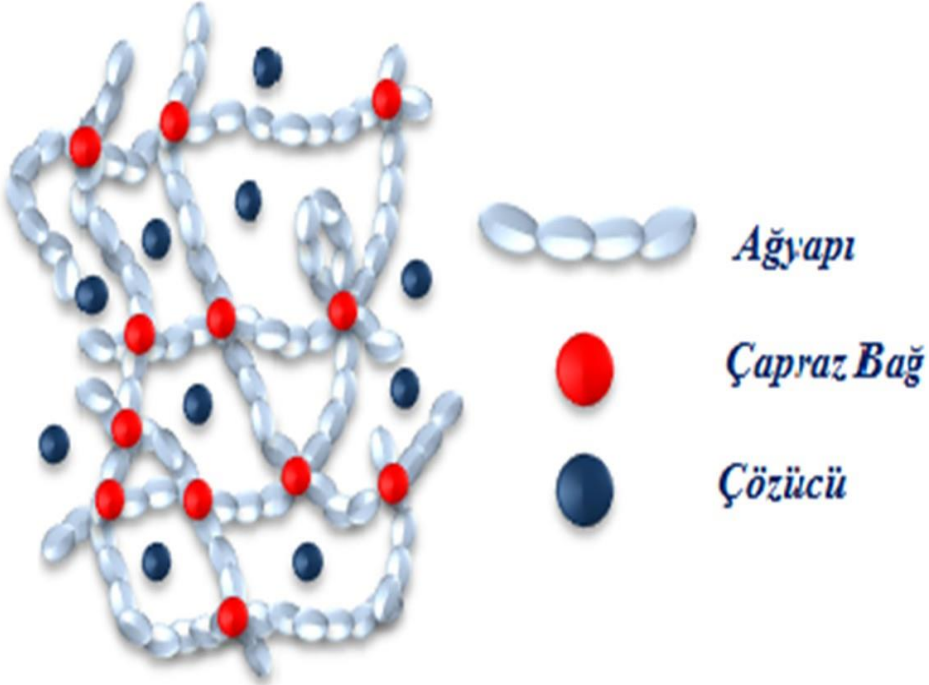
Bu malzemeler korozyona dirençli, uzun süreli kullanıma yatkın, işlenmeleri kolay, hafif, karmaşık geometrilerde biçimlendirilebilen, birim kütle başına yük taşıma kapasitesi yüksek malzemelerdir. Polimer biyohibrit kompozitler üstün özelliklerinden dolayı değişik alanlarda kullanılmaktadırlar. Polimer ve polimer biyohibrit hidrojenlerin hazırlanmasında ana hedefler; mekanik özellik, olabildiğince hafif, sıcaklık dayanımı ve üretimde ucuzluk gibi kriterler olmalıdır. Kompozit malzeme üretiminde, polimerlerin seçilmesinin getirdiği en önemli üstünlüklerden birisi de kullanılan bazı polimerlerin '*biyobozunur*' karakterde olmasıdır. Böylelikle polimer kullanımının getirdiği fazladan (olumsuz) işgücü/kirlilik/maliyet gibi olumsuzluklarda da azalmalar olacaktır (Seçkin, 2015; Kasim, 2016).

2.3.1. Polimer Biyohibrit Kompozitlerin Kullanım Alanları

Polimer kompozitler, uçak, otomotiv, ilaç, elektronik, sağlık, çevre, biyomühendislik ve biyoteknoloji gibi alanlarda kullanılmaktadırlar (Hull vd., 2004; Sperling, 2006; Navalon vd., 2010; Patrickios, 2010; Baybaş ve Ulusoy, 2011; Nalbantoğlu, 2012; Hasgöl, 2013; Karadağ vd., 2014 a; Karadağ vd., 2014 b; Doğru ve Abdurrahmanoğlu, 2015).

2.4. Hidrojeller

Hidrojeller, su içerisinde çözünmeden şişebilme özelliğine sahip, çapraz bağlı, üç boyutlu ağ yapılı polimerlerdir.

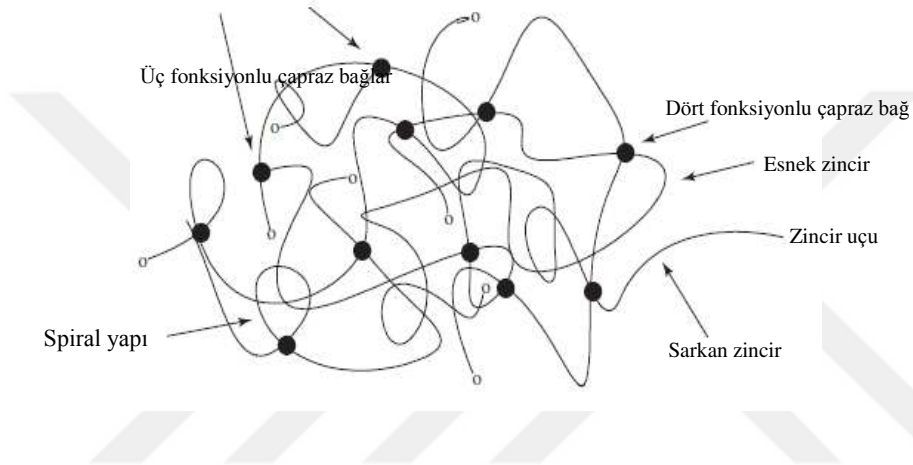


Şekil 2.5. Hidrojel yapısı (Çakmak, H. 2013)

Hidrojeller yapılarında çok fazla su bulundurmaları, yumuşak ve esnek yapıları gibi taşıdıkları birçok fiziksel özellik açısından canlı dokularla karşılaştırıldıklarında büyük bir benzerlik göstermektedir. Su sever olmaları nedeniyle hidrofil polimerler olarak da adlandırılırlar. Üç boyutta çapraz bağlanmalarla oluşan ağ yapıda bağlar kovalent ya da iyoniktir. Kimyasal ve fiziksel yapılarına bağlı olarak nötral hidrojeller, iyonik hidrojeller, iç içe girmiş ağ yapılar olmak üzere üç tip hidrojel vardır.

Bir polimerin hidrojel özelliği gösterebilmesi için ana zincir ya da yan dallarında hidroksil, karboksil, karbonil, amin ve amid gibi hidrojen bağı oluşturabilme yeteneğine sahip su sever grupların bulunması gerekir.

Hidrojellerin üç boyutlu yapısı kimyasal bağlar ya da iyonik etkileşim, hidrojen bağı, van der Waals kuvvetleri, hidrofobik etkileşimler gibi kohezyon kuvvetleri aracılığıyla gerçekleşir. Bu etkileşimler olduğu için jellerin şişme davranışını doğrudan etkiler. Bir hidrojinin çapraz bağlı yapısı şekil 2.6 da verilmiştir.



Şekil 2.6. Polimerik bir ağ yapıdaki çapraz bağlar (Gnanou ve Fontanille, 2008)

2.4.1. Hidrojellerin Sınıflandırılması

Polimerik hidrojeller, hazırlama yöntemlerine, iyonik yüklerine, fiziksel yapılarına ve çapraz bağlanma durumlarına bağlı olarak sınıflandırılabilirler (Oadian, 1991; Sperling, 2006; Fontanille, 2008; Gnanou ve Fontanille 2008; Seidel, 2008; Sorenson vd., 2011; Saçak, 2012; Seçkin, 2015).

Önemli hidrojellerden bazıları alt başlıklar halinde şöyle sınıflandırılabilir.

Hazırlama yöntemine göre

- ❖ Homopolimer hidrojeller
- ❖ Kopolimer hidrojeller
- ❖ Çoklu polimer hidrojeller
- ❖ IPN (Interpenetrating Networks) hidrojeller

İçerdikleri yan gruplara göre

- ❖ Nötral (iyonik olmayan) hidrojeller

- ❖ İyonik hidrojeller
- ❖ Anyonik (negatif yüklü) hidrojeller
- ❖ Katyonik (pozitif yüklü) hidrojeller
- ❖ Poliamfilitik hidrojeller

Fiziksel yapılarına göre

- ❖ Amorf hidrojeller
- ❖ Yarı-kristalin hidrojeller
- ❖ Hidrojen bağlı hidrojeller
- ❖ Fiziksel hidrojeller
- ❖ Kimyasal hidrojeller

Kaynaklarına göre

- ❖ Doğal hidrojeller
- ❖ Sentetik hidrojeller

Kimyasal kararlılıklarına göre

- ❖ Biyobozunur
- ❖ Biyobozunmayan

2.4.2. Hidrojellerin Kullanım Alanları

Hidrojeller, hidrofilik karakterleri ve biyoyumlulukları nedeni ile uzun yıllardır biyomalzemeler için büyük öneme sahip olmuşlardır. Son yıllarda da hem bilimsel hem de teknolojik açıdan hidrojellerin önemi gittikçe artmakta ve geniş kullanım alanına yayılmaktadır. Çok iyi su tutabilme ve sulu ortamda şişebilme yeteneklerinden dolayı biyoteknoloji, biyomühendislik, biyomedikal bilimler, eczacılık, tarım, yiyecek endüstrisi, veterinerlik ve telekomünikasyon gibi alanlarda da kullanılır (Kopecek ve Yang, 2007; Sahiner, 2007; Patrickios, 2010; Laftah vd., 2011; Saçak, 2012; Hoffman, 2012; Karadağ vd., 2014 a; Karadağ vd., 2014 b; Basan, 2015; Seçkin, 2015; Antic vd., 2015; Seçkin, 2015; Karadağ ve Kundakçı, 2015; Karadağ ve Kundakçı, 2016; Kasim, 2016).

2.4.3. İç İçe Geçmiş Ağ Yapılı Polimerik Hidrojeller (IPN)

‘İç içe geçmiş ağ yapılı polimerler’ (Interpenetrating Polymer Network, IPN) kendisini oluşturan polimerlerden birisinin veya tümünün çapraz bağlı olduğu, üç boyutlu ağ yapılarıdır. IPN’i oluşturan her bir ağ yapısı aynı anda ya da sonradan oluşturulabilir. IPN’deki ağ yapıları kimyasal olarak birbirlerine bağlanabilmektedirler. IPN’i oluşturan iki polimerik yapının birbiriyle uyumlu olması IPN oluşumunu artırır. IPN oluşumunda polimerler arası uyum aranır. IPN’i oluşturan polimerlerden bir tanesi ağ yapılı diğeri düz zincirli ise bu tür polimerik sistemler semi-IPN olarak bilinir (Oadian, 1991; Sperling, 2006; Fontanille, 2008; Gnanou ve Fontanille, 2008; Seidel, 2008; Sorenson vd., 2011; Saçak, 2012; Seçkin, 2015).

2.4.3.1. IPN’lerin Sınıflandırılması

IPN’ler sentez yöntemlerine “Ardışık iç içe geçmiş ağ yapılı polimerler” ve “Eş zamanlı iç içe geçmiş ağ yapılı polimerler (SIN)” biçiminde iki gruba ayrılırlar. IPN’ler yapılarına göre; semi-IPN (yarı-IPN) (yalnızca bileşenlerden birinin çapraz bağlı olduğu yapılar), tam IPN (tüm bileşenler ağ yapıda), termoplastik IPN (fiziksel çapraz bağların kimyasal çapraz bağlardan daha çok olduğu IPN türler), lateks IPN (çekirdek kabuk yapısını gösteren lateks parçacıkları şeklinde elde edilen yapılar) ve gradient IPN (çapraz bağ yoğunluğunun ya da bileşiminin, bir bölgeden diğerine geçildiğinde sırasıyla her bir bileşenin özelliğini gösterdiği yapılar) biçiminde alt gruplara ayrılırlar (Oadian, 1991; Sperling, 2006; Fontanille, 2008; Gnanou ve Fontanille, 2008; Seidel, 2008; Sorenson vd., 2011; Saçak, 2012; Seçkin, 2015).

2.4.4. Semi-IPN Oluşumunda Kullanılan Polimerler

IPN’lerin üretiminde karboksimetil selüloz, sodyum aljinat, ksantan gam, kitin, karragenan, kitosan, gibi doğal polimerlerin yanında poli(vinil alkol), poliakrilamid, poli(N-izopropil alkol) gibi yapay polimerler de kullanılmaktadır. Kullanım amacına göre bu polimerlerin bir araya getirilmesi ile farklı fiziksel ve kimyasal özelliklere sahip IPN yapıları oluşturulabilir (Zhao vd., 2006; Bhattacharyya vd., 2012; Bardajee ve Hooshyar, 2013; Dragan, 2014; Kundakcı ve Karadağ, 2014; Bhattacharyya ve Ray 2015; Karadağ ve Kundakçı, 2015; Peng vd., 2014; Seçkin, 2015; Karadağ ve Kundakçı, 2016; Kasim, 2016).

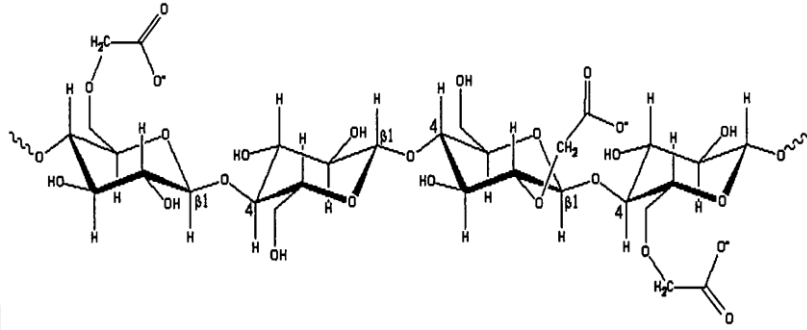
2.4.5. Polisakkaritler

Polisakkaritler, birden fazla ve ayrı (birleşik olmayan) monosakkaritin glikozit bağıyla birleşmesiyle oluşan kimyasallardır. Yapılarında saf monosakkaritler bulunabileceği gibi, monosakkaritlerin oksidasyon ürünleri ve diğer bazı kimyasal gruplar da bulunabilir. Çoğunlukla beyaz amorf (şekilsiz) ve toz halinde olurlar. Eğer tek tip monosakkaritten meydana gelirlerse, “Homopolisakkaritler”, içlerinde farklı gruplar da bulunursa “Heteropolisakkarit” olarak adlandırılırlar (Gooch, 2007; Saçak, 2012; Seçkin, 2015).

Doğal polimerler olan polisakkaritler, biyoyumumluluk, biyobozunurluk, toksik olmama ve çevresel koşullara daha kolay uyum sağlama gibi özelliklerinden dolayı IPN üretiminde fazlaca kullanılmaktadırlar. Son zamanlarda çoğu araştırmacı, karboksimetil selüloz, ksantan gam, jelatin, kitin, kitosan, guar gum ve sodyum aljinat gibi doğal polimerler üzerinde çalışmalar yayınlamışlardır (Singh vd., 2009; Wu vd., 2010; Bhattacharyya vd., 2012; Nalbantoğlu, 2012; Bardajee ve Hooshyar, 2013; Hasgül, 2013; Marandi vd., 2013; Dragan, 2014; Kundakcı ve Karadağ, 2014; Peng vd., 2014; Hu vd., 2015; Karadağ ve Kundakcı, 2015; Karadağ ve Kundakcı, 2016; Kasim, 2016).

2.4.5.1. Karboksimetil selüloz (CMC)

Tersinir veya değişmez selüloz tabanlı hidrojeliler metil selüloz, hidroksipropil metil selüloz, etil selüloz, hidroksietil selüloz ve sodyum karboksimetil selüloz (CMC) gibi çok kullanılan selüloz eterlerinin sulu çözeltilerinin uygun bir şekilde çapraz bağlanmasıyla oluşturulabilirler. CMC gıdalarda kıvam arttırıcı katkı maddesi olarak kullanılır ve E 466 olarak numaralandırılmışlardır (Sannino vd., 2009; Barbucci vd., 2000; Nalbantoğlu, 2012; Karadağ vd., 2014b; Salama vd., 2015).



Şekil 2.7. Sodyum karboksimetil selülozun kimyasal yapısı (Nalbatoğlu, 2014)

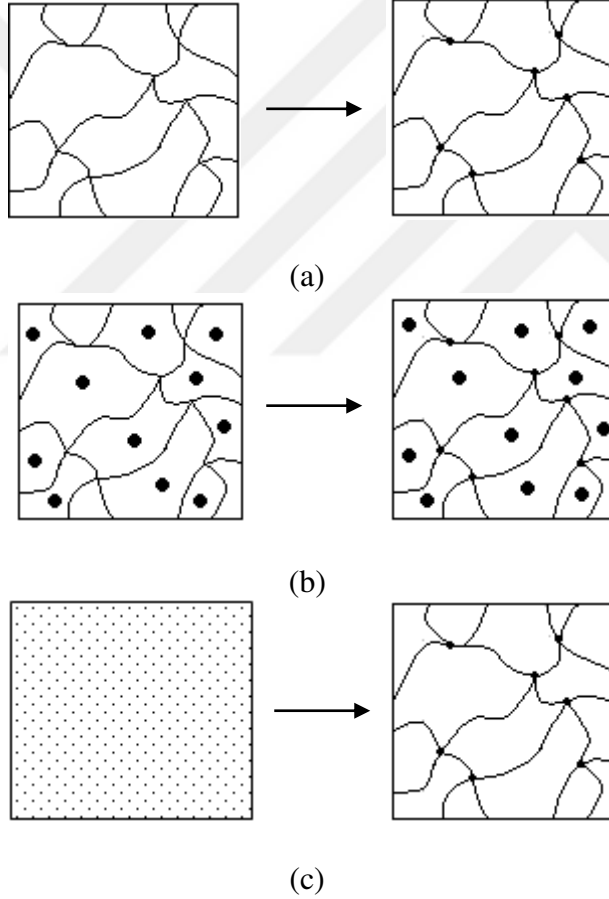
Yukarıda bahsedilen selüloz eterlerinden CMC polielektrolittir ve bu yüzden pH ile iyonik güce karşı duyarlılık gösteren bir selüloz türevidir. Aslında selüloz tabanlı hidrojelde CMC'nin varlığı elektrostatik yüklerin ağ yapıya tutunmalarını sağlar ve bu da şişme kapasitesinde önemli rol oynar. Polimer zincirindeki aynı yüklerin oluşturduğu elektrostatik itme ağ yapının nötral halinden daha fazla genişlemesine neden olup şişmeyi artırır. CMC'nin polielektrolit yapısı, süper su tutucu hidrojellerin gelişmesinde CMC'yi ideal bir model yapmıştır. CMC yiyecek, kâğıt yapımı, boya, ilaç, kozmetik ve mineral işlenmesi gibi birçok endüstriyel sektörde geniş çapta uygulanmaktadır (Sannino vd., 2009; Barbucci vd., 2000; Nalbantoğlu, 2012; Karadağ vd., 2014b; Salama vd., 2015). Son zamanlarda CMC suda çözünebilir polisakkarit olarak ilaç salınımı, doku mühendisliği ve polimer karışımları gibi birçok araştırma alanında ilgi görmektedir. CMC hem endüstri hem de laboratuvarında daha fazla değer kazanmasına rağmen birçok çalışmada bahsedildiği gibi yapısındaki hidrojen bağları oldukça zayıftır bu da çok fazla su absorblamasını sağlar (Li vd., 2009; Sannino vd., 2009; Barbucci vd., 2000; Nalbantoğlu, 2012; Karadağ vd., 2014b; Salama vd., 2015).

2.5. Hidrojel Sentezi

Şişmiş ve hidrofilik gruplar içeren ağ yapılı polimerlerin sentezinde aşağıdaki teknikler izlenebilir (Üzüm, 2008; Üzüm ve Karadağ, 2011; Kundakçı vd., 2012; Hoffman, 2012; Peng vd., 2014; Kundakçı ve Karadağ, 2014; Karadağ ve Kundakçı, 2015; Karadağ ve Kundakçı, 2016).

❖ Çözelti veya katı haldeki kopolimerler ya da homopolimerlerin çapraz bağlanması ve sonradan su/sıvı veya uygun bir biyolojik sıvı veya çözücüde şişmeye bırakılması.

❖ Bir veya daha çok, tek fonksiyonlu veya çok fonksiyonlu monomerlerin birlikte kopolimerleşme ve çapraz bağlanmasının sonrasında uygun bir ortamda şişmeye bırakılması



Şekil 2.8. Çapraz bağlı polimerlerin sentezinde görülebilecek üç durumun şematik gösterimi (Üzüm, 2008)

- Çözelti halindeki bir polimerin çapraz bağlanması
- Katı bir polimerin çapraz bağlanması
- İki monomerin birlikte kopolimerleşmesi ve aynı zamanda da çapraz bağlanması

2.6. Hidrojellerde Su/Sıvı Soğurumu ve Geçirim

Şişme, suyun ya da küçük moleküllü bir sıvının, polimer yapısında değişme ile birlikte polimer tarafından soğurulmasıdır. Yapısal boşluklara girerken çözücü molekülleri, polimerlerin süper moleküler yapılarının aralarını zorla açar. Buna yapılar arası su/sıvı soğurumu denir. Eğer yapıların içine girerlerse makromoleküller zorla açılır. Buna da yapı içi su/sıvı soğurumu denir. Çözücü miktarı artarken, polimer zincirleri yavaş yavaş birbirinden ayrılır ve çözeltide, içinde çözücü bulunan oynak bir polimerik ağ yapı meydana gelir (Nalbantoğlu, 2012; Hasgül, 2013; Kundakçı ve Karadağ, 2014; Basan, 2015; Karadağ ve Kundakçı, 2015; Kasım, 2016). Su/sıvı soğurumu, polimer molekülleri çok büyük olduğu için tek yönlü karışmadır. Küçük moleküllü bir sıvının polimerdeki çözeltisi olan şişmiş polimer saf haldeki küçük moleküllü sıvı tabakası ile belli bir süre için birlikte bulunur. Polimer zincirleri yeterli miktarda birbirlerinden uzaklaştıkları zaman çözücü molekülleri içine yavaş yavaş difüzlenmeye başlarlar. Burada derişik bir çözelti tabakası ile seyreltik bir çözelti tabakası bir arada bulunur. Biraz zaman geçtikten sonra, bu iki tabakanın derişimleri eşit olur ve tek fazlı homojen bir sisteme dönüşür. Çapraz bağlı polimerler doğal olarak çözünmezler, ancak jel oluşturarak su/sıvı soğurabilir (Üzüm ve Karadağ, 2010, 2011; Kundakçı vd., 2008, 2009, 2011; Nalbantoğlu, 2012; Hasgül, 2013; Basan, 2015; Kasım 2016).

Sınırsız su/sıvı soğurum kendiliğinden çözeltiye dönüşen şişmedir. Küçük moleküllü sıvının hareketliliği çok yüksek ve makro moleküllerinin hareketliliği ise çok azdır. Bu yüzden büyük moleküller çözücü fazına geçmek için fazla zamana sahip değildir. Bir polimer çözünmeden önce çok miktarda sıvı absorplar, yani su/sıvı soğururlar (Üzüm ve Karadağ, 2010, 2011; Kundakçı vd., 2008, 2009, 2012; Nalbantoğlu, 2012; Hasgül, 2013; Karadağ vd., 2014; Kundakçı ve Karadağ, 2014; Karadağ ve Kundakçı, 2015).

2.7. Hidrojellerde Karakterizasyon

Çapraz bağlı polimerlerin karakterizasyonu için birçok yöntem kullanılmaktadır. Bunlardan en temel olanları ısısal, spektroskopik, yapısal özellikler ve su/sıvı soğurum özellikleri olan şişme davranışının araştırılmasına yönelik yöntemlerdir.

2.7.1. Spektroskopik Karakterizasyon

Yapısal analizde en çok kullanılan metodlardan bir tanesi infrared (IR) spektroskopisidir. Polimerik yapıların karakterizasyonu için günümüzde *Fourier Transform Infrared Spektrofotometreleri* (Fourier Geçirmeli Kızılötesi)(FT-IR) ve Attenuated Total Reflectance (Azalan tam yansıma) (ATR) ünitesi olan FT-IR/ATR ile daha duyarlı analizler yapılmaktadır. Dalga boyu ayırıcısı yerine bir interferometrenin kullanıldığı bu teknikte, tüm dalga boylarında yayılan ışınlar bilgisayar yardımıyla her dalga boyunda ayrı ayrı çözümlenerek soğurumlar toplanmaktadır. Böylece düşük derişimlerdeki örneklerle çalışılabilmekte ve en zayıf soğurum değerleri bile büyük duyarlılıkla değerlendirilebilmektedir (Skoog and Leary, 1992; Hasgöl, 2013; Karadağ vd., 2014a; Kundakcı ve Karadağ, 2014, Karadağ ve Kundakcı, 2015; Kasim,2016).

2.7.2. SEM Analizi

Üretimleri gerçekleştirilen polimerik örneklerin yüzey özelliklerinin incelenmesi, polimerlerin karakterizasyonu açısından oldukça önemlidir. Polimerik örneklerin yüzey özellikleri ve gözenekliliği hakkında fikir edinebilmek amacı ile en çok kullanılan yöntemlerden biri taramalı elektron mikroskopi (Scanning Electron Microscopy, SEM) yöntemidir (Bhattacharya vd., 2012; Bueno vd., 2013; Dragan, 2014; Karadağ vd., 2014a; Kundakcı ve Karadağ, 2014, Karadağ ve Kundakcı, 2015).

2.7.3. Su/Sıvı Soğurum Karakterizasyonu

Çapraz bağlı ağ yapılı polimerler ve kopolimerler uygun çözücü ortamına konduklarında, çözücü yapıya girer ve su ya da sıvı soğurumu başlar. Belirli bir süre sonunda çözücünün jele girme hızı, jelden salınım hızına eşit olur ve dengeye ulaşılır. Su/sıvı soğurum davranışı gösteren ağ yapılı polimer ve kopolimerlerin karakterizasyonunda su/sıvı soğurum kinetiğinin incelenmesi önemlidir. Bu nedenle öncelikle su/sıvı soğurum eğrileri oluşturulmalıdır. Su/sıvı soğurum eğrileri, uygun çözücü ortamına bırakılan polimerin kütesindeki ya da hacmindeki değişikliklerin zamanla incelenmesi ile oluşturulur (Evmenenko vd., 1999; Kundakcı vd., 2008, 2009, 2011; Ganji vd., 2010; Üzüm ve Karadağ, 2010, 2011; Bueno vd., 2013; Rashidzadeh vd., 2014; Kundakcı ve Karadağ, 2014; Karadağ ve Kundakcı, 2015; Karadağ ve Kundakcı, 2016; Kasim, 2016).

Şişme karakterizasyonunda önemli parametrelerden biri olan, “su/sıvı soğurum faktörü” (S); aşağıdaki eşitlik ile hesaplanır.

$$S = \frac{W_t - W_0}{W_0} \quad (1)$$

Bu eşitlikte W_0 ; başlangıçtaki kuru polimerin kütlesini, W_t ; t süre sonraki su/sıvı soğurmuş polimerin kütlesini ifade eder. Denge durumunda, su/sıvı soğurulmuş hidrojel en büyük su/sıvı soğurum değerine sahiptir. Çözücüyle dengede bulunan hidrojeller için dengede su/sıvı tutma kapasitesi (*DSTK*) aşağıdaki eşitlik ile hesaplanır.

$$DSTK = \frac{W_d - W_0}{W_d} \quad (2)$$

Eşitlikte W_d ; dengedeki su/sıvı soğurmuş polimerin kütlesini, W_0 ; kuru polimerin kütlesidir (Karadağ vd., 2014a; Kundakcı ve Karadağ, 2014, Karadağ ve Kundakcı, 2015).

Dinamik su/sıvı soğurum testleri sonucu oluşturulan su/sıvı soğurum kinetiği eğrilerinin ikinci dereceden olduğu varsayılır. Bu durumda aşağıdaki eşitlik değerlendirilir.

$$\frac{ds}{dt} = k_s (S_{mak} - S) \quad (3)$$

Eşitlikteki ds/dt ; su/sıvı soğurum hızını, S_{mak} ; jelin denge anındaki su/sıvı soğurum değerini, S ; t anındaki su/sıvı soğurum faktörünü ve k_s ; su/sıvı soğurum hız sabitini göstermektedir (Peniche vd., 1997; Azizian, 2004; Saraydın vd., 2004; Üzüm, 2008).

Eşitliğin $t=0$ için $S=0$ ve $t=t$ için $S=S_{mak}$ koşullarında matematiksel düzenlemeler sonucu aşağıdaki eşitliğe ulaşılır.

$$\frac{t}{S} = A + Bt \quad (4)$$

Eşitlikte $A(=1/S_{mak}^2 k_s)$; başlangıç su/sıvı soğurum hızının ($1/r_0$) tersi, $B(=1/S_{mak})$ ise en büyük su/sıvı soğurum değerinin tersidir (Peniche vd., 1997; Azizian, 2004; Saraydın vd., 2004; Üzüm, 2008; Kundakcı, 2011; Nalbantoğlu, 2012; Hasgül, 2013; Kasim, 2016).

Polimerik ve kopolimerik yapıların su/sıvı soğurum kinetiği ve geçirim türünün açıklanmasında kullanılan en temel yasalar “Fick” yasalarıdır. Su/sıvı soğurum özelliği gösteren polimerlerin su/sıvı soğurum kinetiği için aşağıdaki temel eşitlik kullanılır.

$$F = \frac{M_t}{M_d} = kt^n \quad (5)$$

Bu eşitlikte M_t ; t anında jelin içerdiği sıvı miktarını, M_d ; denge halinde jelin içerdiği sıvı kütlesi, n ; çözücünün/sıvının geçirim türünü gösteren geçirim üstelini ve k ; geçirim sabitini göstermektedir. F ; jelin t anında aldığı sıvı miktarının dengede alınan sıvı miktarına oranıdır ve su/sıvı soğurum kesri olarak tanımlanır.

2.7.4. Geçirim

Geçirim(difüzyon) türü ve mekanizmasının aydınlatılması, su/sıvı soğurum davranışı gösteren ağ yapılı polimerlerin karakterizasyonunda önemlidir. Geçirim türünün belirlenebilmesi için eşitlik 5’te verilen geçirim üsteli (n) parametresinin bilinmesi gerekir. Geçirim üsteli (n), su/sıvı soğurumunun henüz dengeye ulaşmadığı bölgede ve çözücü kütlesinin %60’lık kesiminin ($F < 0,60$) jele girmesi için geçen zaman aralığında $\ln F - \ln t$ doğrusunun eğiminden bulunmaktadır. Bu doğrunun kesim noktası ise k değerini verir. Bulunan bu değerler aynı zamanda geçirim katsayısının hesaplanmasında kullanılabilir.

Çözücünün geçirim hızı ve hidrojel çözücü sisteminin durulma hızı, hidrojellerde su/sıvı soğurumunu denetleyen iki önemli parametredir. Geçirim türü ve mekanizması bu parametrelere bağlı olarak aşağıdaki sınıflandırmaya bağlı olarak yapılmaktadır (Peppas ve Franson, 1983, Ende ve Peppas, 1996, 1997; Karadağ vd., 2010; Kundakçı ve Karadağ, 2014, Karadağ ve Kundakçı, 2015).

❖ **Fick tipi difüzyon (Durum I):** Durulma hızının geçirim hızından daha büyük olduğu ve denge su/sıvı soğurum değerine kısa sürede ulaşıldığı geçirim türüdür. Bu durumdaki su/sıvı soğurum, geçirim olayı ile denetlenir ve polimerik yapıya giren ya da yapıdan çıkan türün miktarı zamanın karekökü ile orantılı olarak artar ($n=0,5$).

❖ **Süper durum II (Durum II):** Geçirim hızının durulma hızından daha büyük olduğu geçirim türüdür ($n=1$).

❖ **Fick tipi olmayan ya da anormal tip difüzyon (Durum III):** Şişme üzerinde geçirim ve durulmanın aynı anda etkin olduğu geçirim türüdür ($0,5 < n$)

Su/sıvı soğurum kinetiğinin incelenmesinde önemli olan parametrelerden birisi de geçirim katsayısıdır. Silindirik geometrideki yapılar için geçirim katsayısı, “D”, Fick’in II. yasasının düzenlenmesi ve kısa zaman aralığında çözülmesi ile elde edilen Eşitlik 6 yardımıyla bulunabilir (Dengre vd., 2000; Ganji vd., 2010; Üzüm ve Karadağ, 2011; Kundakçı vd., 2012; Kundakçı ve Karadağ, 2014; Karadağ vd., 2014, Karadağ ve Kundakçı, 2015).

$$D = \pi r^2 \left(\frac{k}{4} \right)^{1/n} \quad (6)$$

Eşitlikte yer alan “n” ve “k” değerleri $\ln F - \ln t$ grafiklerinden hesaplanan geçirim üsteli ve geçirim sabiti değerleridir. “r” değeri şişmiş hidrojin cm olarak yarıçapıdır. Su/sıvı soğurum kinetiğinin incelenmesinde bir diğer önemli parametre de su/sıvı soğurum hız katsayısı (k_{ss})’dır. Bu parametrenin hesaplanması için aşağıda verilen bağıntı kullanılır.

$$-\ln(1 - F) = k_{ss} t + E \quad (7)$$

Bu eşitlikte F ; jelin t anında aldığı çözücü miktarının dengede alınan çözücü miktarına oranıdır ve su/sıvı soğurum kesri olarak tanımlanır. E ; su/sıvı soğurum kinetiği ile ilgili sabit değerdir. k_{ss} ’nin hesaplanması için $-\ln(1-F)-t$ grafikleri oluşturulur ve elde edilen doğrunun eğiminden k_{ss} değeri bulunur (Ali vd., 2003; Karadağ vd., 2014a; Kasim, 2016).

2.8. Su Kirliliği ve Çevre

Akarsu, göl ve denizlerde canlı yaşamın ve ekolojik dengenin zaman içerisinde değişmesi, sularda kirlenmenin ortaya çıkmasına neden olur. Bu kirlilik bulunduğu havzayı, çevresini ve içinde bulunan canlıları etkileyerek, türlerin ve biyolojik grupların yok olmasına zemin hazırlamaktadır. Su kirliliğinin insan sağlığına etkileri hafife alınmayacak kadar önemli olduğundan dolayı bu kirliliğe son vermek adına kirli sular mutlaka temizlenmelidir.

Başlıca, organik kirleticiler, mikroorganizmalar, endüstriyel atıklar (petrol kökenli, plastikler, elyaflar, elastomeler, ilaçlar, deterjanlar, pestisitler, besin katkı maddeleri, gübreler, çözücüler, değişik kökenli boyalar) ve radyoetkin kirleticiler vardır (Hull vd., 2004; Crini, 2006; Crini ve Badot, 2008; Chu ve Hsiao, 2009; Deng vd., 2013; Dragan ve Loghin, 2013; Karadağ ve Kundakcı, 2015; Karadağ ve Kundakcı, 2016; Kasim 2016).

2.8.1. Kirli suların arıtılması

Yeryüzü ve yer altı sularının kirlenmesini önlemek için kirlenmiş suların arıtılması gereklidir. Bu amaçla mekanik arıtma (çöktürme, süzme), biyolojik arıtma (oksijenli, oksijensiz ortamda fermentasyon) ve kimyasal arıtma (çöktürme, nötrleştirme, yüzeye soğurma, vb) gibi üç temel yöntem kullanılır; Mekanik olarak yapılan arıtmadan sonra uygunluğuna göre biyolojik ya da kimyasal arıtma yapılabilir. Kimyasal arıtma yine kirlenmiş suyun niteliğine uygun olarak seçilebilecek çeşitli yöntemlerle yapılır. Bu yöntemlerin en çok kullanılanları; yükseltgenme-indirgenme ve nötrleştirme, çöktürme, adsorpsiyon (yüzeye soğurma), özütleme, yüzdürme ve iyon değişimi yöntemleridir (Üzüm, 2008; Kundakcı 2011; Nalbantoğlu, 2012; Hasgül, 2013; Kasim, 2016).

Önemli bir arıtma yöntemi olan yüzeye soğurma, özellikle boyarmadde ve ağır metal iyonlarının sulu ortamlardan uzaklaştırılarak kirli suların temizlenmesinde kullanılan bir yöntemdir. Bu yöntemde, yüzeye tutucu maddelerden (aktif karbon, kok, cüruf, turba, kil, yapay iyon değiştiriciler ve hidrojel) yapılan süzgeçten kirli su yavaş yavaş geçirilebileceği gibi bu maddelerle kirli su bir süre etkileştirilerek sudaki kirliliğin uzaklaştırılması sağlanabilir (Hull vd., 2004; Crini, 2006; Crini ve Badot, 2008; Chu ve Hsiao, 2009; Deng vd., 2013; Dragan ve Loghin, 2013; Karadağ ve Kundakcı, 2015; Karadağ ve Kundakcı, 2016; Kasim 2016).

2.9. Adsorpsiyon

Adsorpsiyon, yıllardır bir fizikokimyasal proses olarak kullanılmasına rağmen, son yıllarda geliştirilip önemli bir endüstriyel ayırma tekniği haline gelmiştir. Adsorpsiyon, akışkan fazda çözünmüş haldeki belirli bileşenlerin bir katı adsorbent yüzeyine tutunmasına dayanan ve faz yüzeyinde görülen yüzeye tutunma olayıdır. Katı örgüsü içinde bulunan iyonlar çekim kuvvetlerince

dengelemiştir. Ancak katı yüzeyindeki atomların dengelenmemiş kuvvetleri, çözeltideki maddeleri katı yüzeyine çekerler ve yüzey kuvvetleri dengelenmiş olur. Bu şekilde çözeltideki maddelerin katı yüzeyine adsorpsiyonu gerçekleşir. Günümüzde bir çok doğal fiziksel, kimyasal ve biyolojik işlemde önem taşımaktadır. Ayrıca adsorpsiyon prosesi, atık sulardaki organik ve kimyasal kirleticilerin uygun bir katı yüzey üzerine tutularak giderilmesi işleminde de sıklıkla kullanılmaktadır. Adsorpsiyona alternatif olabilecek dikkate değer bazı uygulamalar; destilasyon, absorpsiyon ve sıvı ekstraksiyondur. Her proses bileşenlerin farklı özelliklerinden yararlanarak ayırma işlemini gerçekleştirir. Bu özellik destilasyonda buharlaşabilirlik, adsorpsiyonda çözünürlük, ekstraksiyonda dağılım katsayısı ve adsorpsiyonda ise bileşenlerden birinin diğerlerine göre daha hızlı adsorblanabilirliğidir (Üzüm, 2008; Kundakcı 2011; Nalbantoğlu, 2012; Hasgöl, 2013; Kasim, 2016).

2.9.1. Adsorpsiyon Türleri

İki tip Adsorpsiyon vardır: Bunlar fiziksel Adsorpsiyon ve kimyasal adsorpsiyondur (Nalbantoğlu, 2012; Hasgöl, 2013; Kasim, 2016).

Fiziksel Adsorpsiyon: Katı yüzey ile adsorplanan madde molekülleri arasındaki çekim kuvvetleri sonucu oluşan adsorpsiyon olayıdır. Burada zayıf van der Waals kuvvetleri etkindir ve işlem tersinirdir. Adsorpsiyon sonucu yoğunlaşma enerjisinden biraz fazla ısı açığa çıkar.

Bu tür adsorpsiyonda, adsorplanmış tabaka birden fazla molekül kalınlığındadır. Su buharının havadan veya diğer gazlardan uzaklaştırılması, endüstriyel gaz karışımı içerisindeki karbondioksit, kükürt dioksit gibi safsızlıkların giderilmesi, gaz ve sıvı karışımlardan istenmeyen kokuların uzaklaştırılması, şeker çözeltisinin renginin giderilmesi, organik sıvılar içerisinde çözünen suyun uzaklaştırılması endüstriyel uygulamalar arasında yer alan tipik örneklerdir.

Kimyasal Adsorpsiyon: Adsorblayıcı ile adsorblanan arasında kimyasal tepkimenin oluşması, elektron alış veriş olması sonucunda meydana gelir. Fiziksel adsorpsiyonda bağ kuvvetleri moleküller arasında olurken kimyasal adsorpsiyonda moleküller içindedir.

Fiziksel ve kimyasal Adsorpsiyon aşağıdaki gibi karşılaştırılabilir (Hasgöl, 2013).

Fiziksel Adsorpsiyon	Kimyasal Adsorpsiyon
Adsorpsiyon ısısı düşüktür	Adsorpsiyon ısısı yüksektir.
Özgül değildir.	Özgüldür.
Tek tabakalı veya çok tabakalıdır.	Sadece tek tabakalıdır.
Sadece düşük sıcaklıklarda gerçekleşir.	Geniş bir sıcaklık aralığında gerçekleşir.
Hızlı, aktif değil ve tersinirdir.	Aktiftir, yavaş tersinmez olabilir.
Elektron transferi yoktur.	Bağ oluşumuna neden olan elektron transferi gerçekleşir.

Genellikle herhangi bir adsorpsiyon, sıcaklık yükselirken azalmalıdır. Yüksek sıcaklıkta olan adsorpsiyon düşük sıcaklık olan adsorpsiyodan farklıdır. Yüksek sıcaklık adsorpsiyonu aktive edilmiş kemisorpsiyondur. Düşük sıcaklık adsorpsiyonu ise van der waals adsorpsiyondur. Fiziksel kuvvetler yapıya özel olmadığından van der waals adsorpsiyonu bütün hallerde meydana gelir. Kemisorpsiyon ise ancak bu çeşit karşılıklı kimyasal etki olanağı bulunduğu zaman meydana gelir.

2.9.2. Adsorpsiyon İzotermi

Adsorpsiyon verileri genellikle “adsorpsiyon izotermi” şeklinde sunulur. Sabit sıcaklıkta birim adsorbent miktarı tarafından adsorplanan miktarın denge çözelti derişimi (veya basıncı) ile ilişkisi “adsorpsiyon izotermi” olarak bilinir.

Sabit sıcaklıkta yürütülen adsorpsiyon çalışmalarında elde edilen denge derişimine karşı adsorplanan madde miktarının grafiğe geçirilmesi ile adsorpsiyon izotermi elde edilmektedir. Kimyasal adsorpsiyonda yüzey ile adsorplanan maddenin doğrudan teması sonucu olay tek tabakalı olarak tamamlanmaktadır. Fakat uygun basınç ve sıcaklık koşulları sağlandığında fiziksel adsorpsiyon çok tabakalı olabilmektedir.

Gazların katılar tarafından adsorpsiyonuna ait beş tip adsorpsiyon izotermi gözlenmiştir. Brauner, Emmet ve Teller tarafından geliştirilen bu beş adsorpsiyon izotermi tipi gazların katılar tarafından adsorpsiyonunda doğru sonuçlar vermektedir. Ancak bu izotermelerde, çözücü etkisi ve çözünenlerin kendi aralarındaki etkileşimler yok sayıldığından çözelti adsorpsiyonunda elde edilen

izotermilerin açıklanmasında eksiklikler görülür (Üzüm, 2008; Kundakcı 2011; Nalbantoğlu, 2012; Hasgöl, 2013; Kasim, 2016). Çözeltiden ya da sıvı karışımlardan istenmeyen bir türün ortamdaki uzaklaştırılmasına dair çalışmalar yaygın bir biçimde devam etmektedir. Çözelti Adsorpsiyon izotermelerinin sınıflandırılmasında ve Adsorpsiyon mekanizmalarının açıklanmasında Giles sınıflandırılması kullanılmaktadır. Giles Adsorpsiyon sınıflandırmasının, özellikle boyarmadde ve benzeri organik moleküllerin yoğun olarak bulunduğu ortamlardan adsorpsiyonlarının incelendiği çalışmalarda somut sonuçlar verdiği bilinmektedir (Üzüm, 2008; Kundakcı 2011; Nalbantoğlu, 2012; Hasgöl, 2013; Kasim, 2016).

2.9.3. Denge Adsorpsiyon Çalışmaları

Denge adsorpsiyon çalışmalarında 1,0 g çapraz bağlı polimer tarafından soğurulan madde miktarının, yani adsorpsiyon kapasitesinin ya da boya uzaklaştırma performansının hesaplanması sık kullanılan bir yöntemdir. Farklı derişimde çözeltiler ile çapraz bağlı polimerin etkileştirilmesi sonucu, sabit sıcaklıkta derişimin adsorpsiyona etkisi incelenir. Bu amaçla aşağıdaki eşitlik kullanılmaktadır (Üzüm, 2008; Kundakcı 2011; Nalbantoğlu, 2012; Hasgöl, 2013; Kasim, 2016).

$$q = \frac{C - C_s}{m} \times v \quad (8)$$

Burada q; 1,0 g hidrojelinde boya uzaklaştırma performansı, C; çözeltinin başlangıç derişimi, C_s; çözeltinin denge derişimi, v; çözelti hacmi ve m; hidrojelinde kütlesidir. Hesaplanan “q” değerlerinin, çözeltinin son derişimine karşı grafiğe geçirilmesi ile elde edilen denge adsorpsiyon izotermeleri, çapraz bağlı polimer ve çözeltideki çözünen madde arasında gerçekleşen adsorpsiyon ile ilgili bilgi verir. Çözelti ile dengede bulunan çapraz bağlı polimer ve çözücü arasında gerçekleşen adsorpsiyon için hesaplanabilecek diğer bir parametre de, çapraz bağlı polimerinde boya uzaklaştırma yüzdesi (BS%) olarak bilinen bir parametredir. %BS aşağıdaki gibi hesaplanabilir,

$$\%BS = \frac{C_b}{C} \times 100 \quad (9)$$

Eşitlikte C_b; hidrojel tarafından soğurulan boyanın derişimidir ve [C_b=C-C_s] eşitliği ile hesaplanır (Üzüm ve Karadağ, 2011; Hasgöl, 2013; Kundakcı ve Karadağ, 2014; Karadağ vd., 2014, Karadağ ve Kundakcı, 2015; Kasim, 2016).

Çözünenlerin, sulu faz ve adsorplayıcı arasındaki dağılımları dağılma katsayısı ile tanımlanır. Çözünenin toplam derişimi ve soğurulan türlerin toplam derişimi ile ilişkili olan dağılma katsayısı, K_d , aşağıdaki şekilde hesaplanabilir

$$K_d = \frac{C_b}{C_s} \quad (10)$$

Burada K_d ; denge halindeki dağılma katsayısını, C_s ; çözeltiye ait derişimi, C_b ; çapraz bağı hidrojel tarafından soğurulan boya derişimidir (Schwarte ve Peppas, 1998; Şahiner vd., 1998; Missana vd., 2003; Kundakcı vd., 2008; Humelnicu vd., 2011; Üzüm ve Karadağ, 2011; Karadağ ve Kundakcı, 2012; Marandi vd., 2013; Kundakcı ve Karadağ, 2014; Karadağ ve Kundakcı, 2015; Kasim, 2016).

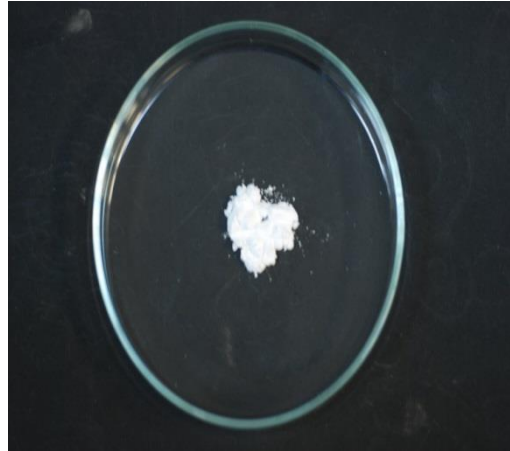
2.9.4. Sulu Ortamlardan Boyarmadde Uzaklaştırılması

Boyarmadde uygulandığı malzemeye kalıcı bir biçimde rengini veren, yoğun renkli ve karmaşık yapıları organik bileşiklerdir. Bu tür maddeler kağıt, deri, plastik, kozmetik, mürekkep, gıda ve özellikle tekstil endüstrisinde yoğun olarak kullanılmaktadır. Boyarmaddelerin üretim ve uygulamalarında oluşan atıklar suyu kirlletmektedir. Boyarmaddeler, farklı sınıf ve türlere ayrılmış asidik, bazik ya da nötral organik bileşiklerdir. Boyarmaddelerin su/sıvılarda oluşturabilecekleri nötralleşme ya da yükseltgenme-indirgenme tepkimeleri, suda çözülmüş olarak bulunan oksijenin gereksiz yere harcanmasına neden olur. Böylece suyun kimyasal oksijen gereksinimi artar (kimyasal oksijen gereksinimi sularda bulunan organik maddelerin tümünün yükseltgenmesi için gereken oksijen gereksinimi olarak tanımlanır). Bu durum, su/sıvıda yaşayan canlı organizmaların oksijen gereksiniminin karşılanmamasına ve ölümlerin gerçekleşmesine neden olur. Su kirliliğinin giderilmesinde kullanılan yüzeye soğurma önemli bir yöntemdir. Yüzeye soğurma tekniği ile boyarmadde uzaklaştırılmasında, akrilamid esaslı ve diğer çapraz bağı polimerlerin kullanıldığı çok sayıda çalışma bulunmaktadır (Hull vd., 2004; Crini, 2006; Crini ve Badot, 2008; Chu ve Hsiao, 2009; Deng vd., 2013; Dragan ve Loghin, 2013; Karadağ ve Kundakcı, 2015; Karadağ ve Kundakcı, 2016; Kasim 2016).

3. MATERYAL ve YÖNTEM

3.1. Kullanılan Kimyasallar

Bu çalışmada, çapraz bağlı kopolimer üretiminde monomer olarak akrilamid (AAm) (Sigma, Steinheim, Almanya), yardımcı monomer olarak sodyum vinilsülfonat (vinilsülfonik asit sodyum tuzu) (SVS) (SVS'in sudaki % 25'lik çözeltisi) (Aldrich, Steinheim, Almanya), çapraz bağlayıcı olarak poli(etilen glikol) diakrilat (PEGDA) ($M_n=700 \text{ g mol}^{-1}$) (Aldrich, Steinheim, Almanya) kullanılmıştır. Semi-IPN oluşturmak üzere doğal bir polimer olan karboksimetil selüloz sodyum tuzu (CMC) (Fluka, Steinheim, Almanya) ve kristal yapıya sahip bir alüminyum silikat olarak bilinen zeolit (ZEO) (Sigma, Steinheim, Almanya) kullanılmıştır. ZEO, Sigma Katalog No; 96096 olan, 3 Å gözenek boyutunda, tanecik dağılımı $<10 \mu\text{m}$ değerinde “toz” malzeme karakterinde teknik özelliklere sahiptir. Ayrıca “Abscents 3000” ve “Agrolithe 15/25” ticari adları ile de satışı yapılmaktadır. Başlatıcı olarak amonyum persülfat (APS) (Sigma, Steinheim, Almanya) ve hızlandırıcı olarak *N,N,N',N'*-tetrametiletilediamin (TEMED) (Sigma, Steinheim, Almanya) kullanılarak çapraz bağlı kopolimer üretimi gerçekleştirilmiştir. Kullanılan kimyasalların formül ve kısaltmaları Çizelge 3.1'de verilmiştir.



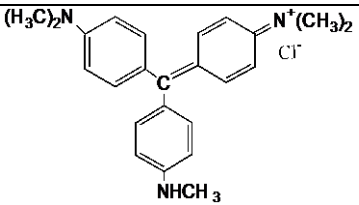
Şekil 3.1. Çalışmada kullanılan ZEO'nun görünümü

Çizelge 3.1. Biyohibrit hidrojel ve semi-IPN üretiminde kullanılan kimyasalların formülleri ve kısaltmaları

Madde	Formül	Kısa gösterim
Akrilamid(propen amid)	$H_2C=CHCONH_2$	AAm
Sodyum vinilsülfonat	$C_2H_4O_3SNa$	SVS
Poli(etilen glikol) diakrilat	$CH_2=CHCO[OCH_2CH_2]OCOCH=CH_2$	PEGDA
Karboksimetil selüloz	$C_6H_7O_2(OH)_2OCH_2COO_2$	CMC
Zeolit	$(M^+, M^{++})^d_{y/d} [(Al_y Si_{x-y})_x O_{2x}].nH_2O$	ZEO
Amonyum persülfat	$(NH_4)_2S_2O_8$	APS
<i>N,N,N',N'</i> -Tetrametiletilendiamin	$(CH_3)_2NCH_2CH_2N(CH_3)_2$	TEMED

Polimerik kompozit hidrojellerin yüzey soğurum özelliklerinin incelenmesi için boyarmadde olarak katyonik karakterdeki metil viyole (MV) (Fluka, Steinheim, Almanya) kullanılmıştır. Kullanılan boyar maddenin kimyasal formülü, kısa gösterimi ve bazı özellikleri Çizelge 3.2’de verilmiştir.

Çizelge 3.2. Soğurum çalışmalarında kullanılan MV’nin kimyasal formülü ve bazı özellikleri (Kundakcı, 2011; Kundakçı ve Karadağ, 2014)

İsim	Kimyasal Formül	Mol Kütlesi (g mol ⁻¹)	λ_{mak} (nm)	Renk İndeks No
Metil viyole (Basic Violet 1) (MV)		393,5	584	42535

3.2. Polimerik Örneklerin Hazırlanması

3.2.1. Hidrojel ve semi-IPN'lerin Sentezi

AAM esaslı anyonik hidrojellerin sentezinde yardımcı monomer olarak SVS ve çapraz bağlayıcı olarak PEGDA kullanılmıştır. Doğal bir polimer olan CMC içeren polimerik yapıların üretiminde %2,0'lik sulu CMC çözeltisi kullanılmıştır. Oda sıcaklığında hazırlanan %2,0'lik sulu CMC çözeltisinden, polimerik yapıların %1,0 CMC içeriğine sahip olabilmeleri için, belirli hacimlerde kullanılmıştır. Kompozit kopolimerlerin üretiminde %2,0'lik su-ZEO süspansiyonu kullanılmıştır. Oda sıcaklığında hazırlanan su-ZEO süspansiyonundan, polimerik yapıların %1,0 ZEO içeriğine sahip olabilmeleri için, yine belirli hacimlerde alınarak karışıma eklenmişlerdir.

AAM/SVS hidrojel üretimi: AAM esaslı hidrojelleri sentezlemek için kullanılan AAM monomer miktarı sabit tutulmuş ve eklenen SVS yardımcı monomerin miktarı değiştirilerek çapraz bağlayıcı yardımıyla çözelti ortamında serbest radikalik polimerleşme yöntemi kullanılmıştır. Hidrojel sentezi için 1,0 g (14,07 mmol) AAM monomeri 1,0 mL suda çözülerek sulu AAM çözeltisi hazırlanmıştır. AAM'in sulu çözeltilerine ayrı ayrı sırasıyla 0 µL, 60 µL (0,544 mmol), 120 µL (1,088 mmol), 180 µL (1,633 mmol), 240 µL (2,176 mmol), 300 µL (2,72 mmol) şeklinde değişen oranlarda SVS eklenerek monomer karışımı elde edilmiştir. (Çizelge 3.3). Bu karışıma sırasıyla 0,25 mL (0,004 mmol) %1,0'lik çapraz bağlayıcı PEGDA, 5,0 g/100 mL APS çözeltisinden 0,2 mL (0,044 mmol) ve 0,25 mL (0,017 mmol) %1,0'lik TEMED eklenmiştir. Hazırlanan çözeltiler çapı 0,7 cm ve yüksekliği 0,3 cm olan özel polimerik silindirik kalıplara doldurularak çapraz bağlanmaları sağlanmıştır. Çapraz bağlanmaları tamamlanan polimer örnekler kalıplardan çıkarılarak üç gün boyunca bir kapta su ile yedi kez yıkanmıştır. Sonra bu örnekler önce açık havada kurutulmuş, sonra vakum etüvünde 10 gün bekletilerek tamamen kurumaları sağlanmıştır.

AAM/SVS/CMC semi-IPN üretimi: 1,0 g (14,07 mmol) AAM monomeri %2,0'lik 0,5 mL CMC çözeltisi ve 0,5 mL saf sudan oluşan 1,0 mL çözeltiye 0 µL, 60 µL (0,544 mmol), 120 µL (1,088 mmol), 180 µL (1,633 mmol), 240 µL (2,176 mmol), 300 µL (2,72 mmol) SVS eklenerek hazırlanan karışıma sırasıyla 0,25 mL (0,004 mmol) %1,0'lik çapraz bağlayıcı PEGDA, 5,0 g/100 mL APS çözeltisinden 0,2 mL (0,044 mmol) ve 0,25 mL (0,017 mmol) %1,0'lik TEMED

eklenmiştir. (Çizelge 3.3). Hazırlanan çözeltiler çapı 0,7 cm ve yüksekliği 0,3 cm olan özel polimerik silindirik kalıplara doldurularak çapraz bağlanmaları sağlanmıştır. Çapraz bağlanmaları tamamlanan polimer örnekler kalıplardan çıkarılarak üç gün boyunca bir kaptaki su ile yedi kez yıkanmıştır. Sonra bu örnekler önce açık havada kurutulmuş, sonra vakum etüvünde 10 gün bekletilerek tamamen kurumaları sağlanmıştır.

Farklı miktarlarda CMC içeren AAm/SVS/CMC semi-IPN üretimi: CMC miktarının değişimi ile üretilen hidrojellerin özelliklerinin nasıl değiştiğini incelemek için 240 µL SVS miktarı sabit tutularak %0,5; %1,0; %1,5 ve %2,0 CMC içeriğine sahip polimerik yapılar üretilmiştir. 1,0 g (14,07 mmol) AAm monomerlerinin, 0,25; 0,5; 0,75 ve 1,0 mL (%2,0'lik) CMC çözeltisi ve sırasıyla 0,75; 0,5; 0,25 ve 0,0 mL saf sudan oluşan 1,0 mL çözeltisine 240 µL SVS eklenerek hazırlanan karışıma sırasıyla 0,25 mL (0,004 mmol) %1,0'lik çapraz bağlayıcı PEGDA, 5,0 g/100 mL APS çözeltisinden 0,2 mL (0,044 mmol) ve 0,25 mL (0,017 mmol) %1,0'lik TEMED eklenmiştir (Çizelge 3.3). Hazırlanan çözeltiler çapı 0,7 cm ve yüksekliği 0,3 cm olan özel polimerik silindirik kalıplara doldurularak çapraz bağlanmaları sağlanmıştır. Çapraz bağlanmaları tamamlanan polimer örnekler kalıplardan çıkarılarak üç gün boyunca bir kaptaki su ile yedi kez yıkanmıştır. Sonra bu örnekler önce açık havada kurutulmuş, sonra vakum etüvünde 10 gün bekletilerek tamamen kurumaları sağlanmıştır.

AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojel üretimi: 1,0 g (14,07 mmol) AAm monomeri, %2,0'lik 0,5 mL su-ZEO süspansiyonu ve 0,5 mL saf sudan oluşan 1,0 mL karışıma 0 µL, 60 µL (0,544 mmol), 120 µL (1,088 mmol), 180 µL (1,633 mmol), 240 µL (2,176 mmol), 300 µL (2,72 mmol) SVS eklenerek hazırlanan karışıma sırasıyla 0,25 mL (0,004 mmol) %1,0'lik çapraz bağlayıcı PEGDA, 5,0 g/100 mL APS çözeltisinden 0,2 mL (0,044 mmol) ve 0,25 mL (0,017 mmol) %1,0'lik TEMED eklenmiştir (Çizelge 3.3). Hazırlanan çözeltiler çapı 0,7 cm ve yüksekliği 0,3 cm olan özel polimerik silindirik kalıplara doldurularak çapraz bağlanmaları sağlanmıştır. Çapraz bağlanmaları tamamlanan polimer örnekler kalıplardan çıkarılarak üç gün boyunca bir kaptaki su ile yedi kez yıkanmıştır. Sonra bu örnekler önce açık havada kurutulmuş, sonra vakum etüvünde 10 gün bekletilerek tamamen kurumaları sağlanmıştır.

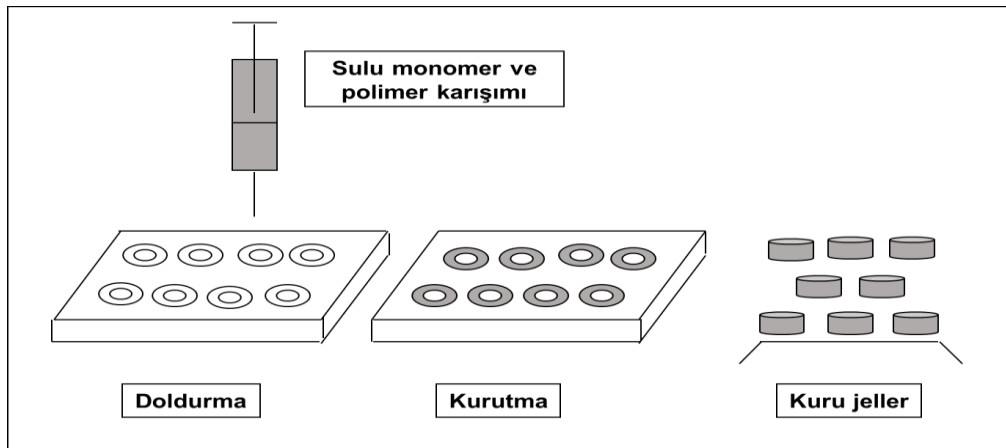
Farklı miktarlarda ZEO içeren AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojel üretimi: ZEO miktarının değişimi ile üretilen hidrojellerin özelliklerinin nasıl değiştiğini

incelemek için 240 μL SVS miktarı sabit tutularak %0,5; %1,0; %1,5 ve %2,0 ZEO içeriğine sahip polimerik yapılar üretilmiştir. 1,0 g (14,07 mmol) AAm monomerlerinin, 0,25; 0,5; 0,75 ve 1,0 mL (%2,0'lik) su-ZEO süspansiyonu ve sırasıyla 0,75; 0,5; 0,25 ve 0,0 mL saf sudan oluşan 1,0 mL çözeltisine 240 μL SVS eklenerek hazırlanan karışıma sırasıyla 0,25 mL (0,004 mmol) %1,0'lik çapraz bağlayıcı PEGDA, 5,0 g/100 mL APS çözeltisinden 0,2 mL (0,044 mmol) ve 0,25 mL (0,017 mmol) %1,0'lik TEMED eklenmiştir (Çizelge 3.3). Hazırlanan çözeltiler çapı 0,7 cm ve yüksekliği 0,3 cm olan özel polimerik silindirik kalıplara doldurularak çapraz bağlanmaları sağlanmıştır. Çapraz bağlanmaları tamamlanan polimer örnekler kalıplardan çıkarılarak üç gün boyunca bir kapta su ile yedi kez yıkanmıştır. Sonra bu örnekler önce açık havada kurutulmuş, sonra vakum etüvünde 10 gün bekletilerek tamamen kurumaları sağlanmıştır.

AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojel üretimi: 1,0 g (14,07 mmol) AAm monomeri, %2,0'lik 0,5 mL CMC çözeltisi ve %2,0'lik 0,5 mL su-ZEO süspansiyonundan oluşan 1,0 mL karışıma 0 μL , 60 μL (0,544 mmol), 120 μL (1,088 mmol), 180 μL (1,633 mmol), 240 μL (2,176 mmol), 300 μL (2,72 mmol) SVS eklenerek hazırlanan karışıma sırasıyla 0,25 mL (0,004 mmol) %1,0'lik çapraz bağlayıcı PEGDA, 5,0 g/100 mL APS çözeltisinden 0,2 mL (0,044 mmol) ve 0,25 mL (0,017 mmol) %1,0'lik TEMED eklenmiştir (Çizelge 3.3). Hazırlanan çözeltiler çapı 0,7 cm ve yüksekliği 0,3 cm olan özel polimerik silindirik kalıplara doldurularak çapraz bağlanmaları sağlanmıştır. Çapraz bağlanmaları tamamlanan polimer örnekler kalıplardan çıkarılarak üç gün boyunca bir kapta su ile yedi kez yıkanmıştır. Sonra bu örnekler önce açık havada kurutulmuş, sonra vakum etüvünde 10 gün bekletilerek tamamen kurumaları sağlanmıştır. AAm/SVS, AAm/SVS/CMC, AAm/SVS/ZEO, AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojel ve semi-IPN'lerin hazırlanmasında Çizelge 3.3'de verilen değerlere uyulmuştur.

Çizelge 3.3. Biyohibrit polimerik örneklerin hazırlanmasında kullanılan SVS, CMC ve ZEO içeriklerinin bileşimlerine göre değişimleri

Hidrojelın kısa adı	SVS (μL)	Su (mL)	CMC (mL) (%2,0'lık su-ZEO süspansiyonu)	ZEO (mL) (%2,0'lık su-CMC çözeltisi)
AAm/SVS	0-300	1,0	-	-
AAm/SVS/ZEO	0-300	0,50	-	0,50
AAm/SVS/CMC	0-300	0,50	0,50	-
AAm/SVS/ZEO/CMC	0-300	-	0,50	0,50
AAm/SVS/CMC (CMC değişimi)	240	0,75-0,50-0,25	0,25-0,50-0,75	-
AAm/SVS/ZEO (ZEO değişimi)	240	0,75-0,50-0,25	-	0,25-0,50-0,75



Şekil 3.2. Polimerik örneklerin hazırlanma şeması

3.3. Polimerik Örneklerin Karakterizasyonu

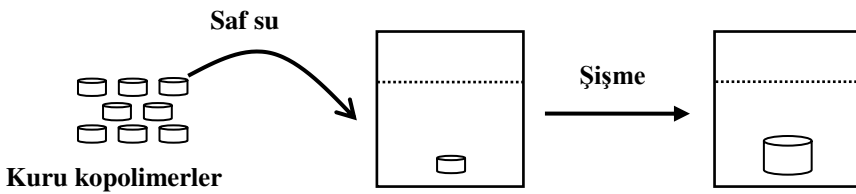
Hazırlanan polimerlerin karakterizasyonu için spektroskopik karakterizasyon ve şişme karakterizasyon yöntemleri uygulanmıştır. Çapraz bağlı yapıların yüzey özellikleri ile ilgili bilgi edinebilmek için taramalı elektron mikroskobu (Scanning electron microscopy, SEM) mikrografları da alınmıştır. Ayrıca yüzey soğurum özelliklerini araştırmak amacıyla boyarmadde soğurum çalışmaları yapılmıştır.

3.3.1. Spektroskopik Karakterizasyon

Bu çalışmada elde edilen biyohibrit hidrojel ve semi-IPN'lerin spektroskopik karakterizasyonlarının yapılması için, çalışmada elde edilen örneklerin; azalan tam yansıma spektroskopisi (*Attenuated Total Reflectance*; ATR) ünitesi olan Fourier transform infrared spektrofotometresi (Fourier Geçirmeli Kızılötesi) (FT-IR) ile FT-IR/ATR spektrumları alınmıştır. Spektrumların alınabilmesi için Çanakkale Onsekiz Mart Üniversitesi Polimer Araştırma Laboratuvarı'nda bulunan THERMO SCIENTIFIC NICOLET is10 SMARTt FT-IR/ATR (Amerika) kullanılmıştır.

3.3.2. Su/Sıvı Soğurum Karakterizasyonu

Hazırlanan çapraz bağlı kopolimerlere 25°C'da dinamik su/sıvı soğurum testleri uygulanmıştır. Bunun için kuru haldeki kopolimerler 0,0001 g duyarlılıkta tartım yapabilen DENVER TP-214 elektronik hassas terazi yardımıyla tartılarak MEMMERT WB 29 su banyosunda $25 \pm 0,1$ °C sabit sıcaklıkta, içinde damıtık su bulunan beherlere konularak şişmeye bırakılmıştır. Polimerik örneğin suya bırakıldığı an; $t=0$ alınmış ve belirli zaman aralıklarında çıkarılan hidrojel yüzeyindeki su kurulanıp aynı duyarlılıkla tartılmıştır. Değişmeyen kütle değerleri elde edilene kadar işleme devam edilmiştir. Değişmeyen değerler elde edildiğinde şişmenin dengeye ulaştığı kabul edilmiştir ve deney sonuçlandırılmıştır.



Şekil 3.3. Çapraz bağlı hidrojellerin şişme çalışmalarında kullanımı

3.3.2.1. Farklı Su-Çözücü Karışımlarında Sıvı Soğurum Çalışmaları

Bu çalışmada kullanılan çözücüler, aseton (ASE) (Riedel-de Haen, Almanya), metanol (MET) (Riedel-de Haen, Almanya) ve tetrahidrofuran (THF) (Riedel-de Haen, Almanya)'dır. Bu çalışmada elde edilecek biyohibrit hidrojel sistemlerin

değişik çözücü-su karışımlarındaki sıvı soğurum özelliklerini denetlemek ve incelemek amacı ile %60'lık ASE-su, %60'lık MET-su ve %60'lık THF-su karışımları hazırlanmıştır.

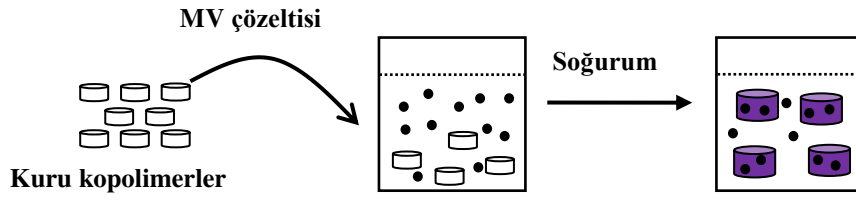
3.3.3. SEM Analizi

Çalışmada hazırlanan çapraz bağlı kopolimerlerin yüzey görünümü hakkında bilgi edinebilmek için SEM mikrografları çekilmiştir. SEM çekimi için İzmir Yüksek Teknoloji Enstitüsü (İYTE), Malzeme Araştırma Merkezi'nde (MAM) bulunan PHILLIPS XL-30S FEG, FEI QUANTA 250 FEG (Hollanda) cihazı kullanılmıştır.

3.3.4. Boyarmadde Soğurumu

Kuru haldeki çapraz bağlı polimerik örnekler boyarmadde çözeltilerinde bir süre bekletildiklerinde, örneklerde uygun renklenmeler görülmüştür.

Yapılan ön denemelerde hidrojel, biyohibrit hidrojel ve semi-IPN hidrojellerin metil viyoleyi (MV) soğurabileceği görülmüş ve yüzey soğurum çalışmalarında bu boyar madde kullanılmıştır. MV soğurumunu nicel olarak açıklayabilmek için $0,75 \times 10^{-5}$ - $75,0 \times 10^{-5}$ M arasında değişen derişimlerde sulu MV boyar madde çözeltileri ile 240 µL SVS (yardımcı monomer) içeren çapraz bağlı kopolimerler dengeye gelene kadar 25°C'da etkileştirilmiştir. Yardımcı monomer içeriğinin soğuruma etkisini araştırmak için $2,5 \times 10^{-5}$ M sabit derişimde boyar madde çözeltileri ile 60; 120; 180; 240 ve 300 µL SVS yardımcı monomeri içeren biyohibrit hidrojel ya da semi-IPN'lerin etkileşmesi sağlanmıştır. Dengeye gelen hidrojel sistemler dekantasyon yöntemi ile çözeltiden ayrılmış ve çözelti absorbansları ADÜ FEF Kimya Bölümü'nde bulunan SHIMADZU UV-VIS spektrofotometre (Avustralya) kullanılarak 584 nm dalga boyunda ölçülmüştür (Kundakcı, 2011; Wang vd., 2010; Kundakcı ve Karadağ, 2014). Ölçüm için referans olarak saf su kullanılmıştır. Öncesinde hazırlanan ve ekte sunulan çalışma eğrisi yardımıyla ölçülen absorbans değerlerine karşılık gelen derişimler hesaplanmıştır.



Şekil 3.4. Çapraz bağlı biyohibrit hidrojel ve semi IPN'lere boyar madde soğurumu

4. BULGULAR VE TARTIŞMA

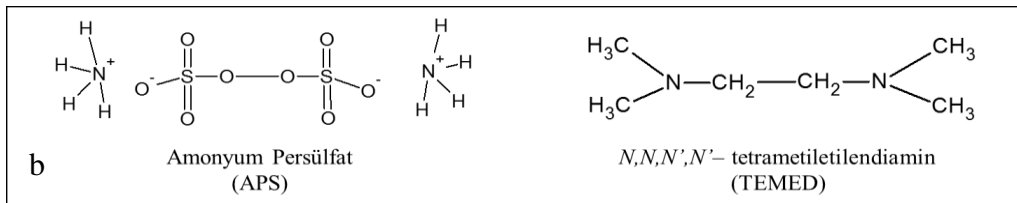
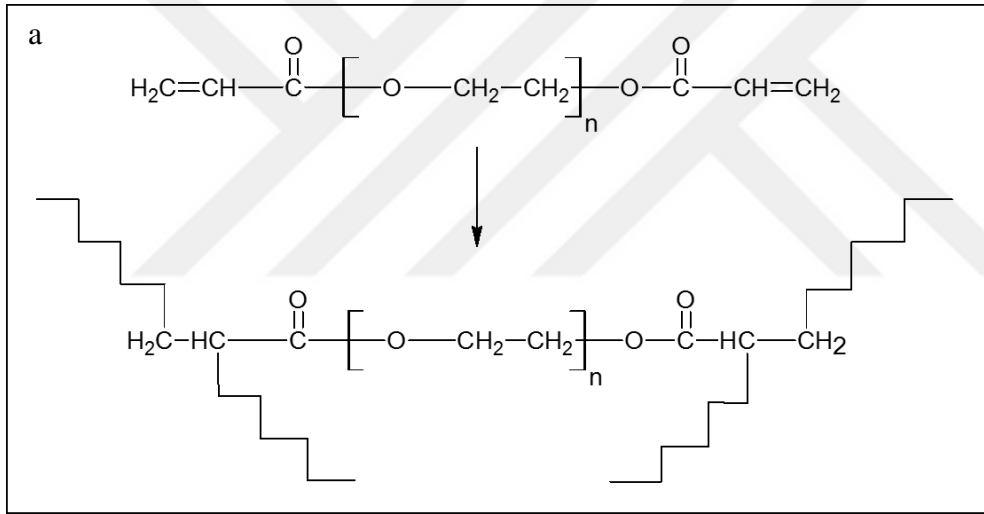
4.1. Çapraz Bağlı Polimerlerin Hazırlanması

Bu çalışmada akrilamid (AAm) monomeri ve hidrofilik gruplar taşıyan sodyum vinilsülfonat (SVS) yardımcı monomeri kullanılarak farklı özelliklerde yeni hidrojeller, semi-IPN hidrojeller ve biyohibrit hidrojeller sentezlenmiştir. Semi IPN ve bazı biyohibrit hidrojellerin elde edilmesi için doğal bir polimer olan sodyum karboksimetil selüloz (CMC) kullanılmıştır. Ayrıca polimer biyohibrit/kompozit hidrojellerin elde edilmesi için zeolit (ZEO) kullanılmıştır. Monomerler poli(etilen glikol) diakrilat (PEGDA) çapraz bağlayıcısı kullanılarak çözeltide serbest radikalik polimerleşme tepkimesi ile polimerleştirilmiştir. Spektroskopik karakterizasyon ve şişme karakterizasyonu yöntemleri kullanılarak bu çalışmada elde edilen kimyasal çapraz bağlı kopolimerlerin karakterizasyonları gerçekleştirilmiştir. Ayrıca polimerik örneklerin yüzey özellikleri hakkında bilgi edinebilmek amacıyla SEM görünümüleri/mikrografları alınmıştır. Üretilen çapraz bağlı kopolimerlerin, çevre kirliliğinin önemli bir sorunu olan boyarmadde kirliliğinin giderilmesinde adsorban olarak kullanımı için yüzeye soğurum çalışmaları yapılmıştır.

'ZEO' ile 'CMC' içeren ve 'ZEO' ile 'CMC' içermeyen hidrojeller, PEGDA kimyasal çapraz bağlayıcısı kullanılarak çözelti ortamında serbest radikalik polimerleşme tepkimesi ile üretilmiştir. AAm monomerinin su, ZEO-su süspansiyonu ve sulu CMC çözeltisine, farklı özelliklerde polimerik örnekler elde edebilmek amacıyla değişen miktarlarda SVS yardımcı monomeri eklenmiştir. Çapraz bağlayıcı, başlatıcı ve hızlandırıcı yardımıyla çapraz bağlı kopolimerlerin üretimi gerçekleştirilmiştir. Şekil 4.1'de AAm monomeri ve SVS yardımcı monomerinin kimyasal yapıları verilmiştir.

$\begin{array}{c} \text{NH}_2 \\ \\ \text{O}=\text{C} \\ \\ \text{H}_2\text{C}=\text{CH} \end{array}$	$\begin{array}{c} \text{H}_2\text{C}=\text{CH} \\ \\ \text{O}=\text{S}=\text{O} \\ \\ \text{O}^- \text{Na}^+ \end{array}$
AAm	SVS

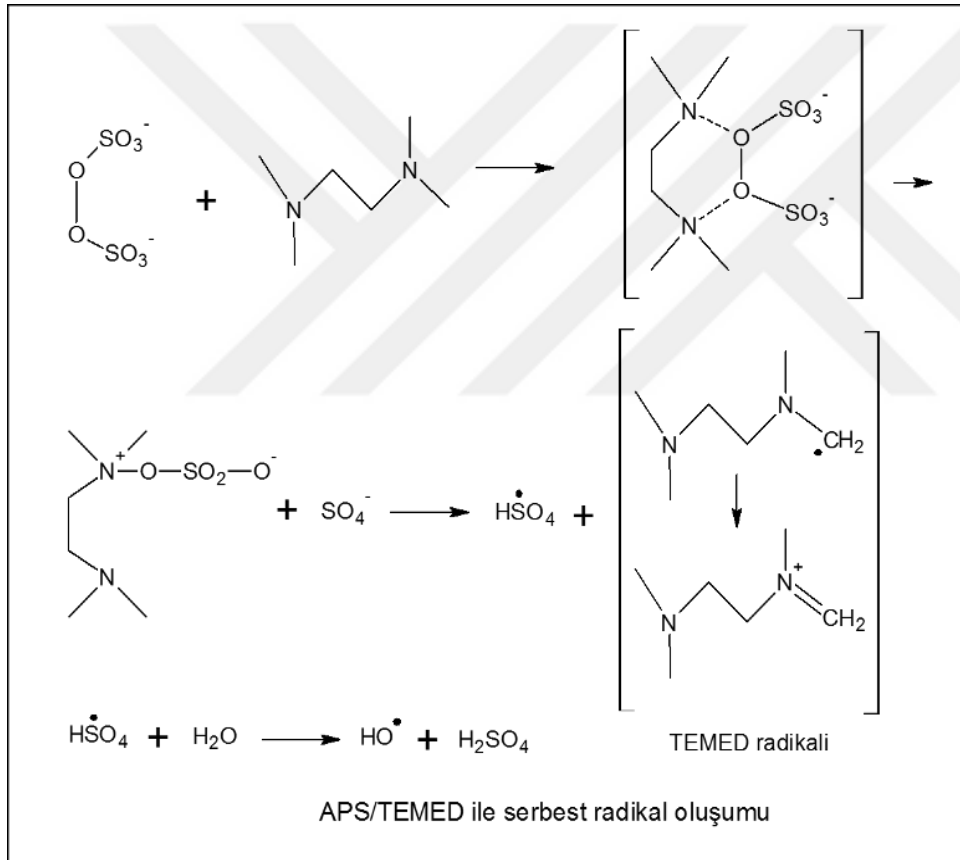
Şekil 4.1. AAm monomeri ve SVS yardımcı monomerinin kimyasal yapısı



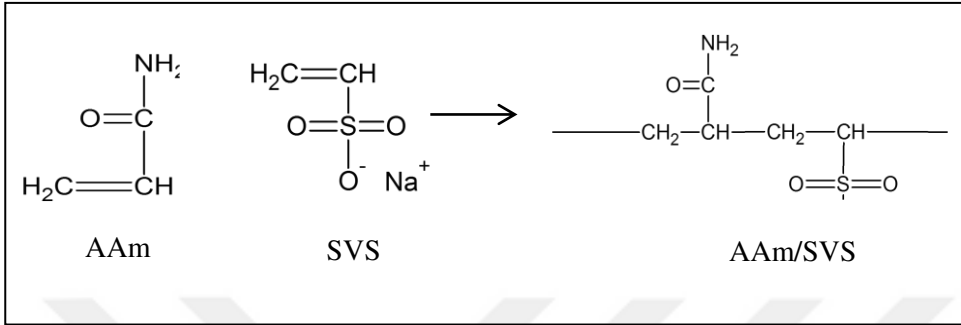
Şekil 4.2.a) Poli (etilen glikol) diakrilat'ın kimyasal yapısı ve bağlanma noktaları,

b) Amonyum persülfat ve TEMED'in kimyasal formülleri

Üretim sırasında çapraz bağlanmayı sağlamak amacıyla iki fonksiyonlu bir çapraz bağlayıcı olan PEGDA kullanılmış ve kimyasal çapraz bağlı hidrojeller elde edilmiştir. Kullanılan PEGDA'nın kimyasal yapısı ve çapraz bağlanmanın şematik gösterimi Şekil 4.2.a'da verilmiştir. Üretimde başlatıcı olarak amonyum persülfat (APS) ve hızlandırıcı olarak *N,N,N',N'*-tetrametiletilendiamin (TEMED) kullanılmıştır. APS ve TEMED'in kimyasal formülleri Şekil 4.2.b'de sunulmuştur.



Şekil 4.3. APS/TEMED ile serbest radikal oluşumunun şematik gösterimi



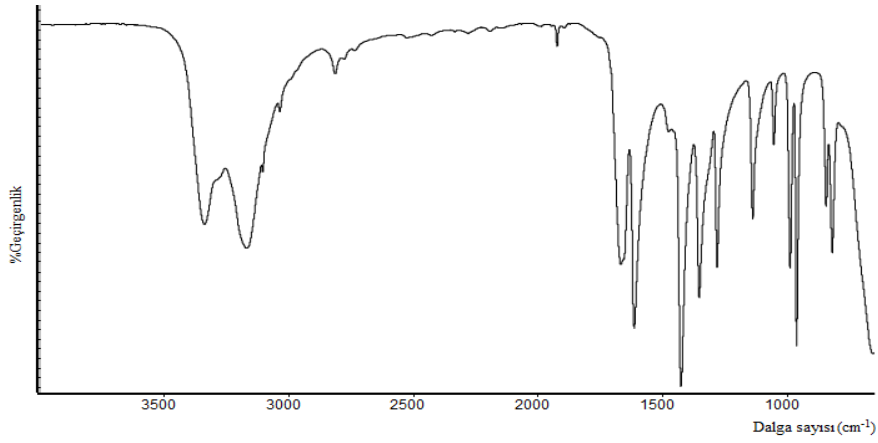
Şekil 4.4. AAm/SVS kopolimerlerinin olası polimerleşme mekanizması

Şekil 4.3 ve 4.4'te APS ile TEMED'in serbest radikal oluşum mekanizması ve oluşan serbest radikal ile AAm ve SVS'tan çapraz bağlı AAm/SVS kopolimerlerinin elde edilmesi gösterilmiştir. AAm monomeri günlük yaşamımızda kullandığımız polimerik ürünler içinde farklı şekilde bulunan bir maddedir. Kokusuz ve kristal yapıda bulunan AAm monomeri; su, etanol, metanol, dimetil eter ve aseton gibi çözücülerde çözünebilmektedir. Katı AAm oda sıcaklığında kararlıdır, fakat erime noktasında, UV ışınlarına veya oksidasyon türleri ile etkileştiğinde kolaylıkla polimerleşir. AAm toksik karakterde bir monomerdur ve insanlar için kanserojen olduğu düşünülmektedir. Kâğıt yapımı, boya imalatı, kozmetik ürünleri, jel elektroforezi, içme suyunun arıtılması ve kirli suyun temizlenmesi AAm'in sıkça kullanıldığı alanlar arasındadır (Karadağ vd., 2014 a; 2014; Karadağ vd., 2014 b; Karadağ ve Kundakçı, 2015).

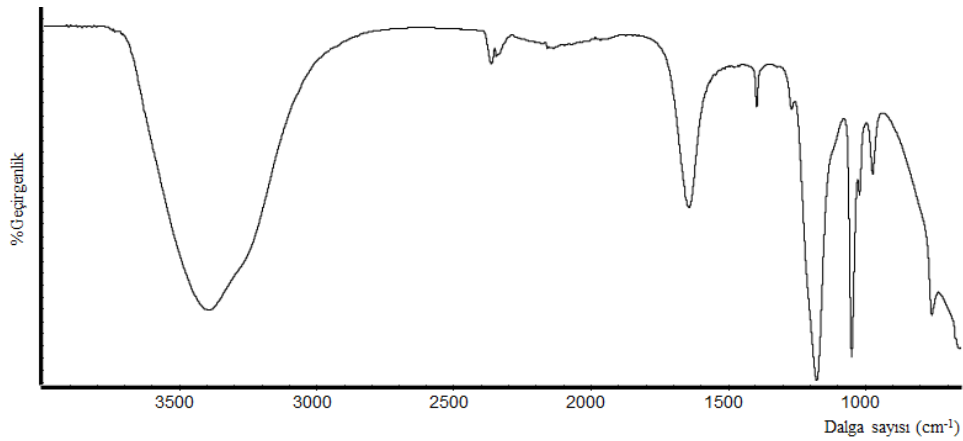
SVS kolay polimerleşebilen, ayrıca modifiye edilebilen bir olefinik bağ ve son ürünün sudaki çözünürlüğünü arttıran sülfonat grubu içerir. Su bazlı yapıştırıcı ve boya reçinesi üretiminde kullanılan SVS, bu çalışmada hidrofilik karakteri nedeni ile tercih edilmiştir. Yapılan bazı çalışmalarda SVS'in yeni polimerler hazırlanmasında başarı ile kullanıldığı da izlenmektedir. Özellikle suda çözünmeyen bazı polimerik grupların çözünürlüklerinin artırılmasında SVS'in kullanıldığı bilinmektedir (Pourjavadi ve Ghasemzadeh, 2007; Miyazaki vd., 2009; Chanthateyanonth vd., 2009).

4.2. Spektroskopik Karakterizasyon

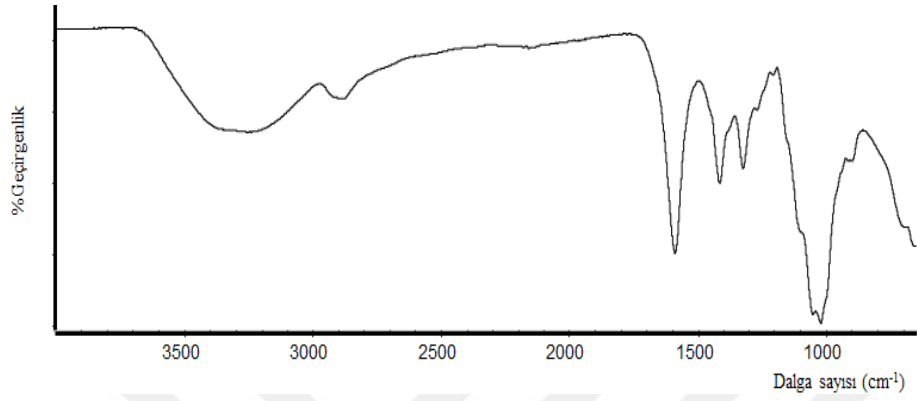
Hazırlanan hidrojellerin kimyasal yapısını aydınlatmak için spektroskopik incelemeler FT-IR spektrofotometresi ile yapılmıştır. Bu amaçla çapraz bağlı kopolimerlerin FT-IR spektrumları alınmıştır. 500-4000 cm^{-1} dalga sayısı aralığında alınan spektrumlar aşağıda sunulmuştur.



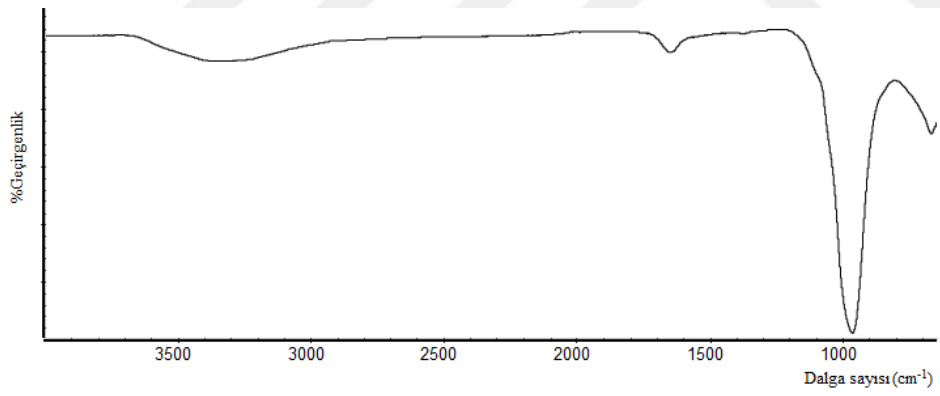
Şekil 4.5. AAm monomerinin FT-IR spektrumu



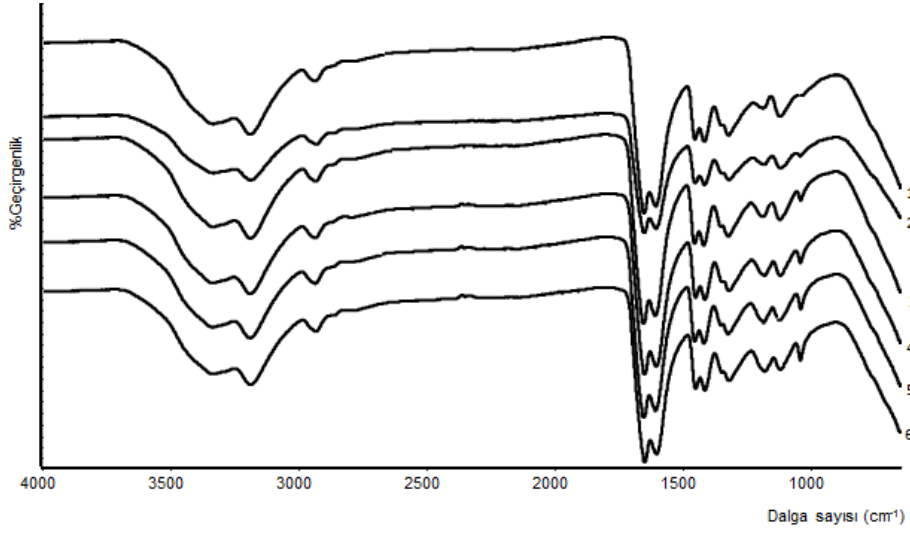
Şekil 4.6. SVS yardımcı monomerinin FT-IR spektrumu



Şekil 4.7. CMC polisakkaritinin FT-IR spektrumu

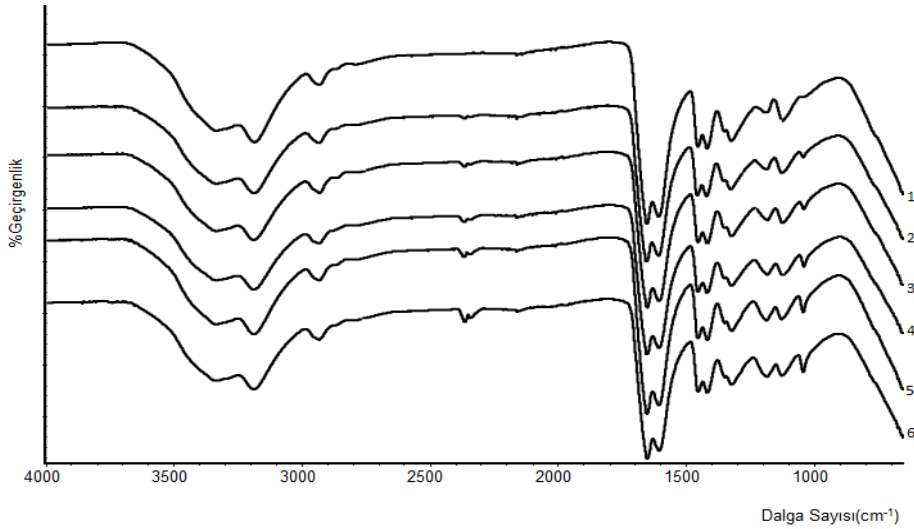


Şekil 4.8. ZEO mineralinin FT-IR spektrumu



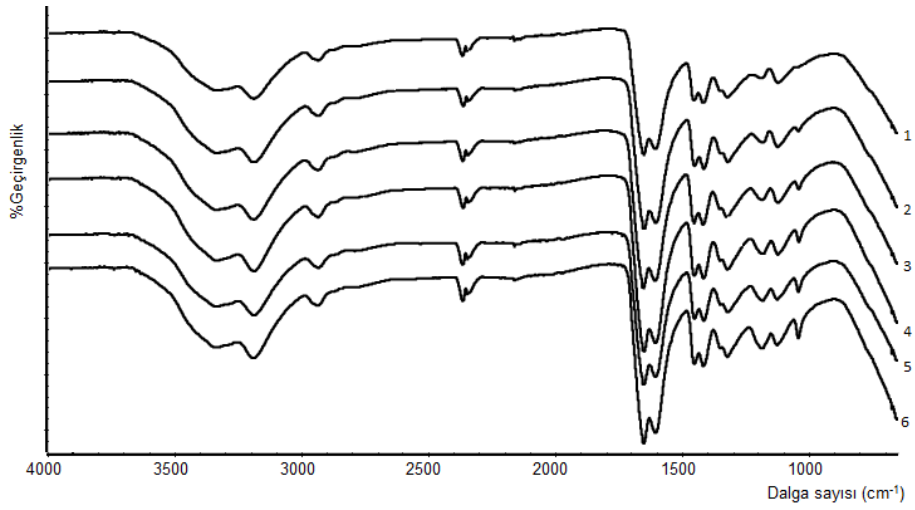
Şekil 4.9. AAm/SVS hidrojenlerinin FT-IR spektrumları

1) 0 SVS 2) 60 SVS 3) 120 SVS 4) 180 SVS 5) 240 SVS 6) 300 SVS



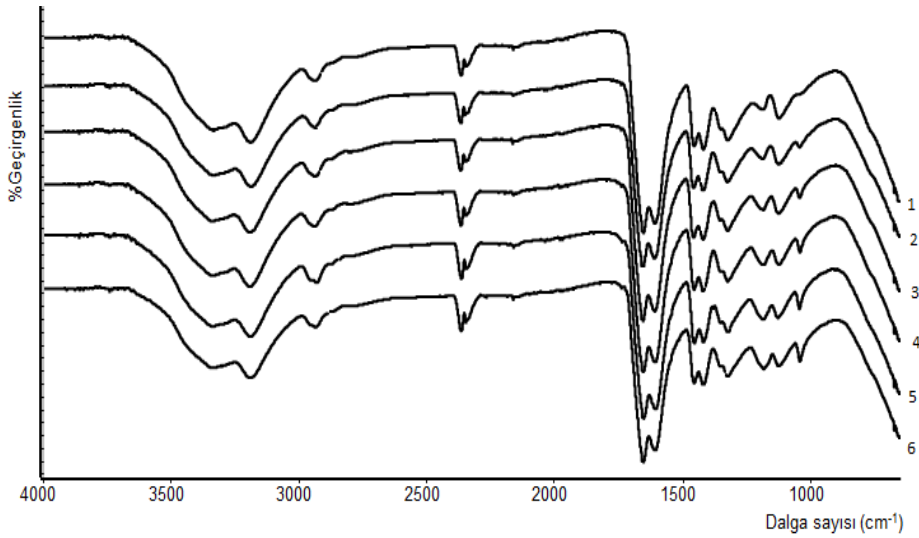
Şekil 4.10. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin FT-IR spektrumları

1) 0 SVS/ZEO 2) 60 SVS/ZEO 3) 120 SVS/ZEO
4) 180 SVS/ZEO 5) 240 SVS/ZEO 6) 300 SVS/ZEO



Şekil 4.11. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin FT-IR spektrumları

- 1) 0 SVS/ZEO 2) 60 SVS/ZEO 3) 120 SVS/ZEO
4) 180 SVS/ZEO 5) 240 SVS/ZEO 6) 300 SVS/ZEO



Şekil 4.12. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin FT-IR spektrumları

- 1) 0 SVS/ZEO 2) 60 SVS/ZEO 3) 120 SVS/ZEO
4) 180 SVS/ZEO 5) 240 SVS/ZEO 6) 300 SVS/ZEO

Şekil 4.5-4.8’de sunulan spektrumlar incelendiğinde $3000-3600\text{ cm}^{-1}$ arasında görülen geniş band, AAm’e ait N-H gerilmelerini göstermektedir. 2900 cm^{-1} civarında görülen pik C-H gerilmelerinden kaynaklanabilir. AAm’e ait C=O gerilim bandı, $1600-1700\text{ cm}^{-1}$ aralığında görülmektedir. AAm’de bulunan –CONH₂ bandı 1600 cm^{-1} civarında gözlenmektedir. $1000-1300\text{ cm}^{-1}$ arasında gözlenen pikler alifatik C-N titreşimleri olabilir. SVS’de bulunan SO gruplarına ait bandlar 1040 cm^{-1} civarında gözlenmektedir (Skoog ve Leary, 1992; Pourjavadi ve Ghasemzadeh, 2007; Miyazaki vd., 2009; Chanthateyanonth vd., 2009).

Şekil 4.5-4.8’de sunulan spektrumlardan alınan bilgiler ışığında AAm’in, SVS’nin, ZEO ve CMC’nin polimerik sistemlerde yer aldığı söylenebilir.

4.3. Su/Sıvı Soğurum Faktörü

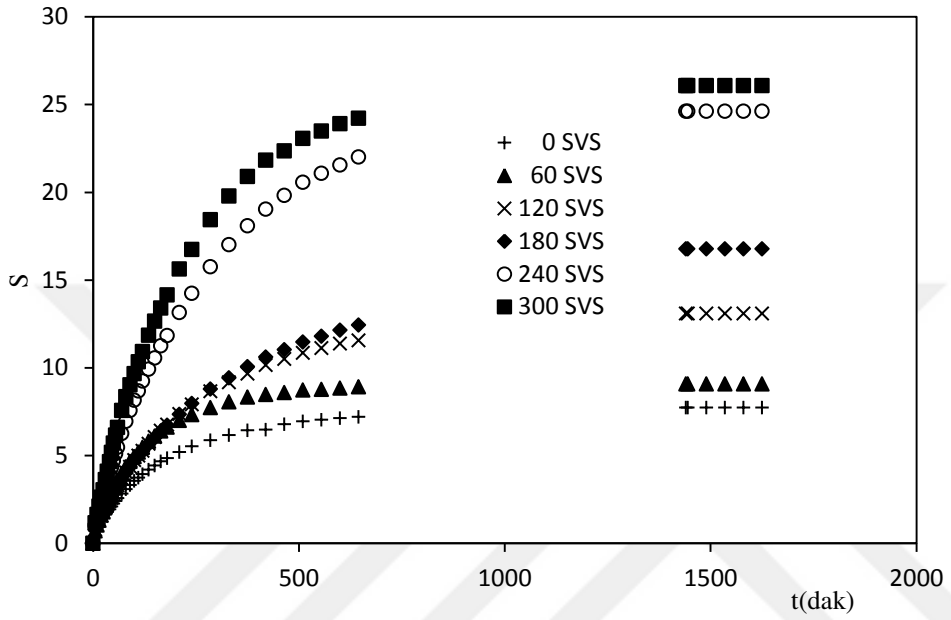
Çapraz bağlı polimerlerin karakterizasyonunda oldukça önemli olan su/sıvı soğurum davranışının ve difüzyon özelliklerinin incelenmesi için kimyasal çapraz bağlı hidrojellere sabit sıcaklıkta dinamik şişme testleri uygulanmıştır.

4.3.1. Dinamik Su/Sıvı Soğurum Çalışmaları

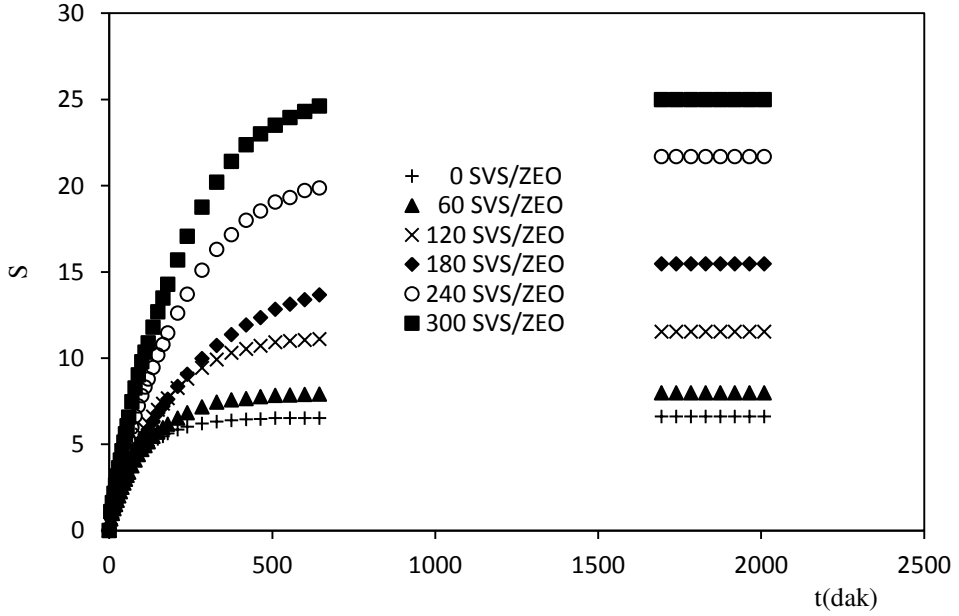
Çapraz bağlı polimerlerde su veya başka sıvıların ya da su/çözücü karışımlarının soğurum davranışının incelenmesi için kimyasal çapraz bağlı hidrojellere sabit sıcaklıkta dinamik şişme testleri uygulanmıştır. Bu amaçla kuru çapraz bağlı polimerik sistemler, duyar tartım yapan bir terazide tartılmıştır. Kuru polimerik örneğin damıtık suya ya da ASE-su; MET-su ve THF-su gibi değişik su-çözücü karışımlarına konulma anı ‘0’ olarak alınmıştır. Belirli süre aralıklarında sudan, ASE-su; MET-su ve THF-su gibi değişik su-çözücü karışımlarından alınan örneklerin yüzeyindeki su kurulandıktan sonra tartılmıştır.

4.3.1.1. Dengede Su/Sıvı Soğurumu

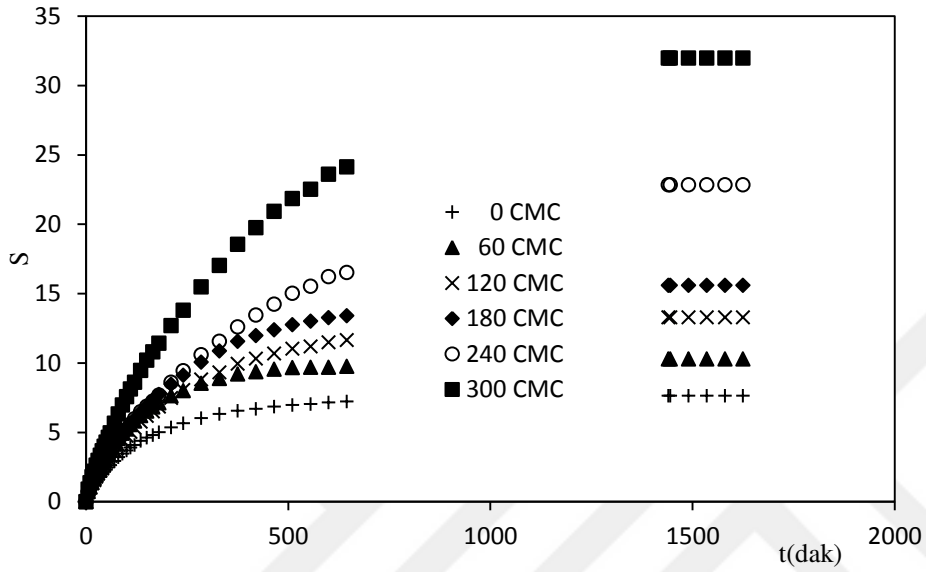
Dinamik su/sıvı soğurum (şişme) testleri sonunda çapraz bağlı polimerler dengeye gelerek sabit su/sıvı soğurum (S_d) değerine ulaşmışlardır. Bu değer ‘denge su/sıvı soğurum’ faktörü (S_d) olarak adlandırılmıştır. Elde edilen veriler yardımıyla S-t grafikleri çizilerek su/sıvı soğurum izotermi oluşturulmuştur. Oluşturulan bu izotermi sırasıyla verilmiştir.



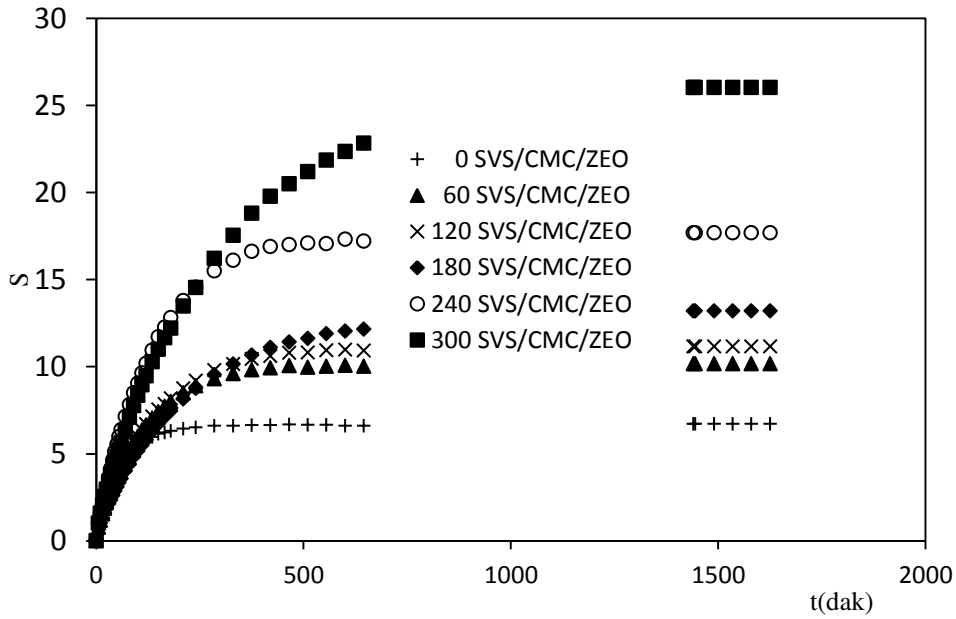
Şekil 4.13. AAm/SVS hidrojenlerinin su/sıvı soğurum izotermeleri



Şekil 4.14. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin su/sıvı soğurum izotermeleri



Şekil 4.15. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinin su/sıvı soğurum izotermeleri



Şekil 4.16. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinin su/sıvı soğurum izotermeleri

Çizelge 4.1. Hidrojel sistemlerin sudaki S_d değerleri

SVS/ μ L	0	60	120	180	240	300
	Dengede su/sıvı soğurum faktörü (S_d)					
AAm/SVS	7,72	9,08	13,09	16,77	24,61	26,07
AAm/SVS/ZEO	6,61	7,97	11,53	15,46	21,69	24,99
AAm/SVS/CMC	7,62	10,27	13,28	15,59	22,83	31,97
AAm/SVS/CMC/ZEO	6,71	10,16	11,15	13,19	17,68	26,02

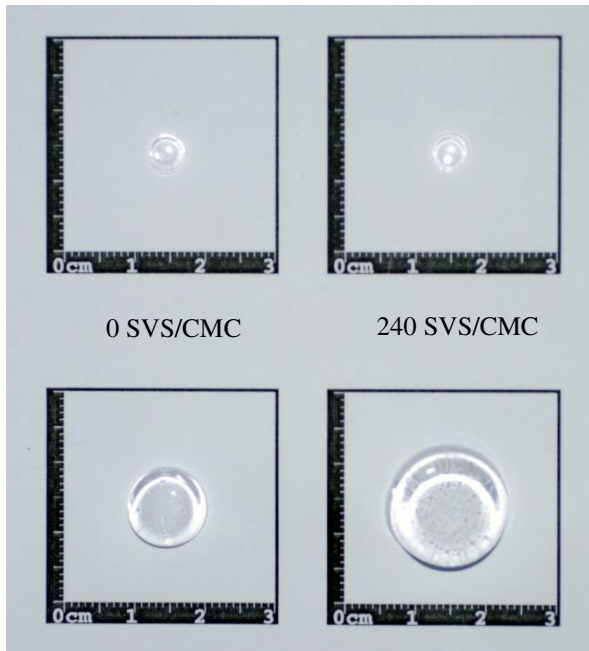
Suda bekletilen hidrojellerin fiziksel olarak nasıl etkilendiğini görsel olarak sunabilmek amacı ile çapraz bağlı hidrojellerin kuru ve suda şişmiş hallerinin fotoğrafları aşağıda verilmiştir.



Şekil 4.17. AAm/SVS hidrojellerinin kuru ve suda şişmiş görüntüleri



Şekil 4.18. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve suda şişmiş görünümleri



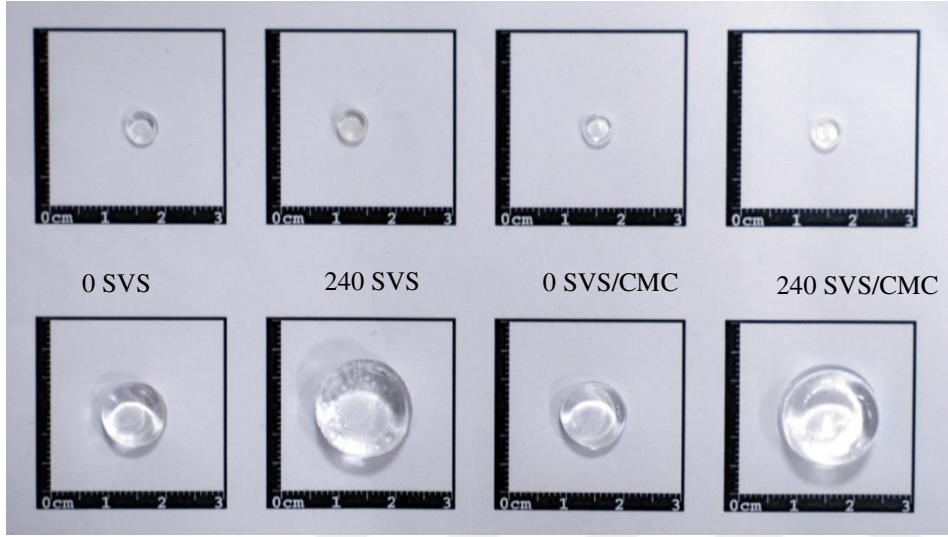
Şekil 4.19. AAm/SVS/CMC semi-IPN'lerin kuru ve suda şişmiş görünümleri



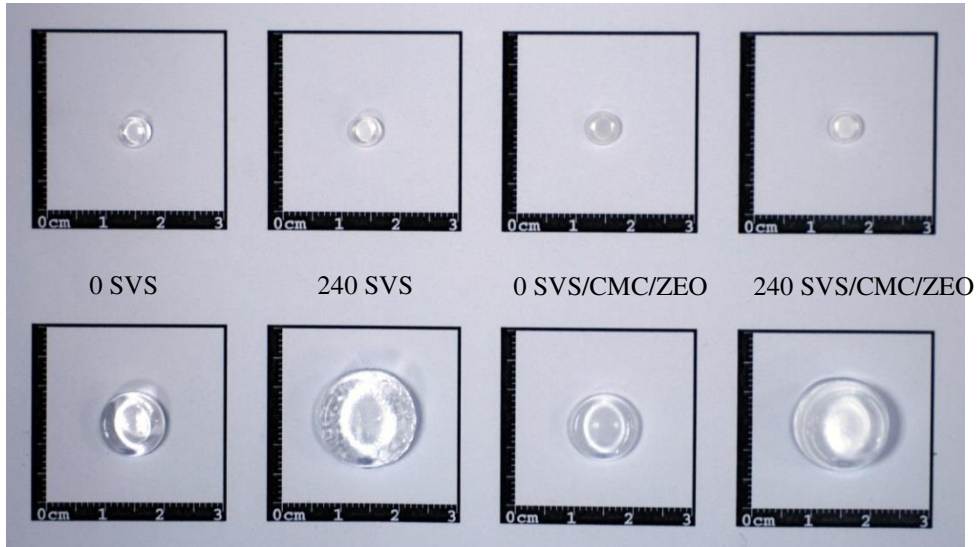
Şekil 4.20. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve suda şişmiş görünümleri



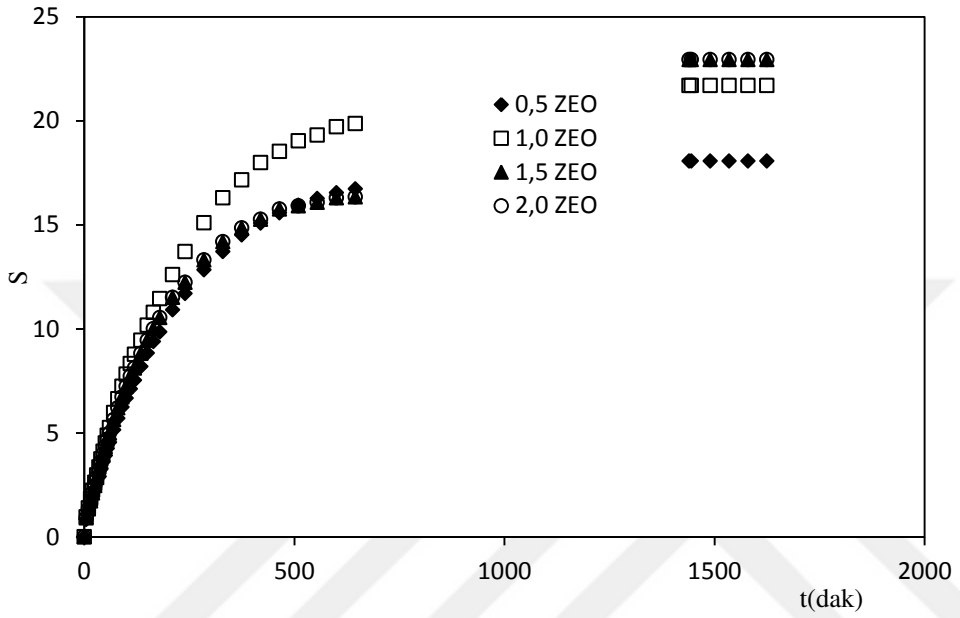
Şekil 4.21. AAm/SVS hidrojenlerinin ve AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve suda şişmiş görünümleri



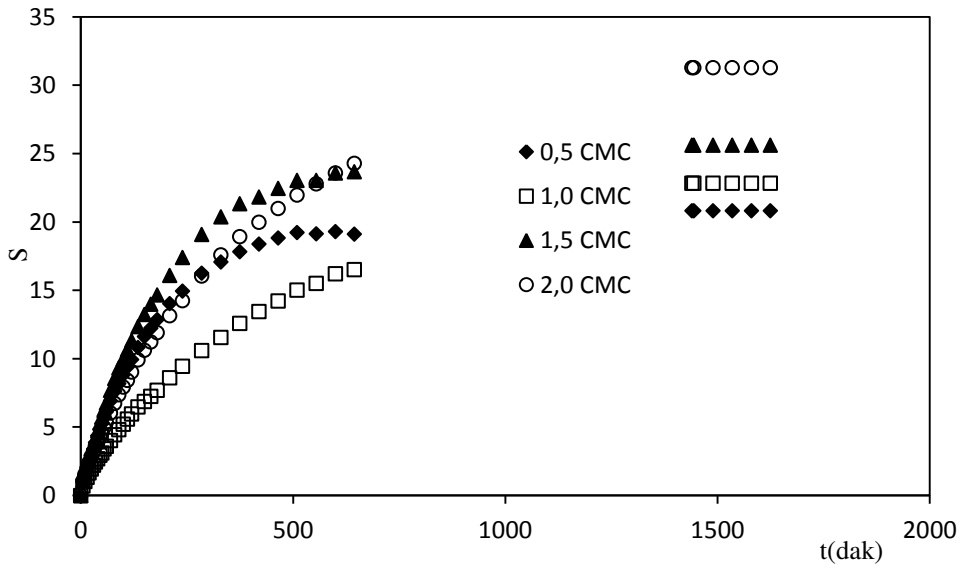
Şekil 4.22. AAm/SVS hidrojellerinin ve AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinin kuru ve suda şişmiş görünümleri



Şekil 4.23. AAm/SVS hidrojellerinin ve AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinin kuru ve suda şişmiş görünümleri



Şekil 4.24. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinin su/sıvı soğurum izotermi

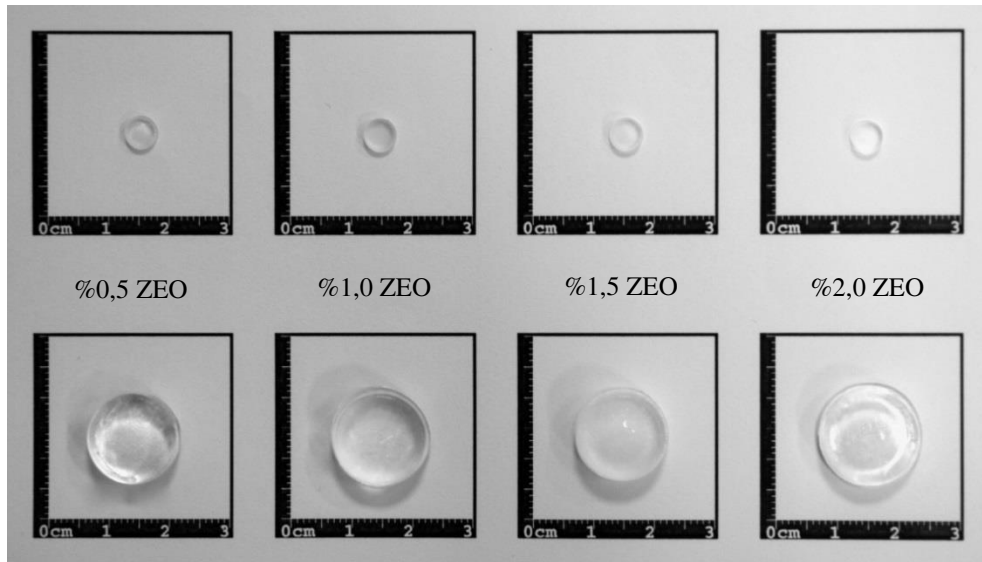


Şekil 4.25. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinin su/sıvı soğurum izotermi

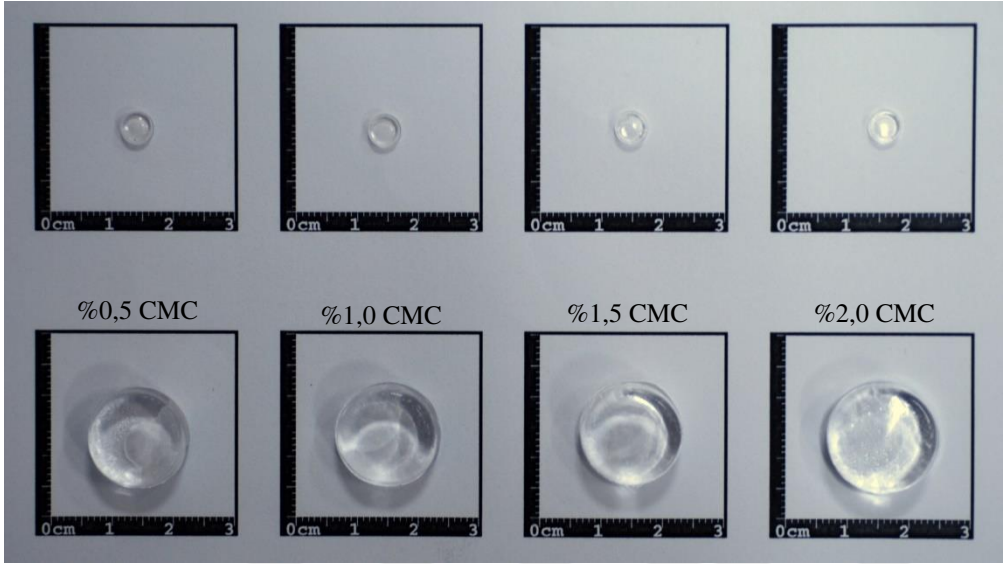
Çizelge 4.2. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 µL SVS içeren hidrojel sistemlerde S_d değerleri

%2'lik ZEO-su süspansiyonu / %2'lik sulu CMC çözeltisi (mL)	0,25	0,50	0,75	1,00
	Dengede su/sıvı soğurum faktörü (S_d)			
ZEO	20,82	22,83	25,62	31,27
CMC	18,06	21,69	22,93	25,13

Çizelge 4.2 incelendiğinde 240 µL SVS içeren hidrojellerde ZEO ve CMC miktarının artması ile S_d değerinde yine artma görülmektedir. Diğer yandan CMC eklenmesiyle elde edilen S_d değerleri ZEO eklenmesiyle elde edilen değerlere oranla daha düşüktür. Bunun nedeni, CMC eklenmesi ile suyun difüzelebileceği boşlukların azalması söz konusu olabilir. Suda bekletilen 240 µL SVS içeren farklı ZEO ve CMC içeriklerine sahip hidrojellerin fiziksel olarak nasıl etkilendiğini görsel olarak sunabilmek amacı ile çapraz bağlı hidrojellerin kuru ve suda şişmiş hallerinin fotoğrafları aşağıda verilmiştir.



Şekil 4.26. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinin kuru ve suda şişmiş görünüşleri

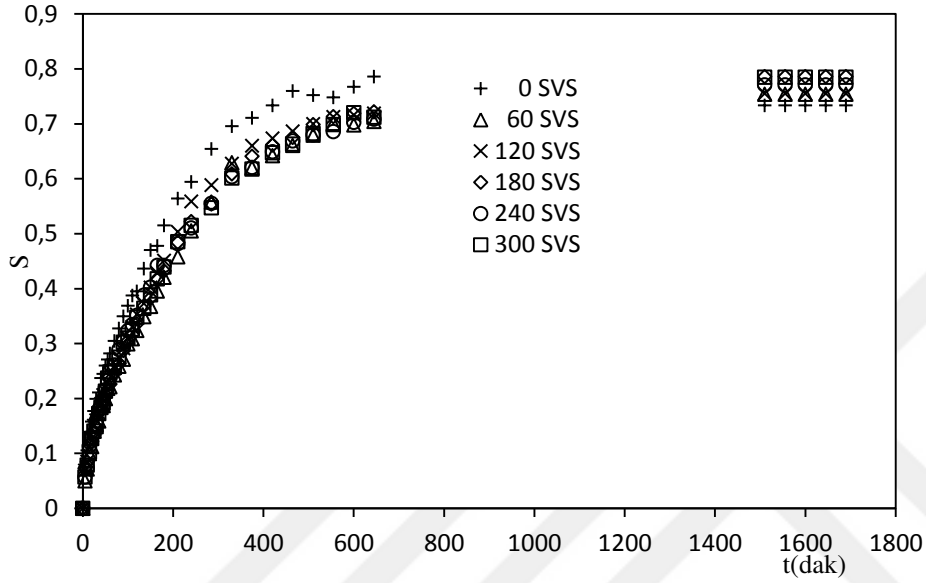


Şekil 4.27. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinin kuru ve suda şişmiş görünümleri

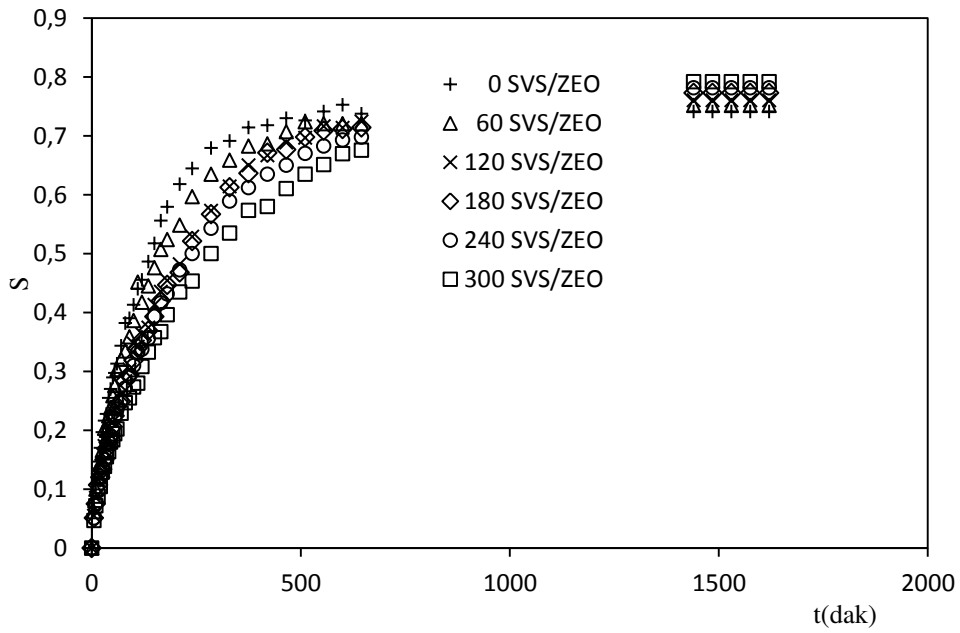
Farklı Su-Çözücü Karışımlarında Sıvı Soğurum Çalışmaları

Değişik amaçlarda hazırlanmış hidrojel sistemlerin farklı çözücülerde şişme davranışlarının bilinmesi, hidrojellerin kullanım alanlarını belirleyecek önemli kriterlerdendir. Çözünenin bir çözeltiden geri kazanımı, denetimli ilaç salınım sistemlerindeki uygulamalar, çevre duyarlı membran/yarı geçirgen zarların hazırlanması ve farklı ortamlardaki davranışlarının bilinmesi, hidrojellerin faz dönüşüm uygulamalarında hacim ve diğer bazı fiziksel özelliklerin izlenmesi ve benzer uygulamalarda hidrojellerin farklı karakterdeki çözücülerdeki davranışlarının bilinmesi çok önemlidir. Bu çalışmada kullanılan çözücüler; aseton (ASE), metanol (MET) ve tetrahidrofuran (THF)'dur. Bu çalışmada elde edilen hidrojel sistemlerin değişik çözücülerdeki sıvı soğurum özelliklerini denetlemek ve incelemek amacı ile hacimce %60'lık ASE-su, %60'lık MET-su ve %60'lık THF-su karışımları hazırlanmıştır (Ilavsky vd., 2002; Hüther vd., 2004; Orlov vd., 2005; Orakdogan ve Okay 2006; Ganji vd., 2010; Kabiri vd., 2010; Patrickios, 2010; Üzüm ve Karadağ, 2010; Hofmann, 2012; Liu vd., 2014).

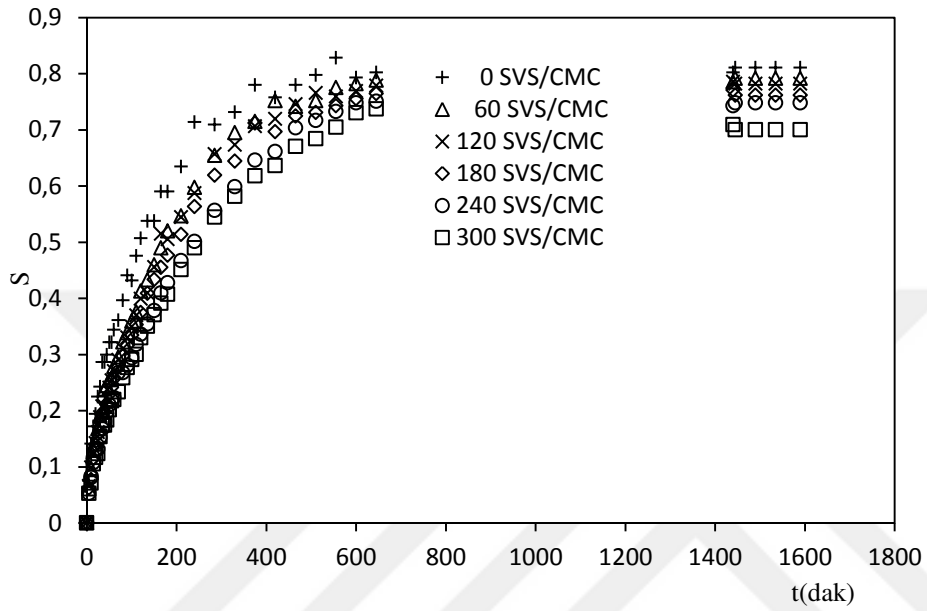
ASE-Su'da Sıvı Soğurum Çalışmaları



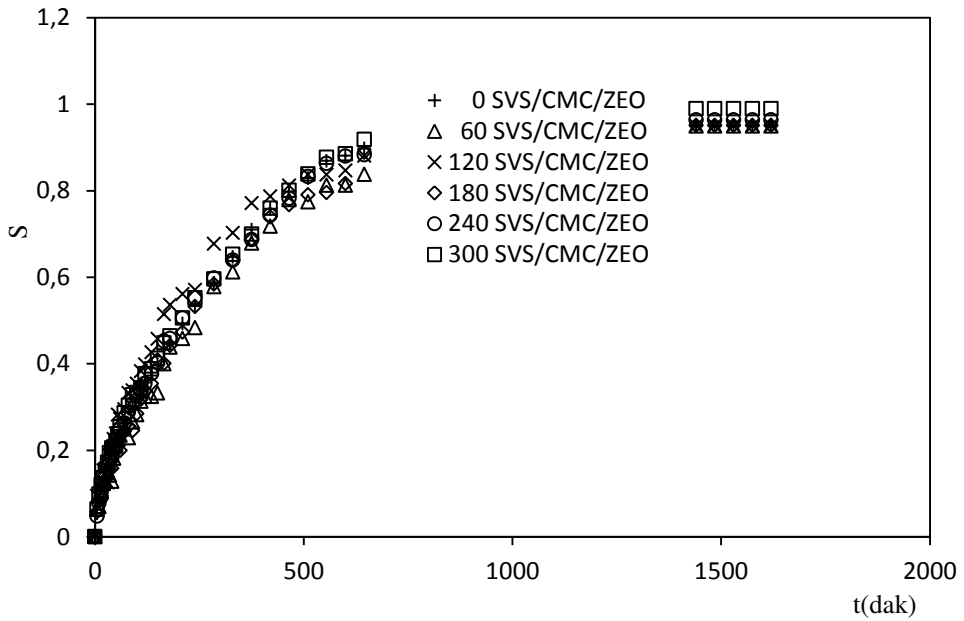
Şekil 4.28. AAm/SVS hidrojenlerinin ASE-su'da dinamik sıvı soğurum izotermi



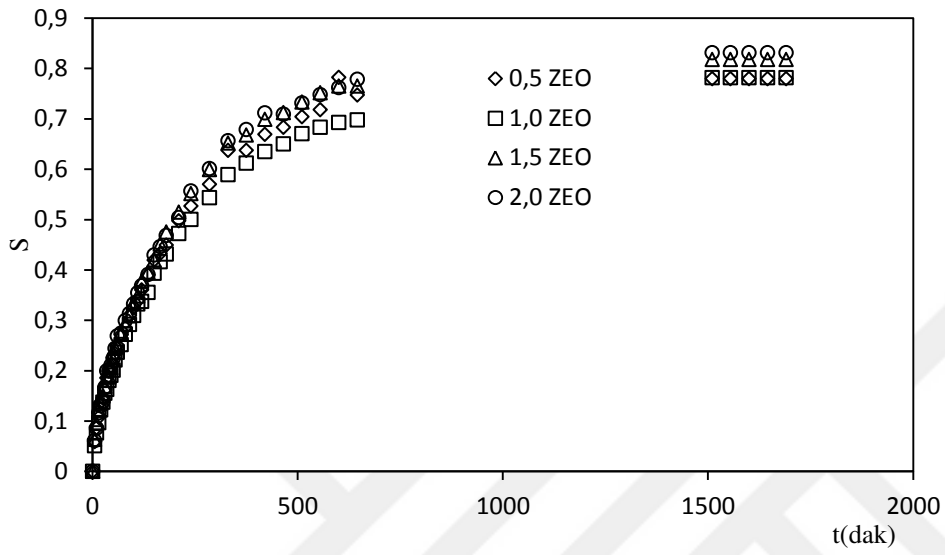
Şekil 4.29. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin ASE-su'da dinamik sıvı soğurum izotermi



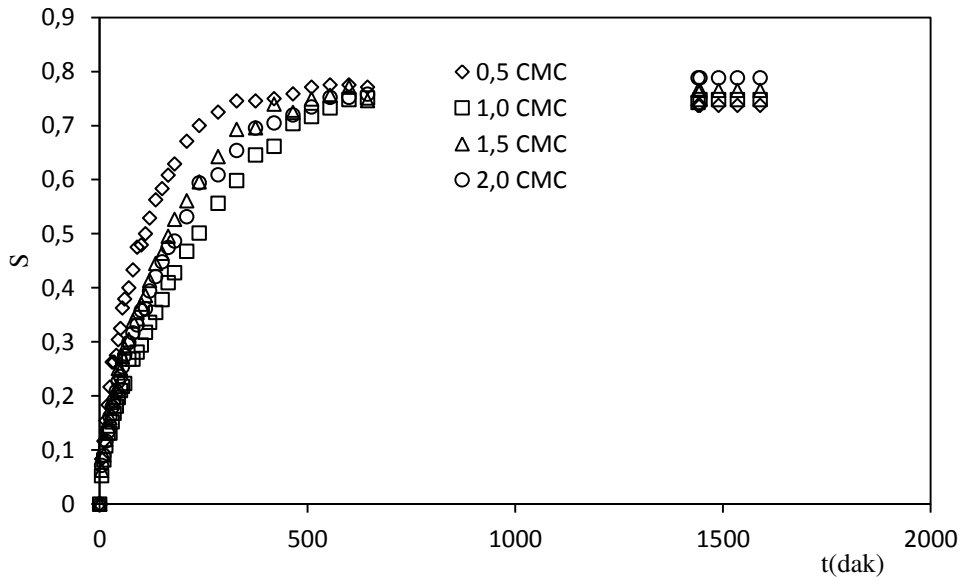
Şekil 4.30. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin ASE-su'da dinamik sıvı soğurum izotermaları



Şekil 4.31. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin ASE-su'da dinamik sıvı soğurum izotermaları

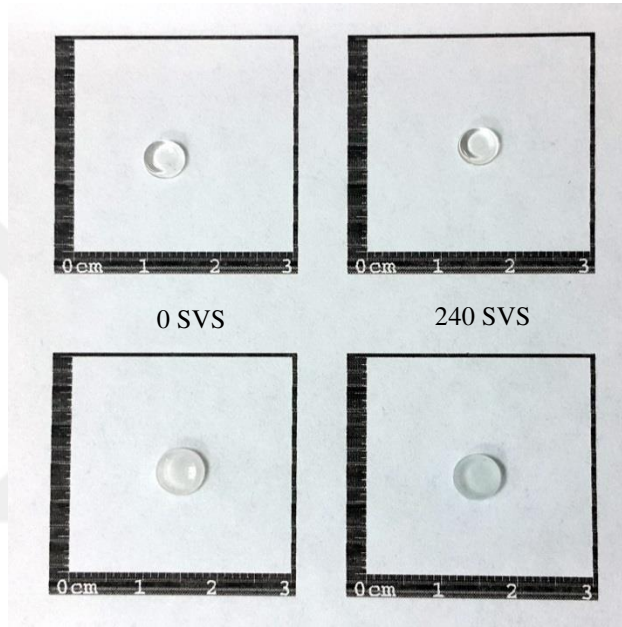


Şekil 4.32. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin ASE-su’da dinamik sıvı soğurum izotermeleri

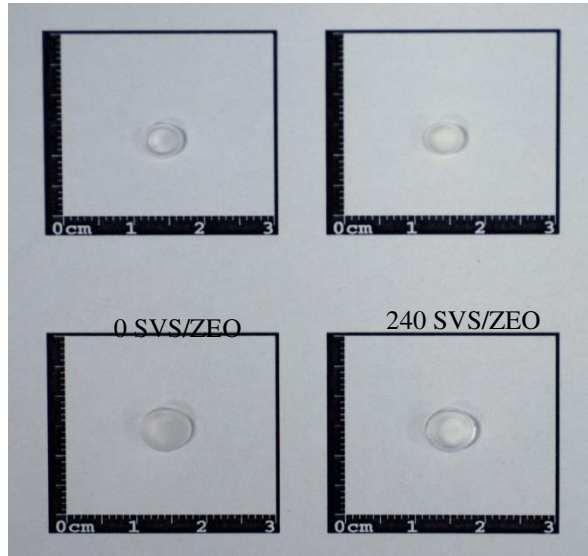


Şekil 4.33. Farklı CMC içeriğine sahip semi-IPN hidrojenlerinin ASE-su’da dinamik sıvı soğurum izotermeleri

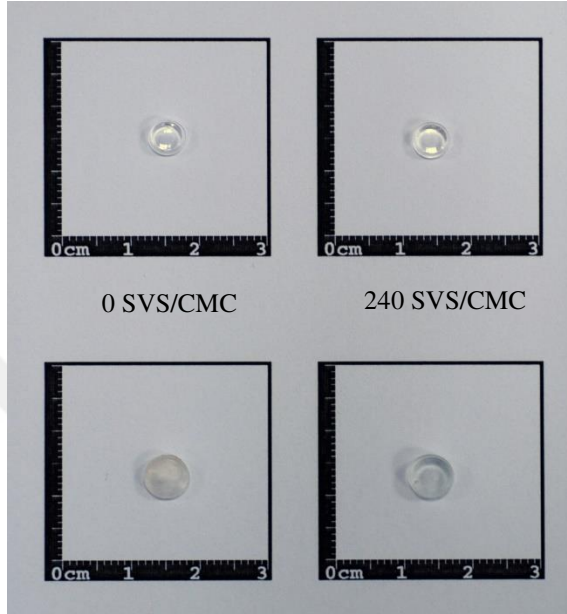
ASE-su çözeltisinde bekletilen hidrojenlerin fiziksel olarak nasıl etkilendiğini görsel olarak sunabilmek amacıyla çapraz bağlı hidrojenlerin kuru ve suda şişmiş hallerinin fotoğrafları aşağıda verilmiştir.



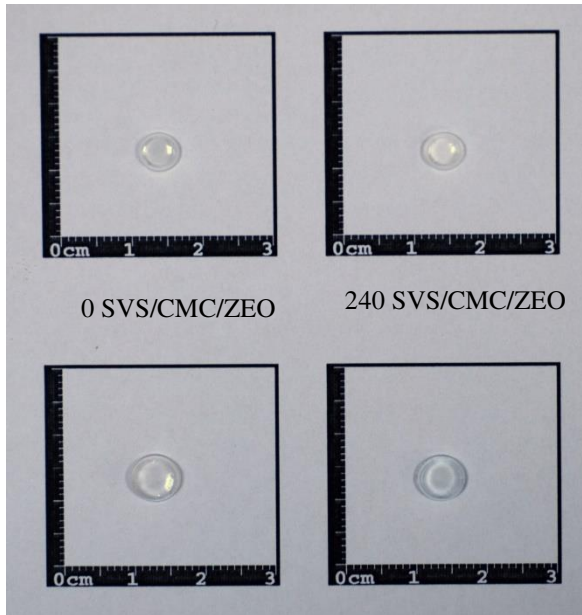
Şekil 4.34. AAm/SVS hidrojenlerinin kuru ve ASE-su’da şişmiş görünümleri



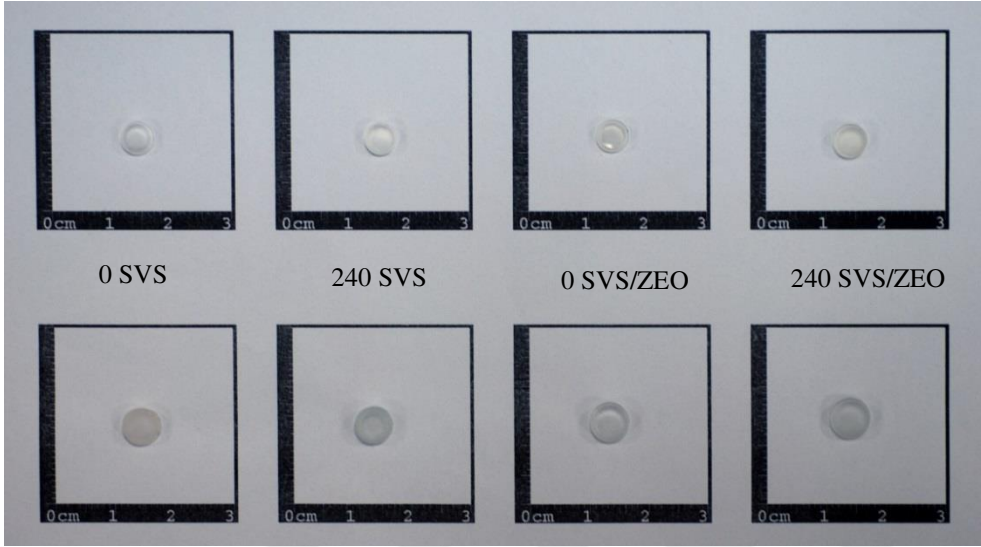
Şekil 4.35. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve ASE-su’da şişmiş görünümleri



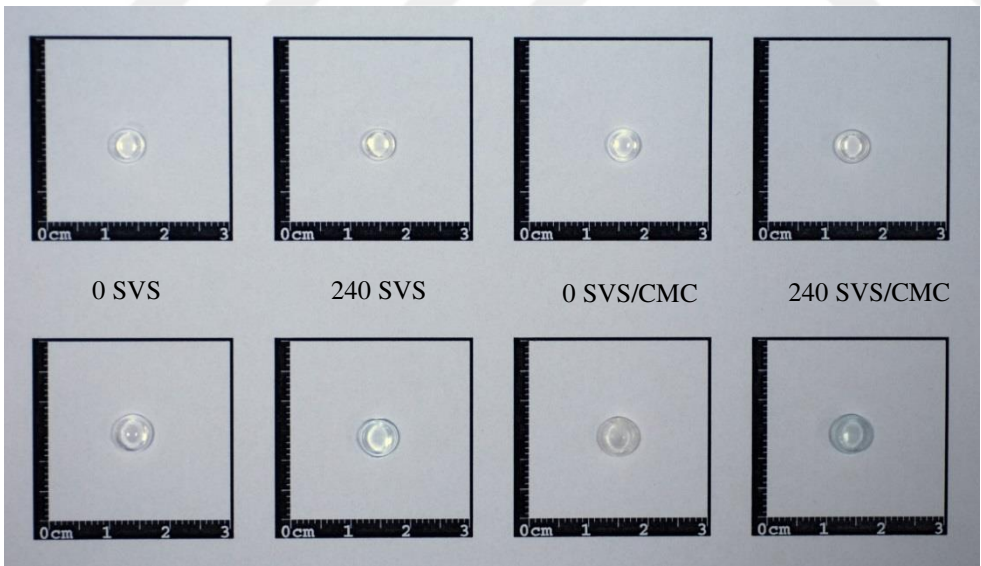
Şekil 4.36. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinin kuru ve ASE-su'da şişmiş görünümleri



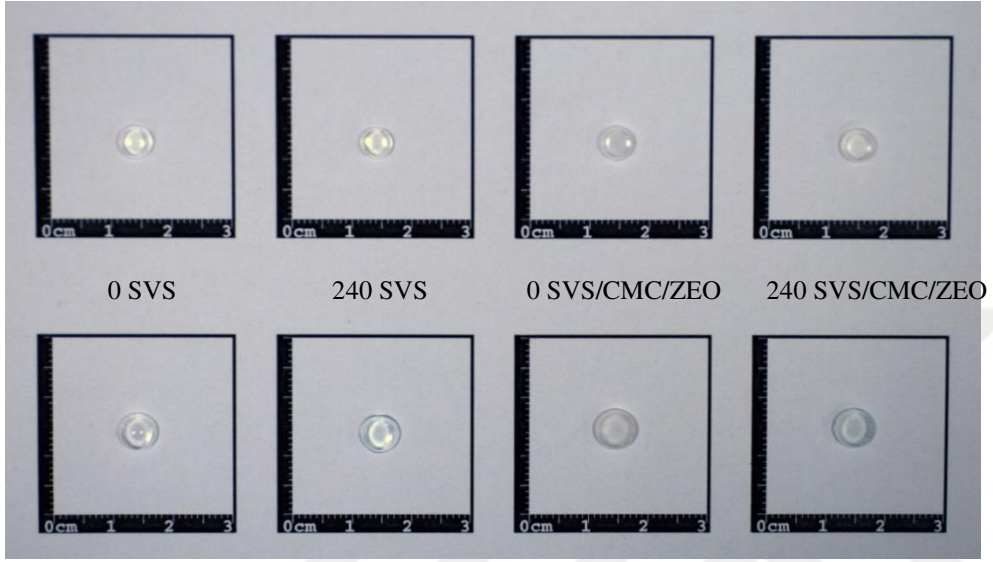
Şekil 4.37. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinin kuru ve ASE-su'da şişmiş görünümleri



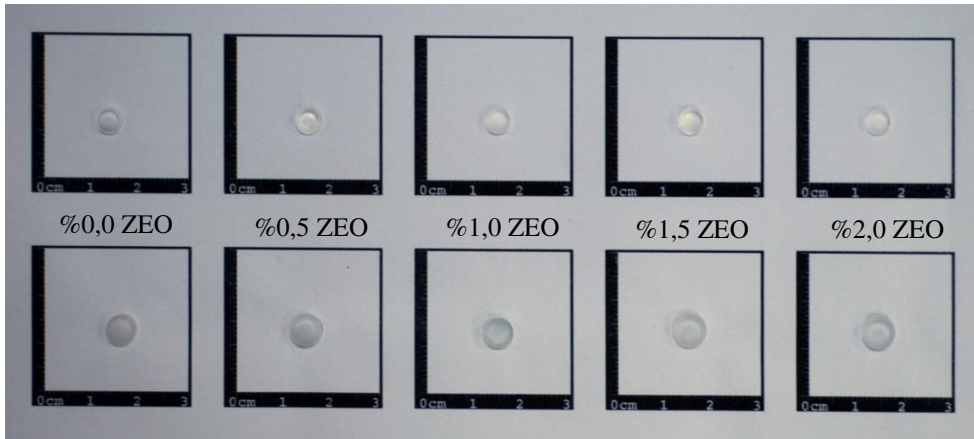
Şekil 4.38. AAm/SVS hidrojellerinin ve AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinin kuru ve ASE-su’da şişmiş görünümleri



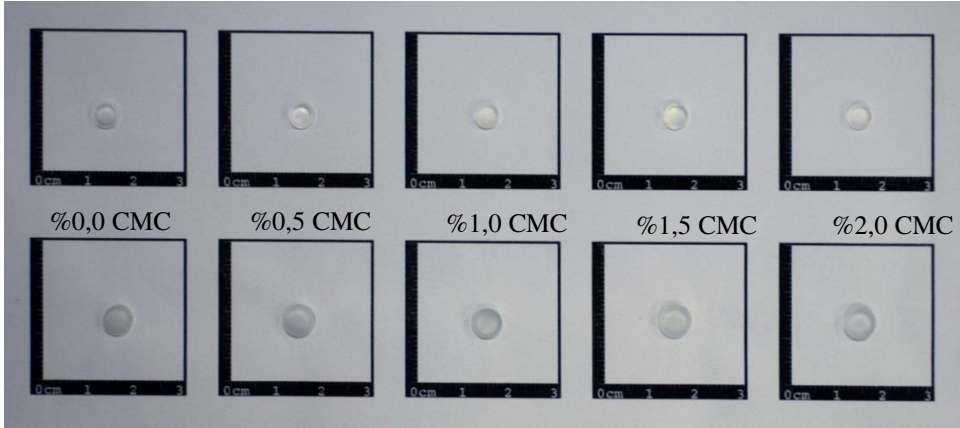
Şekil 4.39. AAm/SVS hidrojellerinin ve AAm/SVS/CMC biyohibrit hidrojellerinin kuru ve ASE-su’da şişmiş görünümleri



Şekil 4.40. AAm/SVS hidrojenlerinin ve AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve ASE-su'da şişmiş görünümleri

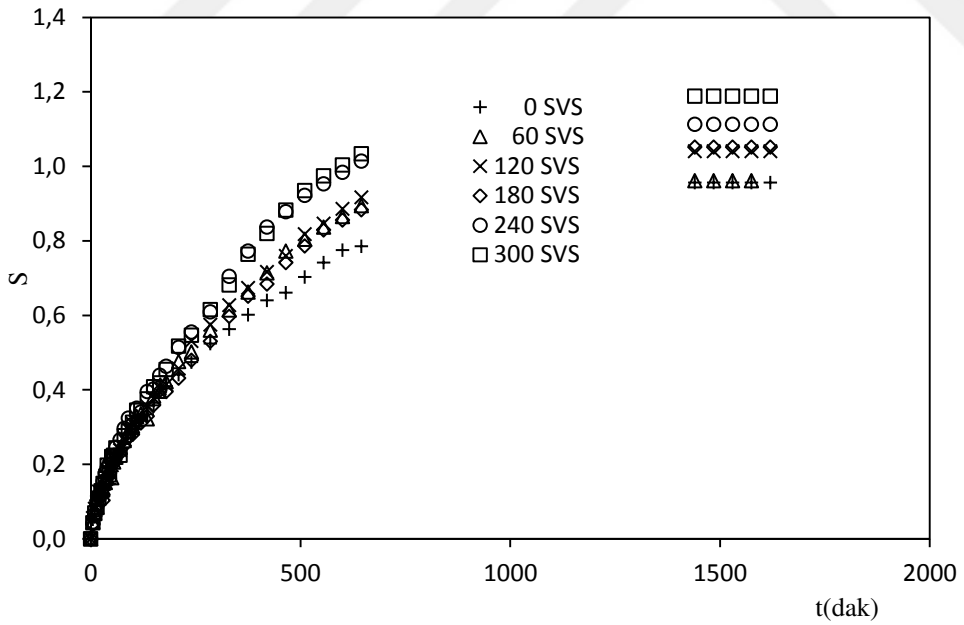


Şekil 4.41. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve ASE-su'da şişmiş görünümleri

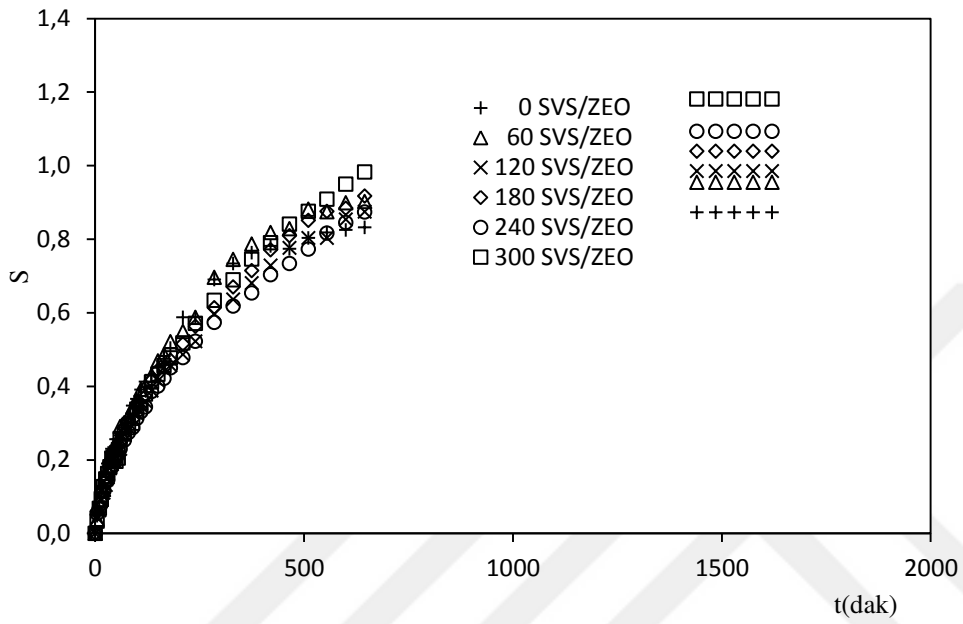


Şekil 4.42. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin kuru ve ASE-su'da şişmiş görünümleri

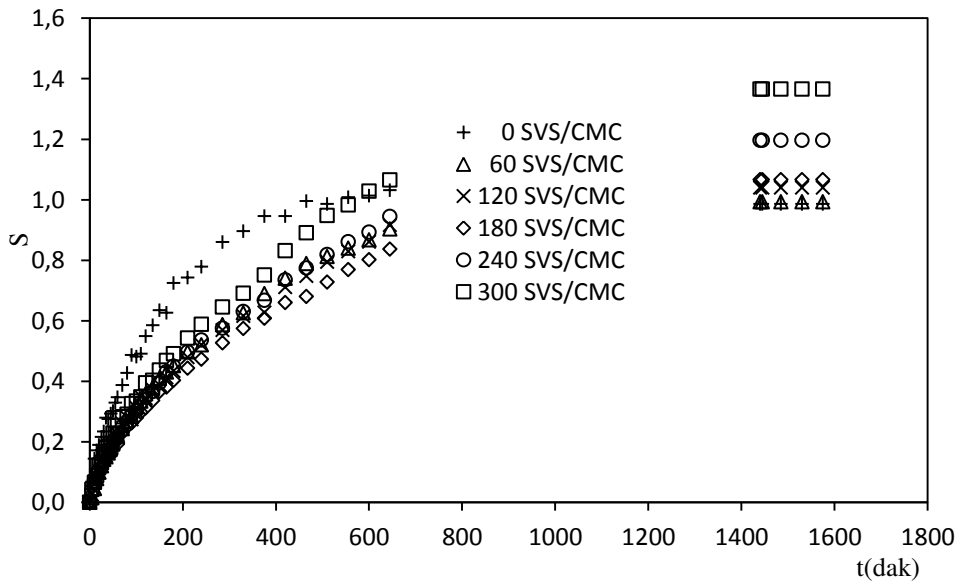
MET-su'da Sıvı Soğurum Çalışmaları



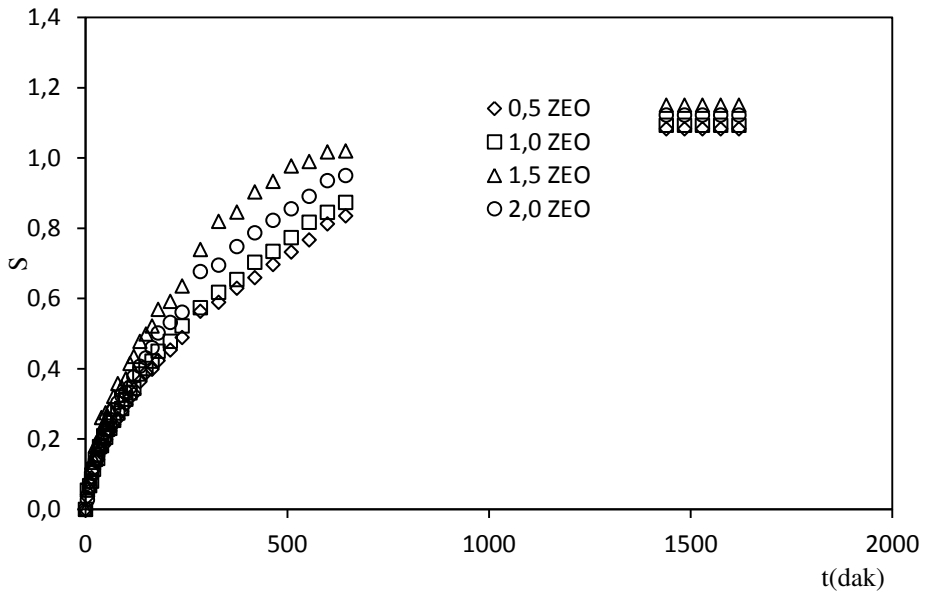
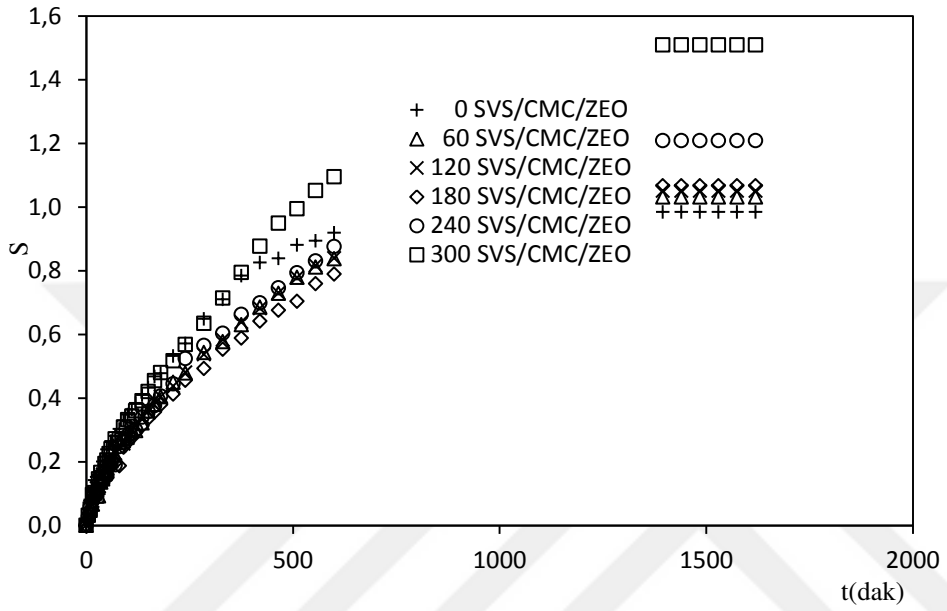
Şekil 4.43. AAm/SVS hidrojenlerinin MET-su'da dinamik sıvı soğurum izotermeleri

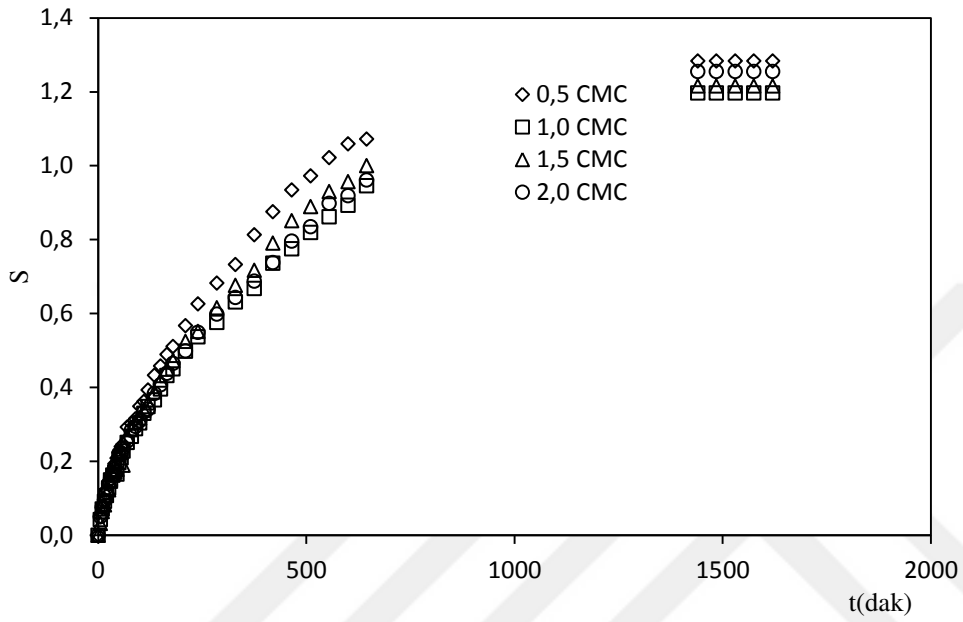


Şekil 4.44. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin MET-su'da dinamik sıvı soğurum izotermeleri



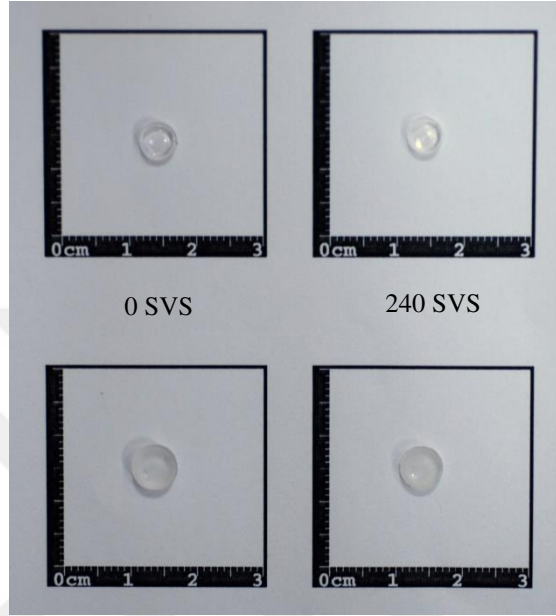
Şekil 4.45. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin MET-su'da dinamik sıvı soğurum izotermeleri



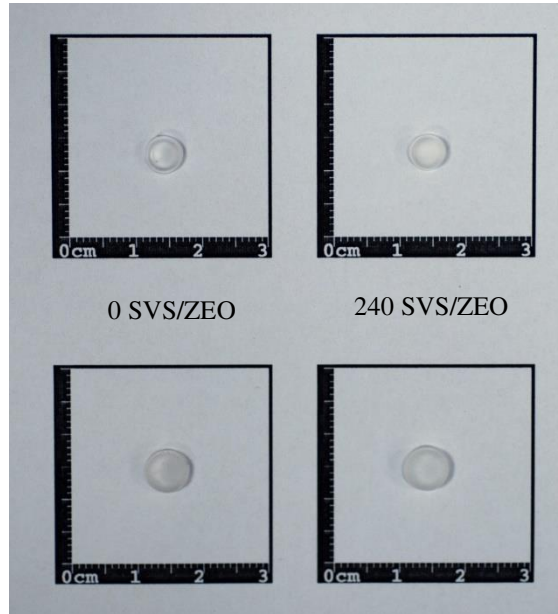


Şekil 4.48. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin MET-su’da dinamik sıvı soğurum izotermi

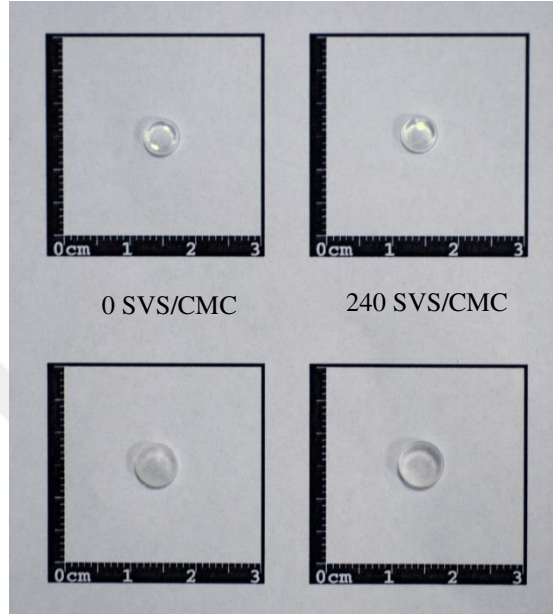
MET-su çözeltisinde bekletilen hidrojenlerin fiziksel olarak nasıl etkilendiğini görsel olarak sunabilmek amacıyla çapraz bağlı hidrojenlerin kuru ve suda şişmiş hallerinin fotoğrafları aşağıda verilmiştir.



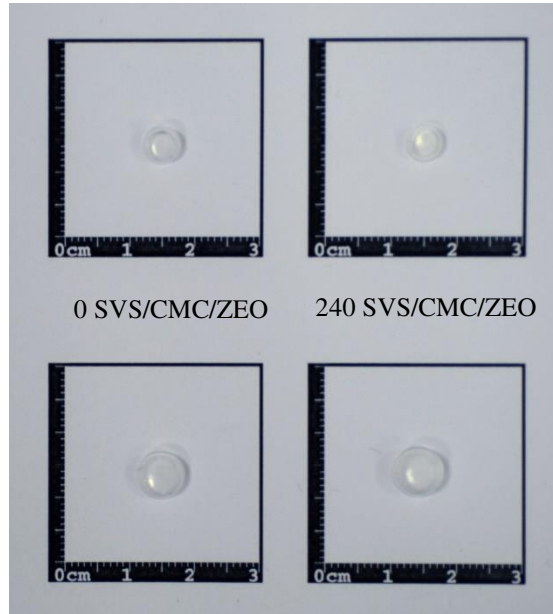
Şekil 4.49. AAm/SVS hidrojenlerinin kuru ve MET-su'da şişmiş görünümleri



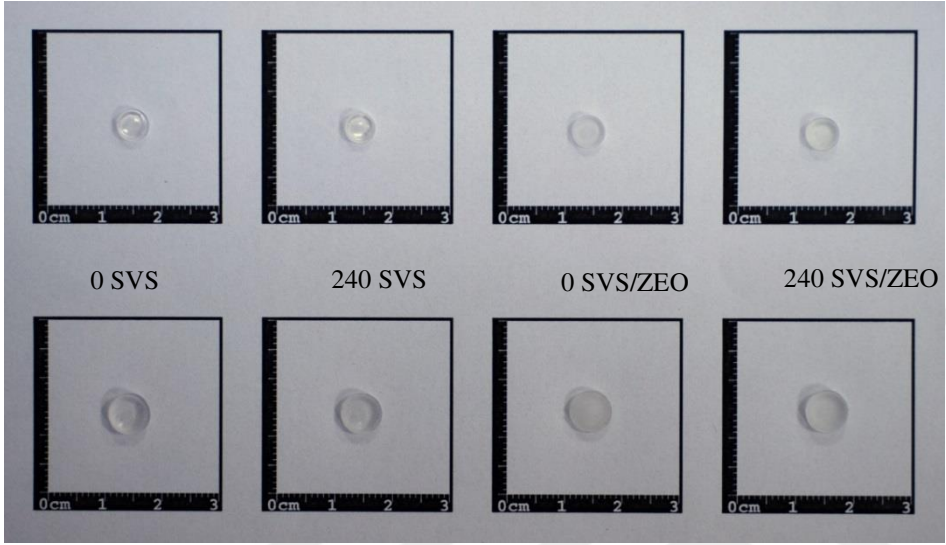
Şekil 4.50. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve MET-su'da şişmiş görünümleri



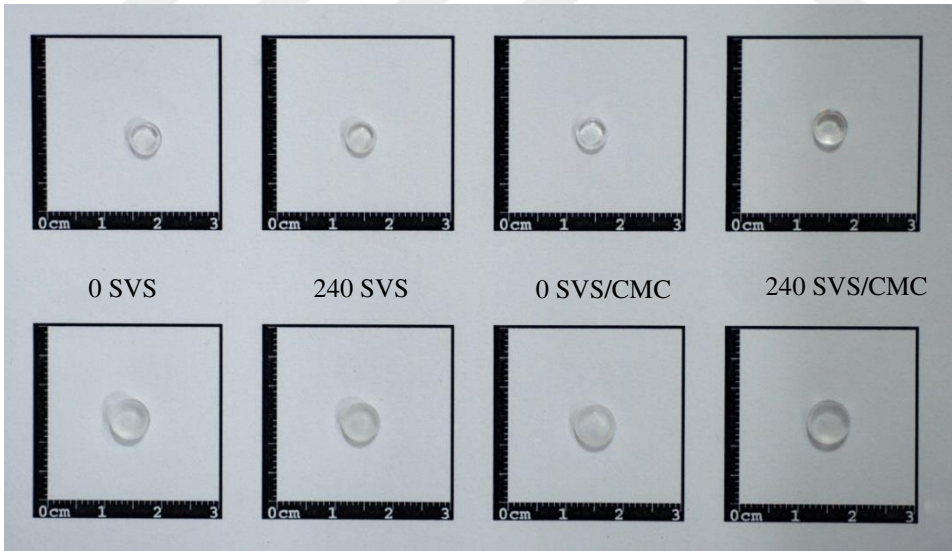
Şekil 4.51. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin kuru ve MET-su'da şişmiş görünümleri



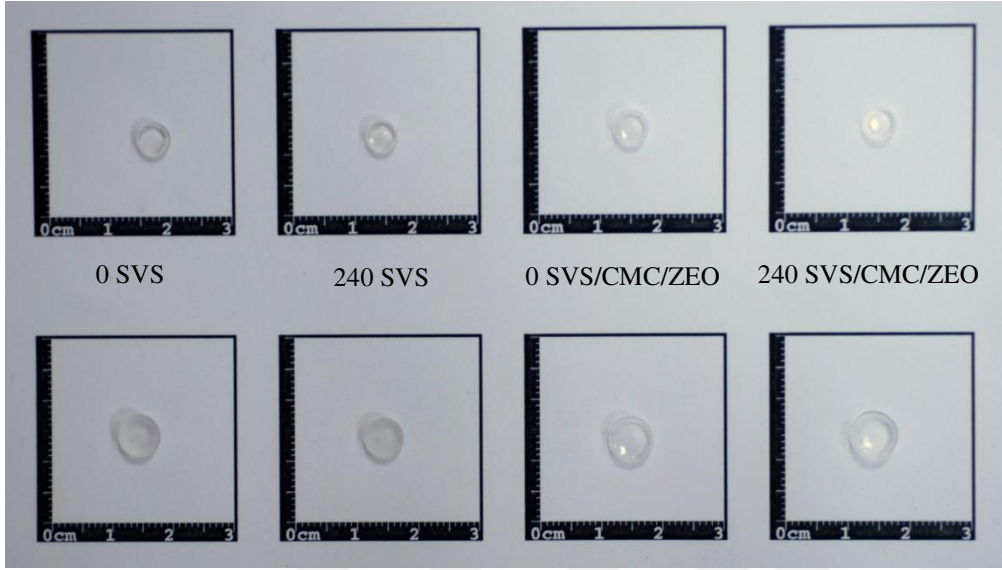
Şekil 4.52. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve MET-su'da şişmiş görünümleri



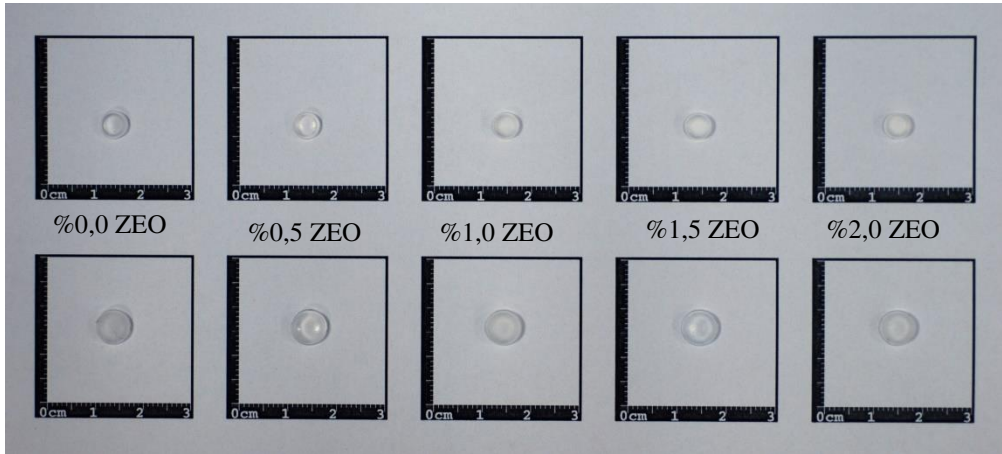
Şekil 4.53. AAm/SVS ve AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojelatinlerinin kuru ve MET-su'da şişmiş görünümleri



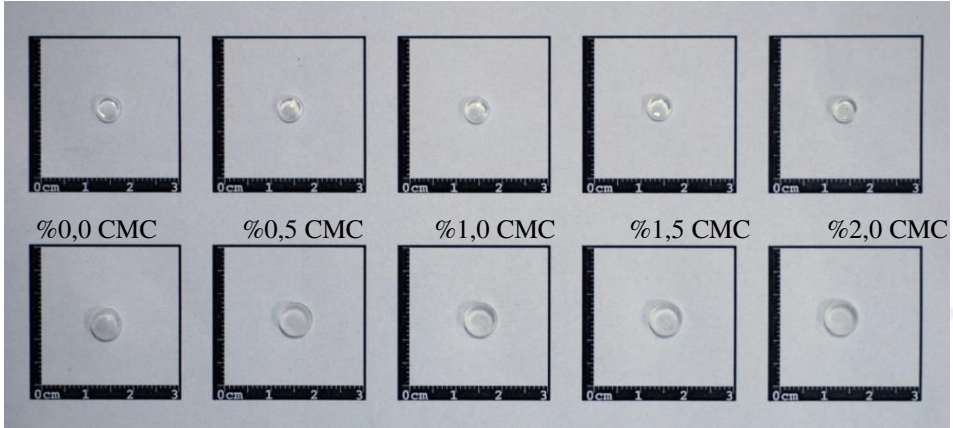
Şekil 4.54. AAm/SVS ve AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojelatinlerinin kuru ve MET-su'da şişmiş görünümleri



Şekil 4.55. AAm/SVS ve AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve MET-su'da şişmiş görünümleri

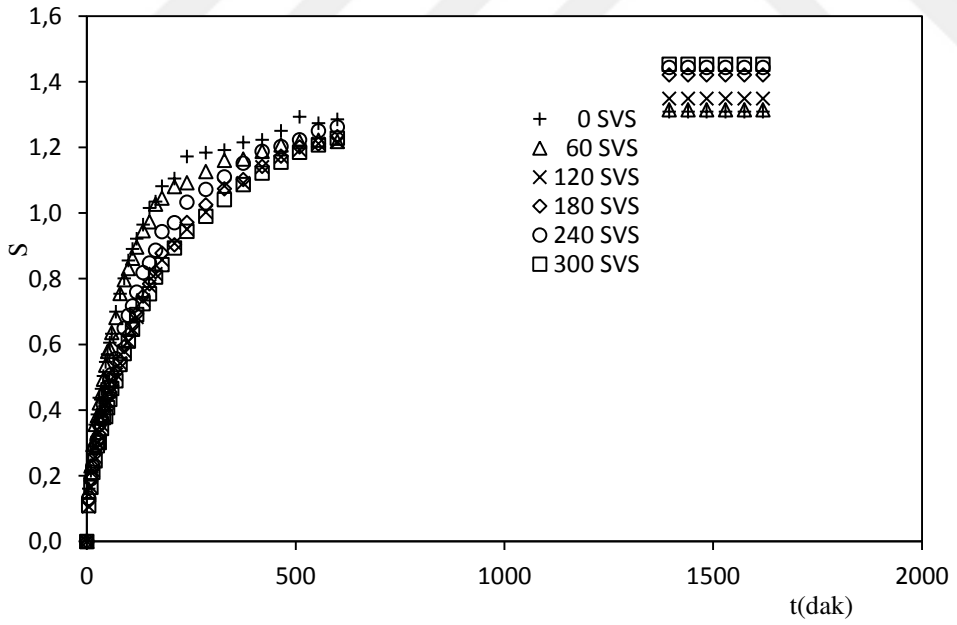


Şekil 4.56. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve MET-su'da şişmiş görünümleri

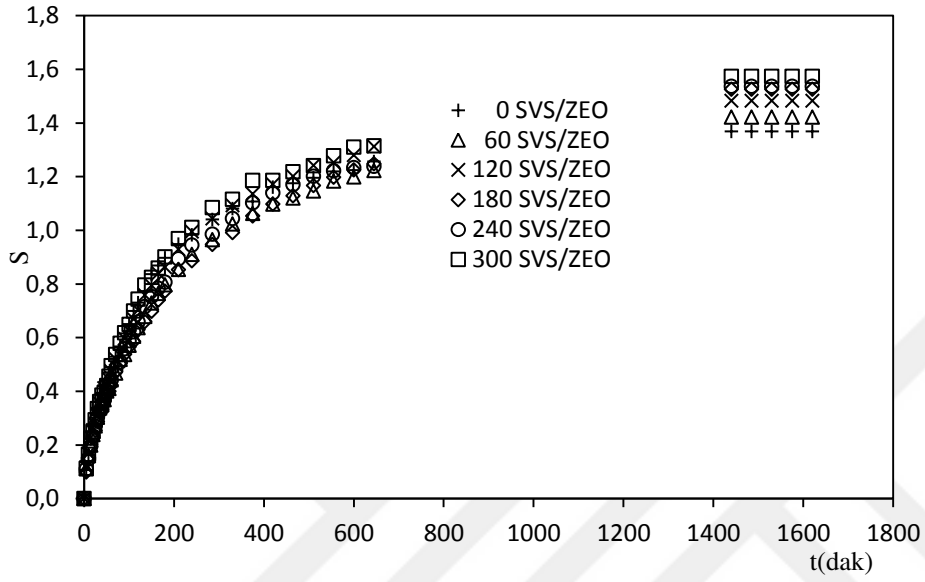


Şekil 4.57. AAm/SVS ve AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin kuru ve MET-su'da şişmiş görünümleri

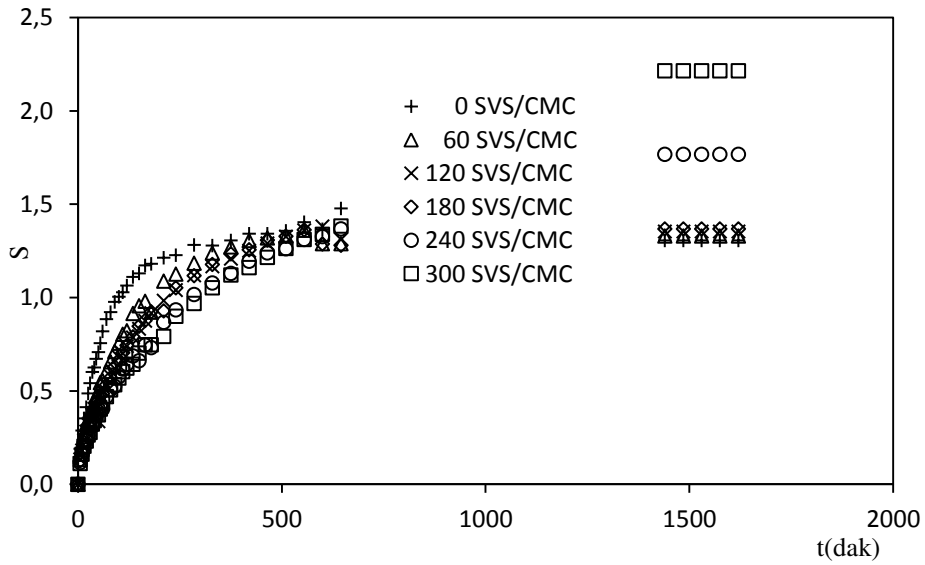
THF-su'da Sıvı Soğurum Çalışmaları



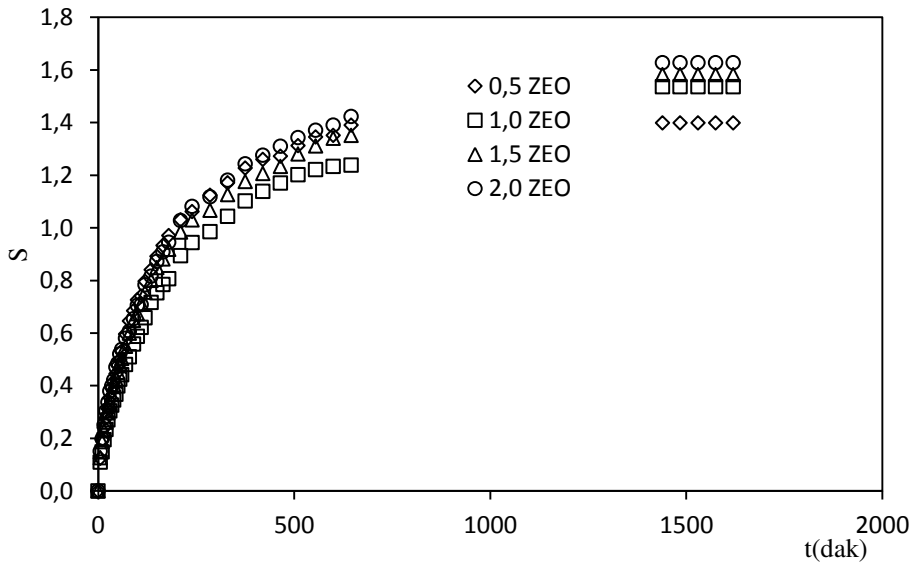
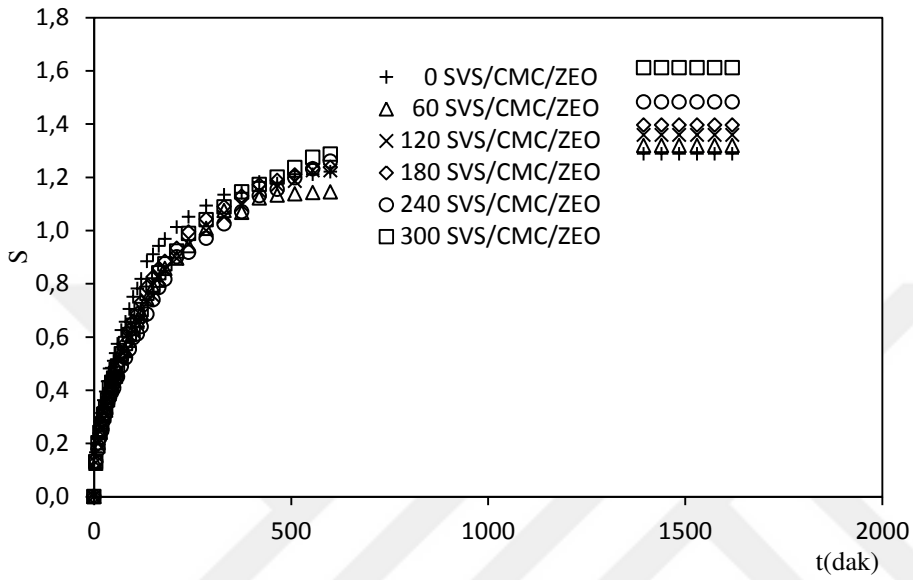
Şekil 4.58. AAm/SVS hidrojenlerinin THF-su'da dinamik sıvı soğurum izotermeleri

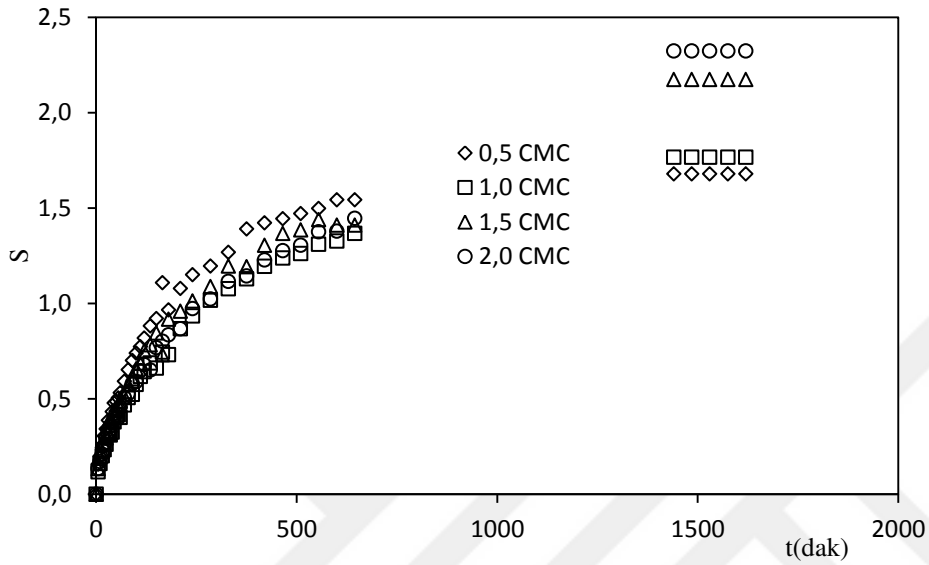


Şekil 4.59. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin THF-su'da dinamik sıvı soğurum izotermi



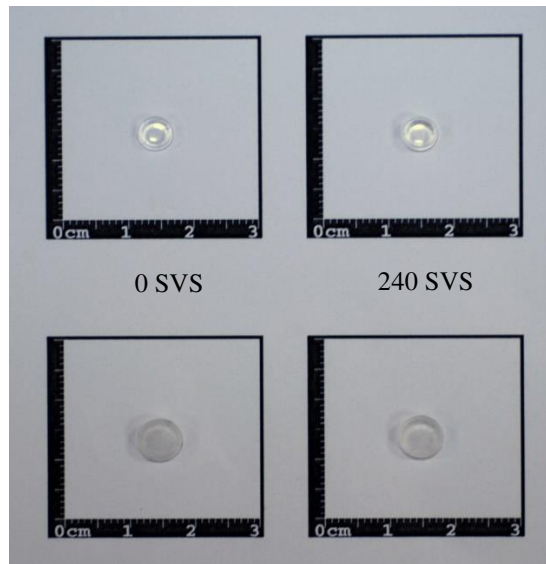
Şekil 4.60. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin THF-su'da dinamik sıvı soğurum izotermi



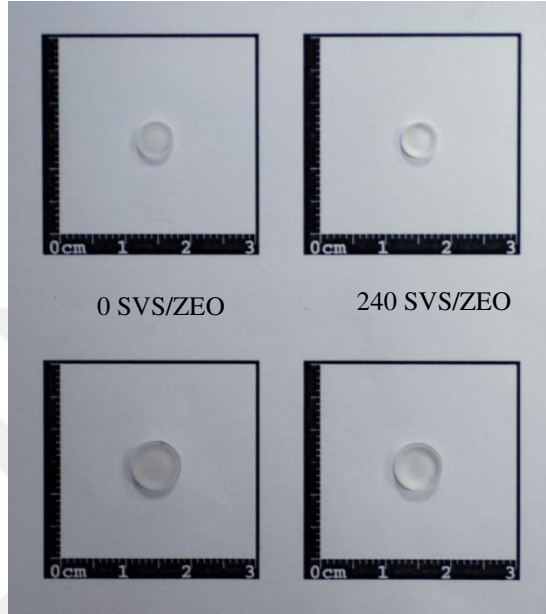


Şekil 4.63. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinin THF-su'da dinamik sıvı soğurum izotermeleri

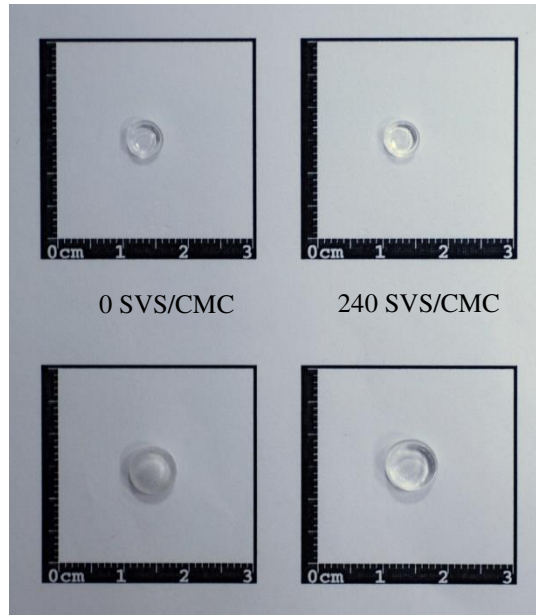
THF-su çözeltisinde bekletilen hidrojelilerin kuru ve suda şişmiş hallerinin fotoğrafları aşağıda verilmiştir.



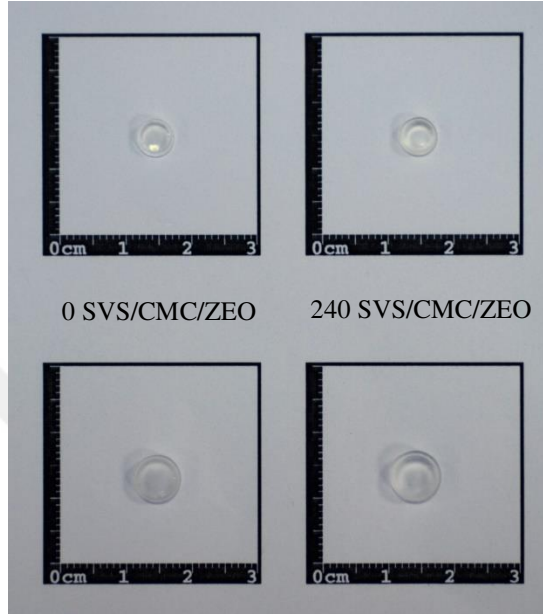
Şekil 4.64. AAm/SVS hidrojellerinin kuru ve THF-su'da şişmiş görünümleri



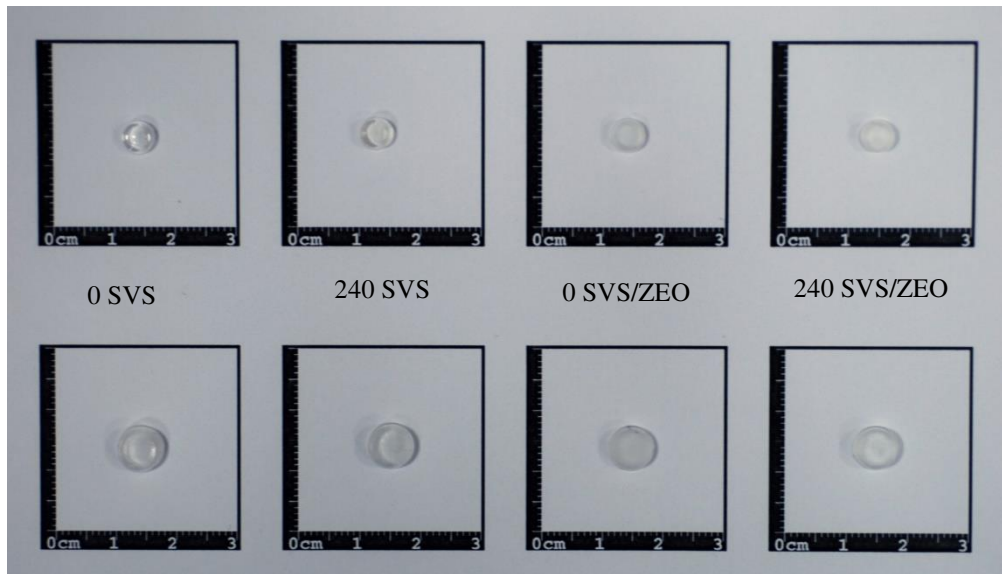
Şekil 4.65. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve THF-su'da şişmiş görünümleri



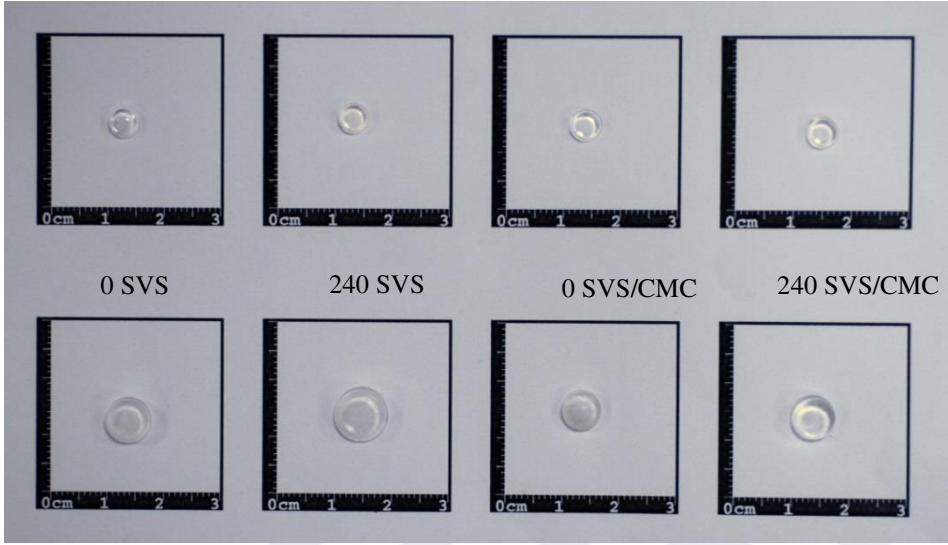
Şekil 4.66. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin kuru ve THF-su'da şişmiş görünümleri



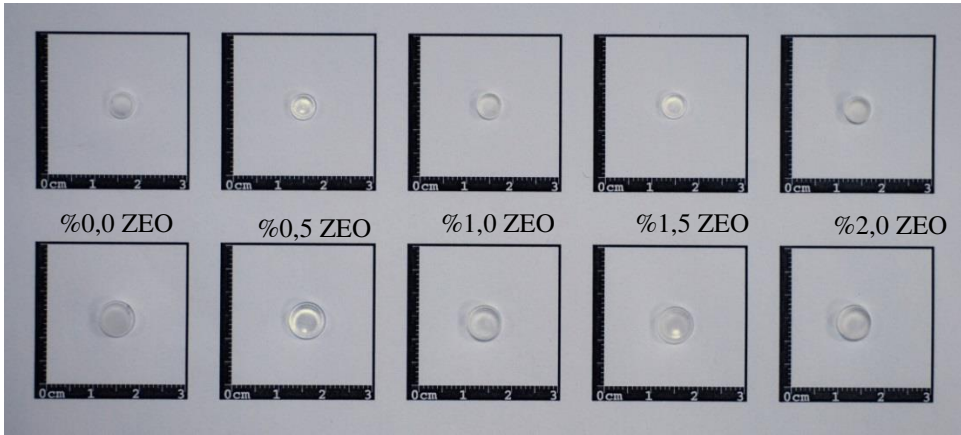
Şekil 4.67. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve THF-su'da şişmiş görünümleri



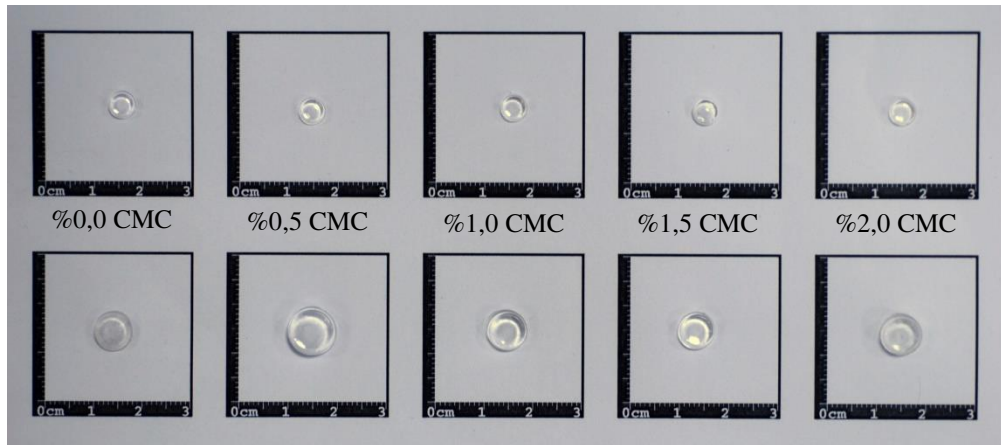
Şekil 4.68. AAm/SVS hidrojenlerinin ve AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve THF-su'da şişmiş görünümleri



Şekil 4.69. AAm/SVS hidrojenlerinin ve AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin kuru ve THF-su'da şişmiş görünümleri



Şekil 4.70. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru ve THF-su'da şişmiş görünümleri



Şekil 4.71. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin kuru ve THF-su'da şişmiş görünümleri

Çizelge 4.3. Hidrojel sistemlerin ASE-su; MET-su ve THF-su'daki S_d değerleri

SVS/ μ L	0	60	120	180	240	300
	Dengede su/sıvı soğurum faktörü (S_d)					
	ASE-su					
AAm/SVS	0,7330	0,7538	0,7549	0,7855	0,7705	0,7843
AAm/SVS/ZEO	0,7413	0,7517	0,7603	0,7727	0,7817	0,7918
AAm/SVS/CMC	0,8105	0,7919	0,7821	0,7616	0,7480	0,7002
AAm/SVS/CMC/ZEO	0,9487	0,9497	0,9498	0,9509	0,9636	0,9890
	MET-su					
AAm/SVS	0,9559	0,9614	1,040	1,051	1,112	1,187
AAm/SVS/ZEO	0,8722	0,9545	0,9850	1,038	1,093	1,180
AAm/SVS/CMC	0,9864	0,9939	1,040	1,066	1,196	1,365
AAm/SVS/CMC/ZEO	0,9838	1,031	1,050	1,067	1,208	1,508
	THF-su					
AAm/SVS	1,308	1,314	1,348	1,420	1,443	1,453
AAm/SVS/ZEO	1,367	1,421	1,482	1,525	1,536	1,573
AAm/SVS/CMC	1,305	1,329	1,354	1,367	1,766	2,214
AAm/SVS/CMC/ZEO	1,288	1,319	1,359	1,396	1,483	1,611

Çizelge 4.4. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip 240 µL SVS içeren hidrojel sistemlerin ASE-su; MET-su ve THF-su'daki S_d değerleri

%2'lik ZEO-su süspansiyonu / %2'lik sulu CMC çözeltisi (mL)	0,25	0,50	0,75	1,00
	Dengede su/sıvı soğurum faktörü (S_d)			
	ASE-su			
ZEO	0,7795	0,7817	0,8179	0,8310
CMC	0,7375	0,7480	0,7648	0,7880
	MET-su			
ZEO	1,082	1,093	1,150	1,121
CMC	1,283	1,196	1,215	1,254
	THF-su			
ZEO	1,398	1,536	1,582	1,626
CMC	1,679	1,766	2,174	2,323

Farklı çözücü-su karışımlarında yapılan sıvı soğurum çalışmalarında elde edilen sonuçlar çizelge 4.3'te sunulmuştur. Bu sonuçlar SVS değişimi açısından, Çizelge 4.1'de sunulan sonuçlara paralellik göstermektedir. Çizelge 4.3 incelendiğinde polimerlerdeki SVS miktarının artışı ile S_d değerinde de artış olduğu görülmektedir. Bunun en önemli sebebi SVS molekülünde bulunan hidrofilik grupların artması ile doğru orantılı olarak S_d değerleri de artmaktadır. Benzer sonuçlar örneklere ZEO ve CMC eklenmesi ile üretilen hidrojellerin SVS artışına bağlı olarak S_d değerlerinde de görülmektedir.

Farklı çözücü-su karışımlarında yapılan sıvı soğurum çalışmalarında elde edilen sonuçları, suda; ASE-su'da; MET-su'da ve THF-su'da yapılan su/sıvı soğurum çalışmaları ile karşılaştırdığımızda S_d değerlerinde 6,61-31,97 arası değişen değerlerden 0,7330-2,214 arası değişen değerlere düşüşler izlenir. Bunun nedeni soğurum ortamında bulunan 'ana' hidrofilik kaynak olan suyun, önceki su/sıvı soğurum çalışmalarına oranla, %60 kadar azalmasıdır. Böylece hidrojel yapılar ile hidrojen bağı yaparak çapraz bağlı sistemlerin içinde yer alan zincirleri birbirinden ayıracak bağ yapıcı karakterin 'hacimce' azalmasıdır.

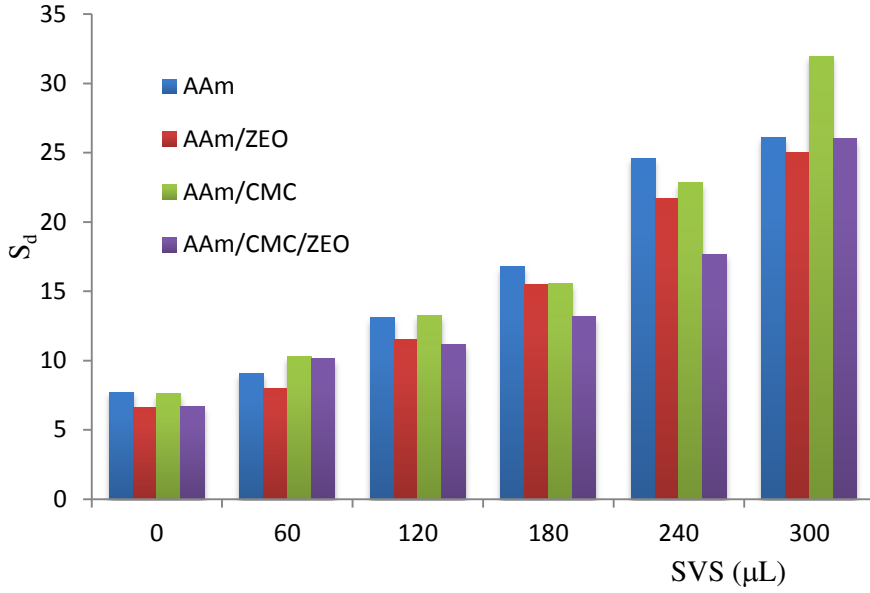
Çizelge 4.4 incelendiğinde 240 μ L SVS içeren hidrojelde ZEO miktarının artmasıyla S_d değerlerinde artma görülmektedir. Bunun nedeni ZEO içeren biyohibrit hidrojelde ZEO moleküllerinin suyun hidrofilik gruplarla etkileşmesi ile suyun difüzlenebileceği boşlukların azalması şeklinde açıklanabilir. Aynı şekilde 240 μ L SVS içeren hidrojelde CMC miktarının artması ile S_d değerlerinde artma görülmektedir. Bunun nedeni CMC içeren semi-IPN hidrojelde, suyun CMC moleküllerinin hidrofilik gruplarıyla etkileşmesidir.

4.3.2. Su Soğurumuna Yardımcı Monomer (SVS) Etkisi

Bu çalışmada üretilen AAm/SVS, AAm/SVS/ZEO, AAm/SVS/CMC ve AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit ve semi-IPN hidrojelde yer alan yardımcı monomer SVS, üzerinde su sever gruplar taşımaktadır (Şekil 4.1). Üretiminde 1,0 g AAm ile birlikte sırası ile 0; 60; 120; 180; 240; 300 μ L SVS kullanılmıştır. SVS hidrofilik yapıda ve su sever gruplar taşıyan bir moleküldür.

Çizelge 4.1 incelendiğinde SVS içermeyen AAm hidrojelleri 6,61-7,72 aralığında bir soğurum değeri gösterirken 60-300 μ L SVS içeren hidrojellerin su soğurum değerlerinin 7,97-31,97 aralığında değiştiği görülmektedir. Bu beklenen bir sonuç olmuştur. Benzer şekilde ZEO ve CMC içeren hidrojelde soğurum, SVS artışına bağlı olarak artış göstermiştir.

Genel olarak bu çalışmada elde edilen polimerik örneklerin su soğurum değerlerine SVS, ZEO ve CMC etkisinin beraber değerlendirilmesi için Şekil 4.68 oluşturulmuştur. Şekil 4.68’de sentezde yer alan SVS, ZEO ve doğal bir polimer olan CMC’un soğuruma olan etkisi aynı anda değerlendirilebilmiştir.



Şekil 4.72. Çalışmada üretilen hidrojel sistemlerde S_d değerlerinin SVS içeriği ile değişimi.

4.3.3. Dengede Su/Sıvı Tutma Kapasitesi (DSTK)

Çapraz bağlı polimerler çözücü ortamına bırakıldıktan belirli bir süre sonra, çözücünün yapıya girme ve yapıdan salınma hızları eşit hale gelir ve dengeye ulaşılır. Bu noktada hidrojel en büyük su soğurum değerine sahiptir. Dengede su/sıvı tutma kapasitesi (DSTK) bu durumdaki hidrojeller için hesaplanan ve biyoyumluluk için oldukça önemli olan bir parametredir. Eşitlik 2 kullanılarak hesaplanan DSTK değerleri çizelge 4.5 ve 4.6'da verilmiştir. Hidrojeller için DSTK değerlerinin 0,60'dan büyük olması, bu yapıların, potansiyel biyoyumluluğunun bir göstergesidir.

Çizelge 4.5. Çalışmada üretilen hidrojel sistemlerin DSTK değerlerinin değişimi

SVS/ μ L	0	60	120	180	240	300
	Dengede su/sıvı tutma kapasitesi (DSTK)					
AAm/SVS	0,8853	0,9008	0,9290	0,9437	0,9606	0,9630
AAm/SVS/ZEO	0,8686	0,8886	0,9202	0,9392	0,9559	0,9615
AAm/SVS/CMC	0,8841	0,9113	0,9300	0,9328	0,9580	0,9696
AAm/SVS/CMC/ZEO	0,8703	0,9104	0,9177	0,9295	0,9464	0,9629

Çizelge 4.6. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip 240 μ L SVS içeren hidrojel sistemlerde DSTK değerleri

%2'lik ZEO-su süspansiyonu/ %2'lik sulu CMC çözeltisi (mL)	0,25	0,50	0,75	1,00
	Dengede su/sıvı tutma kapasitesi (DSTK)			
ZEO	0,9475	0,9559	0,9582	0,9617
CMC	0,9541	0,9580	0,9624	0,9690

4.3.3.1. Farklı Çözücü-su karışımlarında DSTK değişimi

Çizelge 4.7. Çalışmada üretilen hidrojel sistemlerde farklı çözücü-su karışımlarında DSTK değerleri

SVS/ μ L	0	60	120	180	240	300
	Dengede su/sıvı tutma kapasitesi (DSTK)					
	ASE-su					
AAm/SVS	0,4229	0,4298	0,4301	0,4399	0,4352	0,4395
AAm/SVS/ZEO	0,4257	0,4291	0,4319	0,4358	0,4387	0,4419
AAm/SVS/CMC	0,4476	0,4419	0,4388	0,4323	0,4279	0,4118
AAm/SVS/CMC/ZEO	0,4868	0,4934	0,4871	0,4874	0,4907	0,4972
	MET-su					
AAm/SVS	0,4887	0,4901	0,5098	0,5124	0,5265	0,5428
AAm/SVS/ZEO	0,4658	0,4883	0,4962	0,5094	0,5222	0,5413
AAm/SVS/CMC	0,4965	0,4984	0,5099	0,5161	0,5446	0,5772
AAm/SVS/CMC/ZEO	0,4959	0,5078	0,5124	0,5162	0,5472	0,6013
	THF-su					
AAm/SVS	0,5668	0,5678	0,5742	0,5868	0,5907	0,5923
AAm/SVS/ZEO	0,5776	0,6140	0,5971	0,6039	0,6057	0,6113
AAm/SVS/CMC	0,5662	0,5708	0,5752	0,5776	0,6385	0,6889
AAm/SVS/CMC/ZEO	0,5630	0,5688	0,5761	0,5827	0,5973	0,6170

Çizelge 4.7 incelendiğinde, hidrojel içeriğindeki SVS miktarının artmasıyla DSTK değerleri artış göstermektedir. ZEO ve CMC içeren hidrojellerin DSTK değerlerinin, ZEO ve CMC içermeyenlere göre oranla daha yüksek olduğu gözlenmektedir. Yüksek SVS içeriklerine ulaşıldığında DSTK değerlerinde önemli bir artış olmadığı gözlemlenmektedir.

Çizelge 4.8. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 µL SVS içeren hidrojel sistemlerde DSTK değerleri

2'lik ZEO-su süspansiyonu/ %2'lik sulu CMC çözeltisi (mL)	0,25	0,50	0,75	1,00
	Dengede su/sıvı tutma kapasitesi (DSTK)			
	ASE-su			
ZEO	0,7795	0,7817	0,8179	0,8310
CMC	0,7375	0,7480	0,7648	0,7880
	MET-su			
ZEO	1,082	1,093	1,150	1,121
CMC	1,283	1,196	1,215	1,254
	THF-su			
ZEO	1,398	1,536	1,582	1,626
CMC	1,679	1,766	2,174	2,323

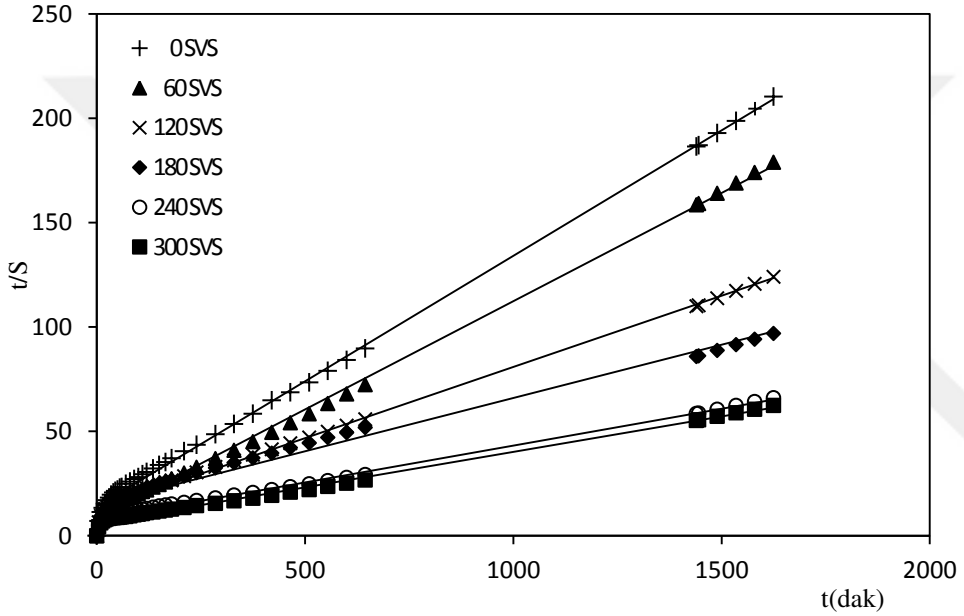
Çizelge 4.8 incelendiğinde, hidrojel içeriğindeki ZEO ve CMC miktarının artmasıyla genellikle DSTK değerleri artış göstermektedir. Ayrıca 240 µL SVS içeren hidrojellerde ZEO ve CMC değişimi ile elde edilen DSTK değerlerinin de S_d değerleri ile uyumlu bir şekilde, eklenen ZEO ve CMC miktarı ile arttığı izlenmiştir.

4.3.4. Hidrojel Sistemlerde Su/sıvı Soğurum Kinetiği

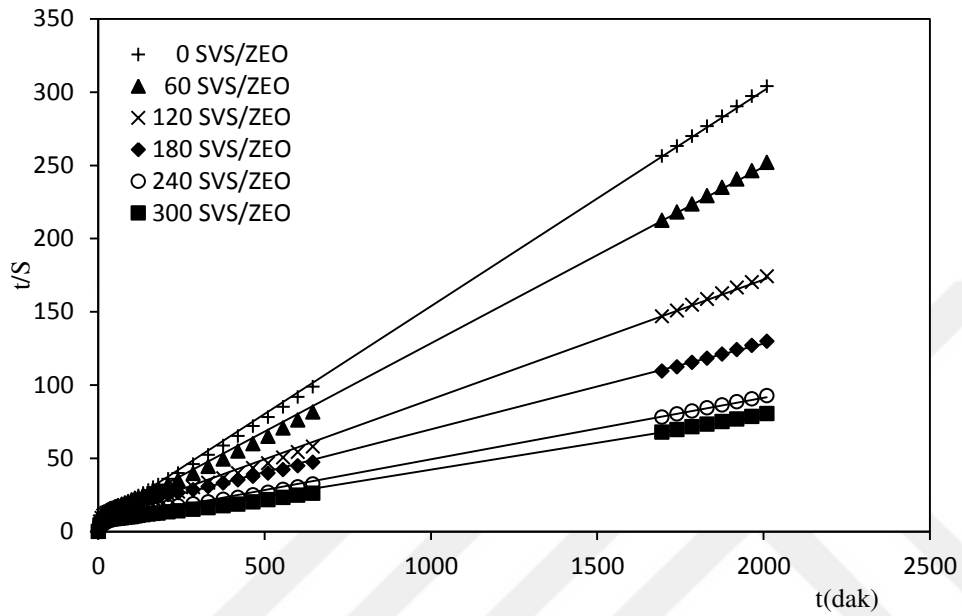
Dinamik su/sıvı soğurum testleri sonucu oluşan su soğurum kinetiği eğrileri ikinci dereceden varsayılır. Eşitlik 3'de verilen bağıntının düzenlenmesi ile elde edilen Eşitlik 4 kullanılarak şişme kinetiğinin matematiksel analizi yapılabilir. Bu bağıntı ile bulunan sonuçlar yorumlanarak çapraz bağlı polimerler için su soğurum karakterizasyonunun temelleri daha iyi ortaya konabilir.

Hazırlanan çapraz bağlı polimerlerin sudaki su soğurum hızını belirleyen su soğurum hız sabiti (k_s), başlangıç su soğurum hızı (r_0) ve teorik denge su soğurum değeri (S_{mak}); Eşitlik 4 yardımıyla hesaplanmış ve çizelgelerde sunulmuştur. Bu değerlerin hesaplanabilmesi için aşağıda sunulan $[(t/S)-t]$ grafikleri çizilerek elde edilen doğruların eğimleri ve kesim değerleri kullanılmıştır.

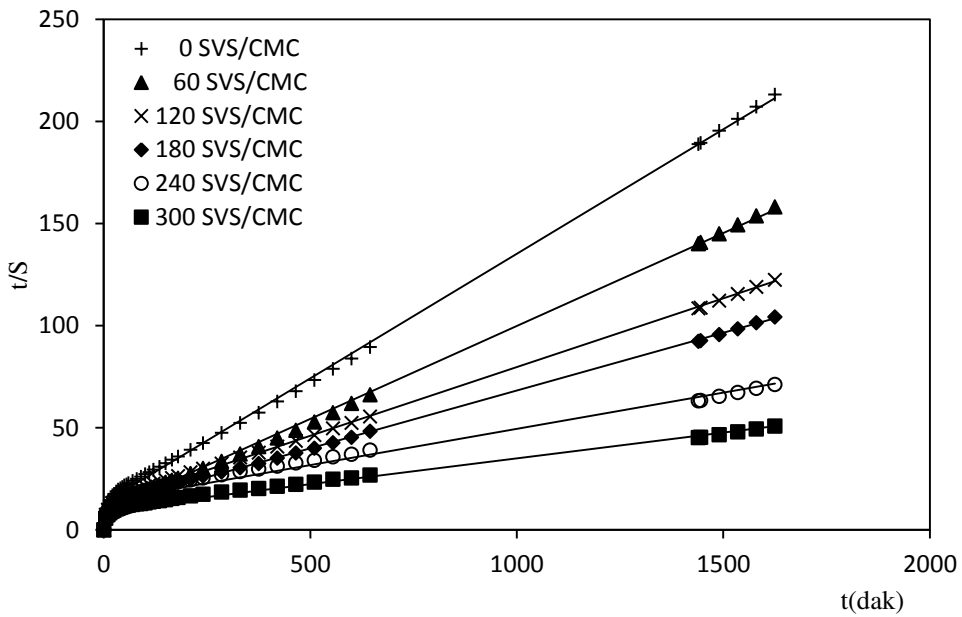
İlgili doğruların eğimlerinden; Eşitlik 4’de verilen B ve doğruların kesiminden de A değeri bulunmuştur. B değeri $1/S_{\text{mak}}$ ’a eşit olup bu eşitlikten S_{mak} değeri bulunmuştur. A değeri $1/S_{\text{mak}}^2 k_s$ ’ye ve aynı zamanda $1/r_0$ ’a eşit olup eşitliklerden k_s ve r_0 değerleri bulunmuştur.



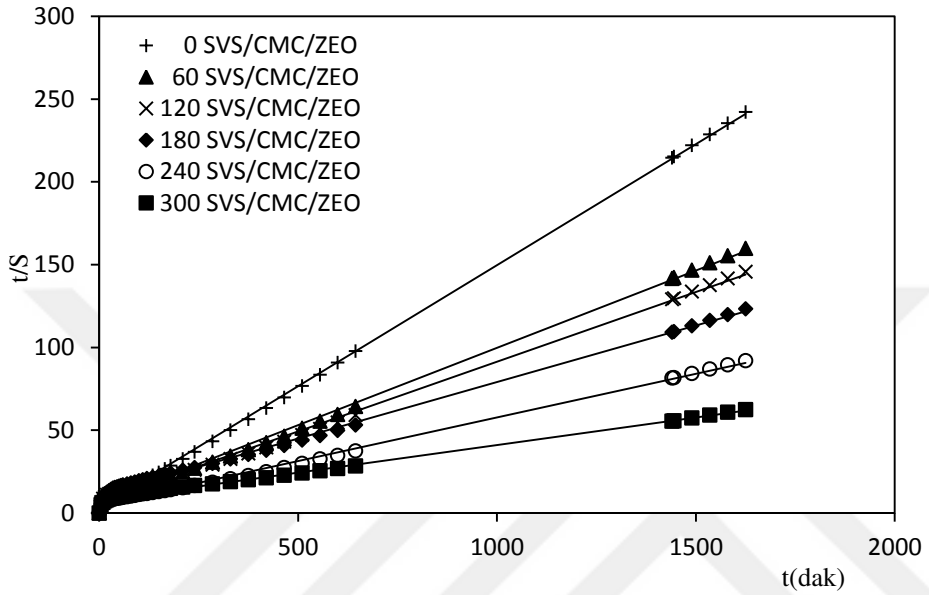
Şekil 4.73. AAm/SVS hidrojenlerinin su/sıvı soğurum kinetiği eğrileri



Şekil 4.74. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin su/sıvı soğurum kinetiği eğrileri



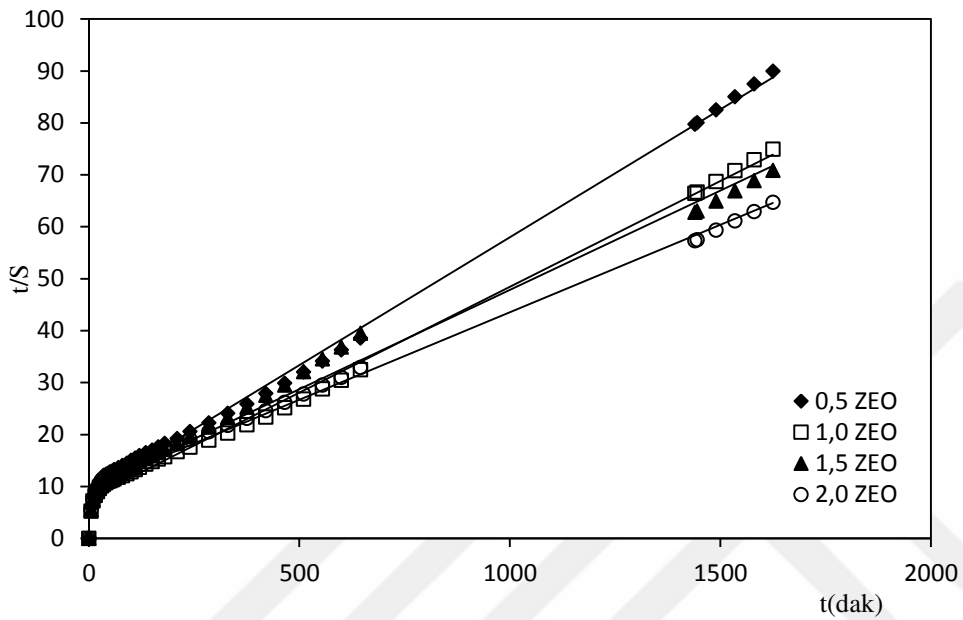
Şekil 4.75. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin su/sıvı soğurum kinetiği eğrileri



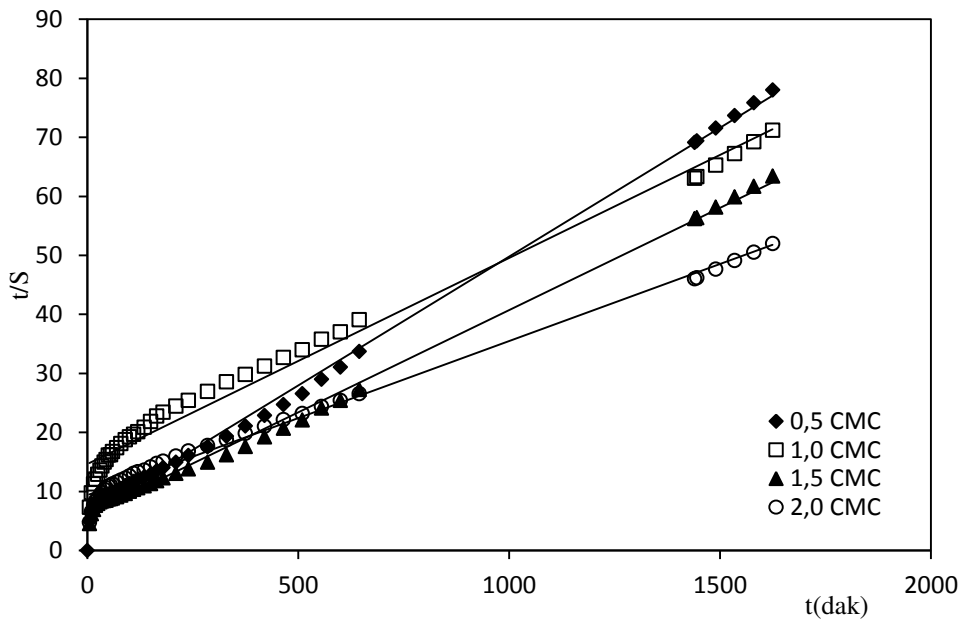
Şekil 4.76. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinin su/sıvı soğurum kinetiği eğrileri

Çizelge 4.9. Hidrojel sistemlerde su/sıvı soğurum kinetiği ile ilgili parametreler

SVS/ μL	0	60	120	180	240	300
Başlangıç su/sıvı soğurum hızı (r_0 (dS/dt) ₀ , g _{su} /g _{jel} dak)						
AAm/SVS	0,0719	0,1153	0,0794	0,0671	0,1272	0,1623
AAm/SVS/ZEO	0,1502	0,1248	0,1178	0,0877	0,1332	0,1779
AAm/SVS/CMC	0,0758	0,1135	0,0806	0,0862	0,0709	0,1026
AAm/SVS/CMC/ZEO	0,2915	0,1580	0,1403	0,0917	0,1988	0,1307
Su/sıvı soğurum hız sabiti ($k_s \times 10^6$, g _{jel} /g _{su} dak)						
AAm/SVS	1035,9	1247,5	369,1	175,2	158,5	187,6
AAm/SVS/ZEO	3244,5	1797,7	786,2	299,1	233,7	239,6
AAm/SVS/CMC	1127,6	939,9	365,2	276,1	89,3	65,6
AAm/SVS/CMC/ZEO	6214,6	1378,1	994,3	427,9	552,1	145,8
Teorik denge su/sıvı soğurum (S_{mak} , g _{su} /g _{jel})						
AAm/SVS	8,333	9,615	14,663	19,569	28,329	29,412
AAm/SVS/ZEO	6,803	8,333	12,240	17,123	23,866	27,248
AAm/SVS/CMC	8,197	10,989	14,859	17,668	28,169	39,526
AAm/SVS/CMC/ZEO	6,849	10,707	11,876	14,641	18,975	29,940



Şekil 4.77. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin su/sıvı soğurum kinetiği eğrileri



Şekil 4.78. Farklı CMC içeriğine sahip semi-IPN hidrojenlerinin su/sıvı soğurum kinetiği eğrileri

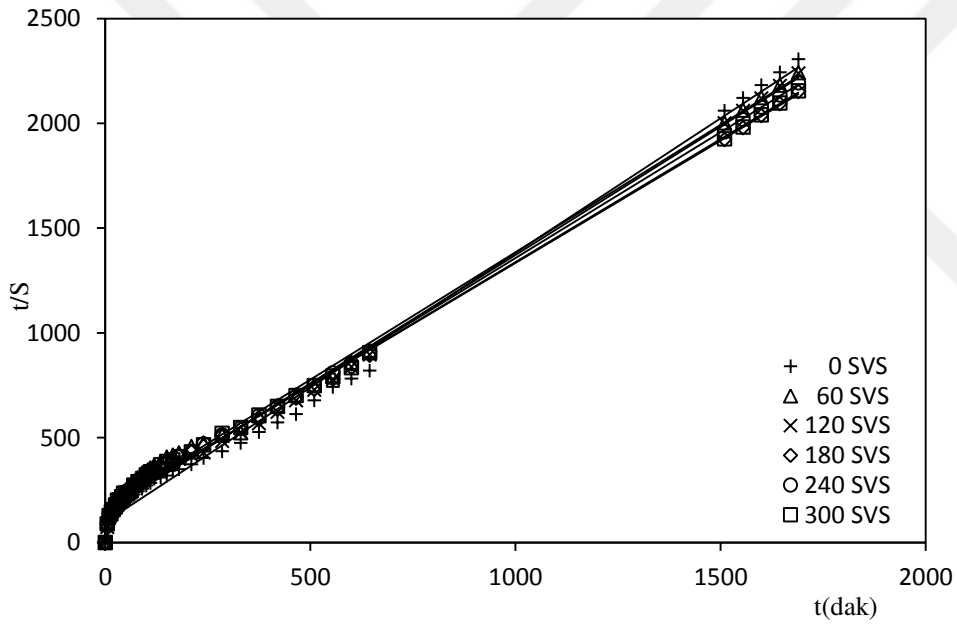
Çizelge 4.10. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip 240 μ L SVS içeren hidrojel sistemlerde su/sıvı soğurum kinetiği ile ilgili parametreler

%2'lik ZEO-su süspansiyonu/ %2'lik sulu CMC çözeltisi (mL)	0,25	0,50	0,75	1,00
	Başlangıç su/sıvı soğurum hızı (r_0 (dS/dt) ₀ , g _{su} /g _{jel} dak)			
ZEO	0,1144	0,1297	0,1037	0,1011
CMC	0,1629	0,0685	0,1645	0,1071
	Su/sıvı soğurum hız sabiti ($k_s \times 10^6$, g _{jel} /g _{su} dak)			
ZEO	278,08	214,85	151,37	114,83
CMC	309,60	83,42	196,90	72,93
	Teorik denge su/sıvı soğurum (S_{mak} , g _{su} /g _{jel})			
ZEO	20,28	24,57	26,17	29,67
CMC	22,936	28,653	28,902	38,314

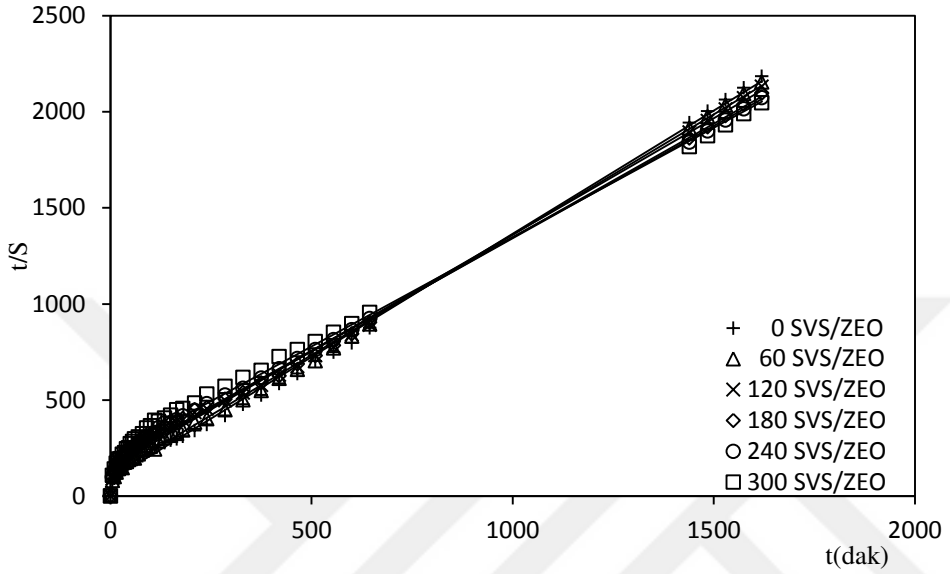
4.3.4.1. Farklı Çözücü-Su Karışımlarında Sıvı Soğurum Kinetiği

ASE-su'da Sıvı Soğurum Kinetiği

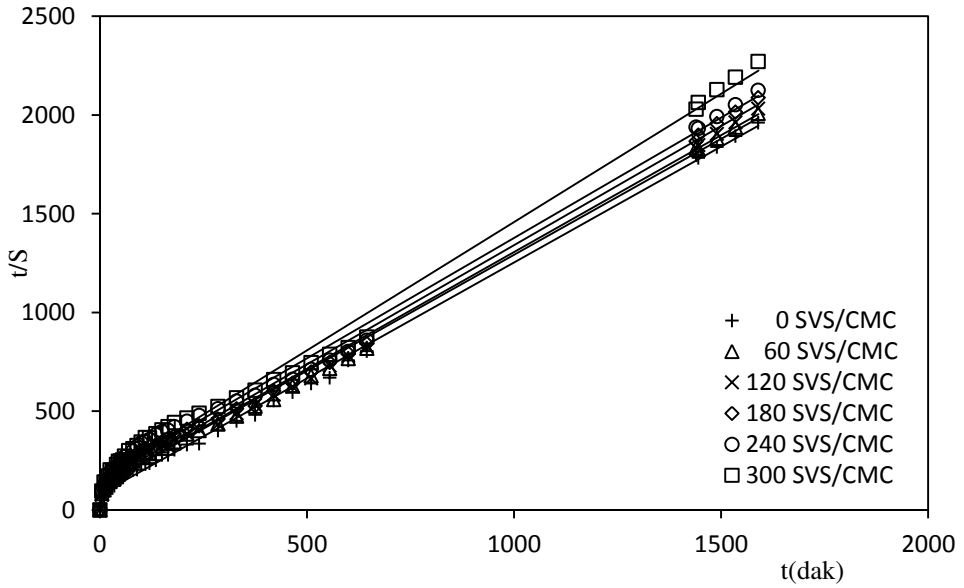
Farklı çözücü-su karışımlarında yapılan sıvı soğurum kinetiği çalışmalarında elde edilen sonuçlar çizelge 4.3'te sunulmuştur. Bu sonuçlar SVS değişimi açısından, Çizelge 4.1'de elde edilen sonuçlara paralellik göstermektedir.



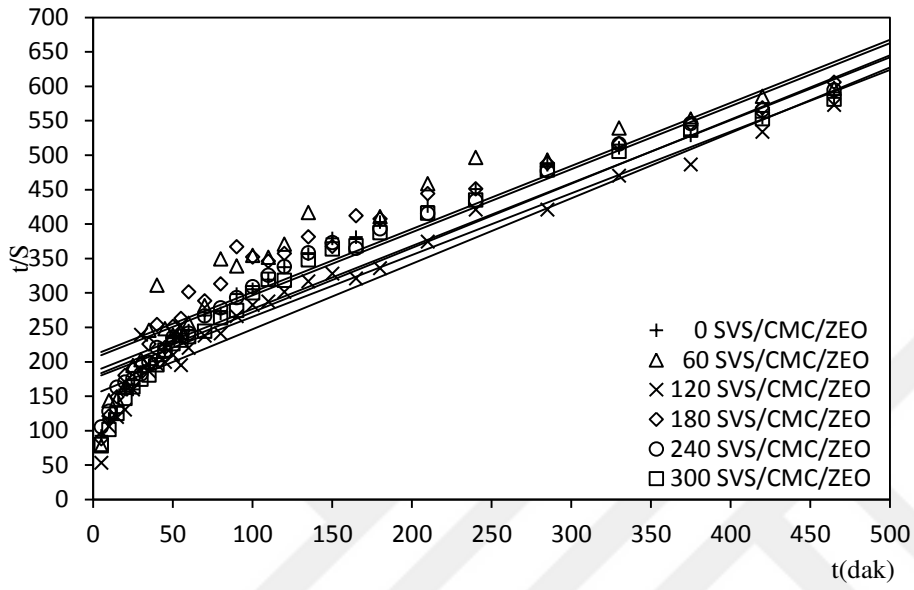
Şekil 4.79. AAm/SVS hidrojellerinin ASE-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri



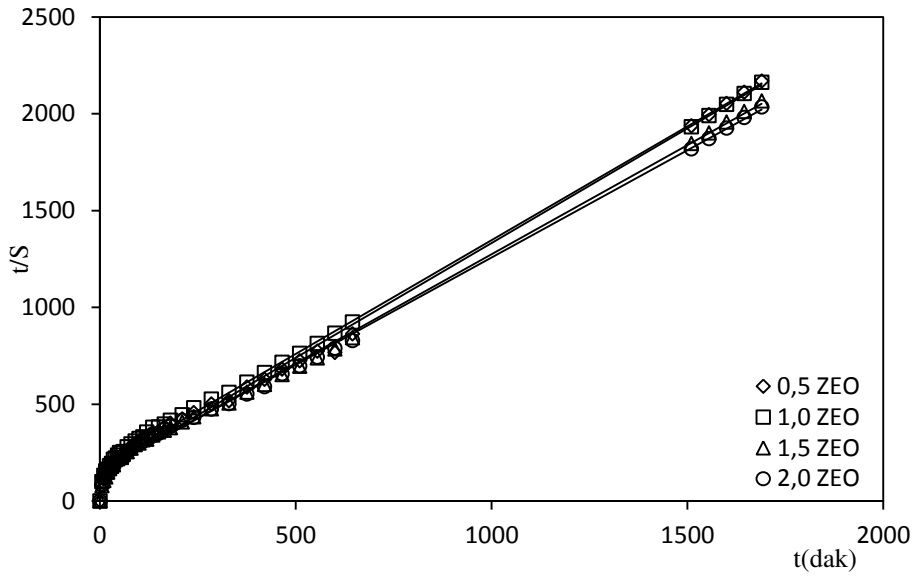
Şekil 4.80. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinin ASE-su'da sıvı soğurum kinetiği



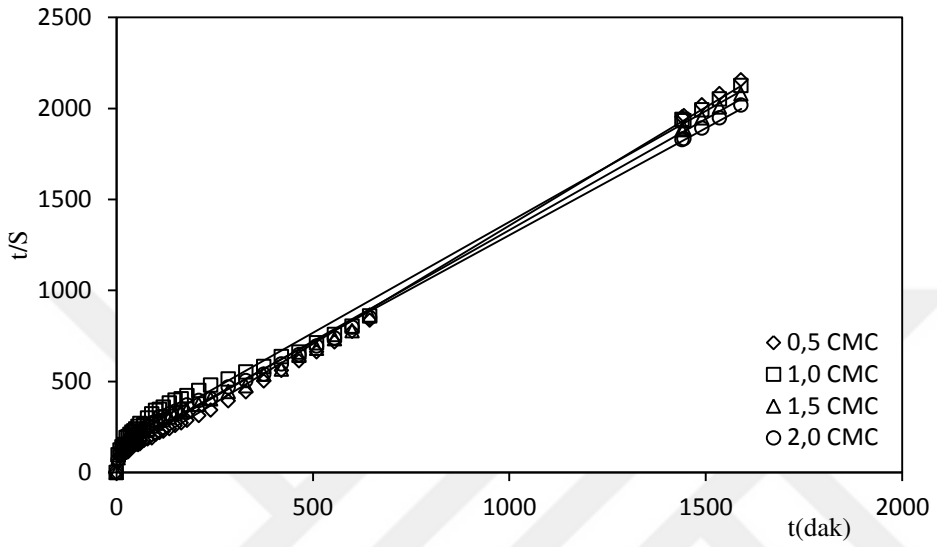
Şekil 4.81. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinin ASE-su'da sıvı soğurum kinetiği



Şekil 4.82. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinin ASE-su'da sıvı soğurum kinetiği

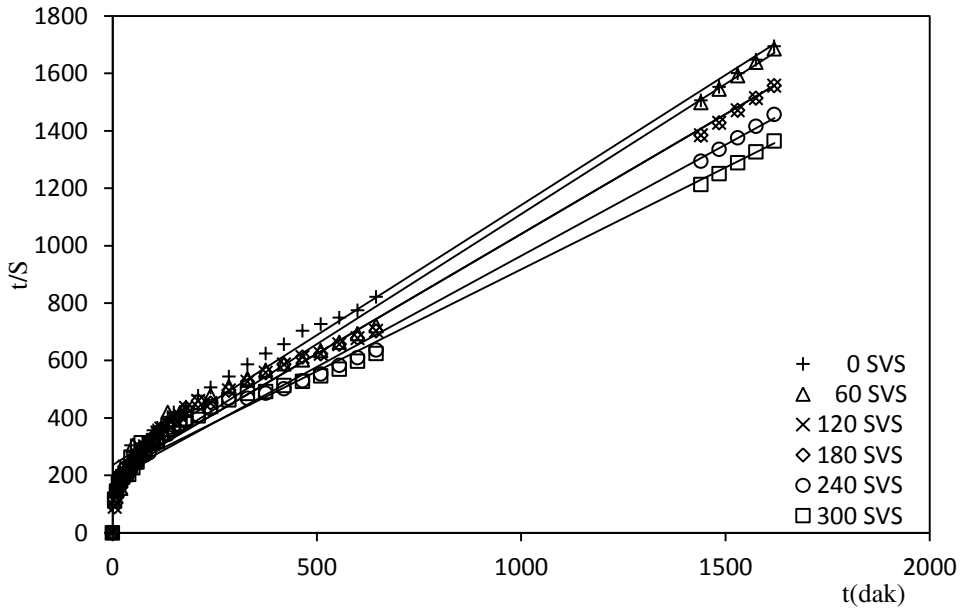


Şekil 4.83. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinin ASE-su'da soğurum kinetiği eğrileri

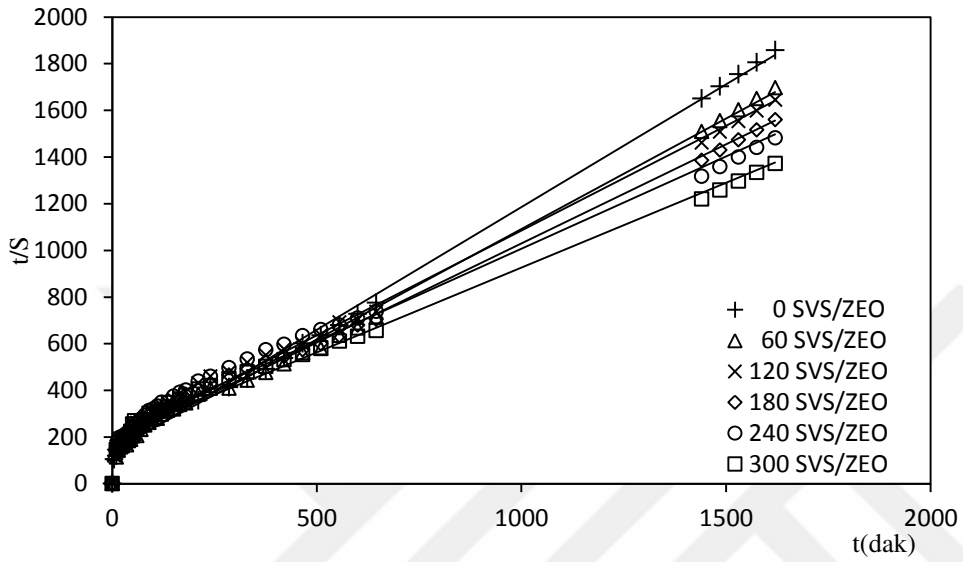


Şekil 4.84. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojjlerinin ASE-su'da soğurum kinetiği eğrileri

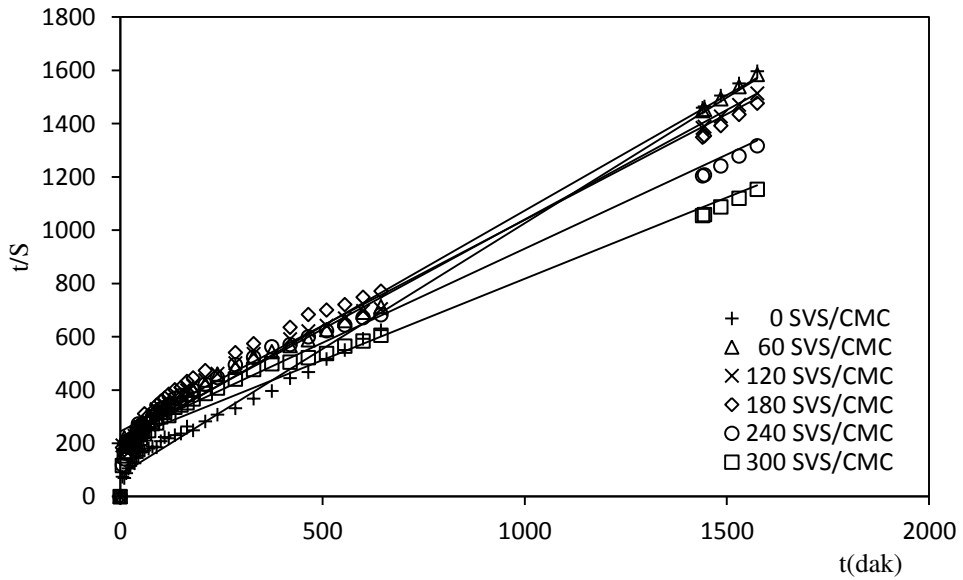
MET-Su'da Sıvı Soğurum Kinetiği



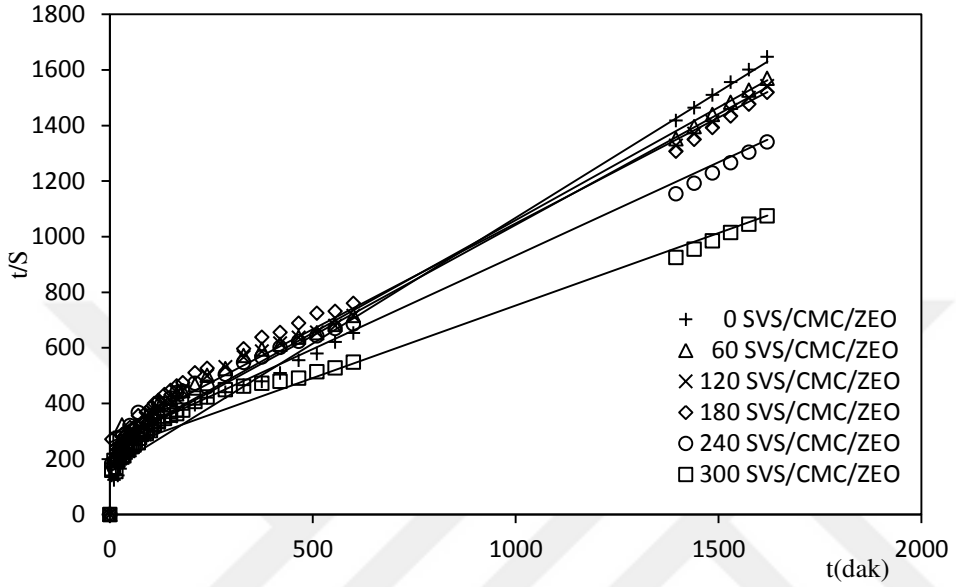
Şekil 4.85. AAm/SVS hidrojjlerinin MET-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri



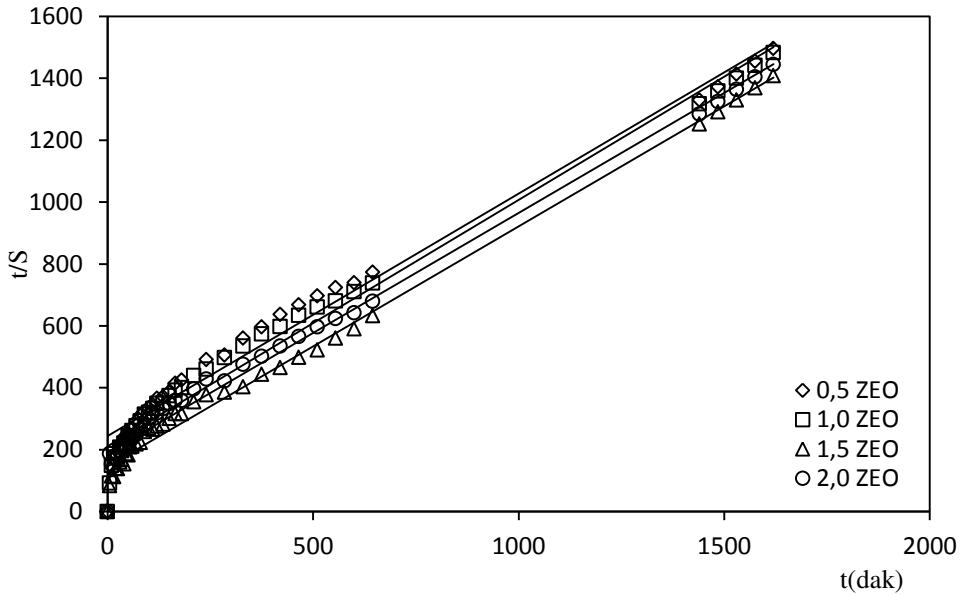
Şekil 4.86. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin MET-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri



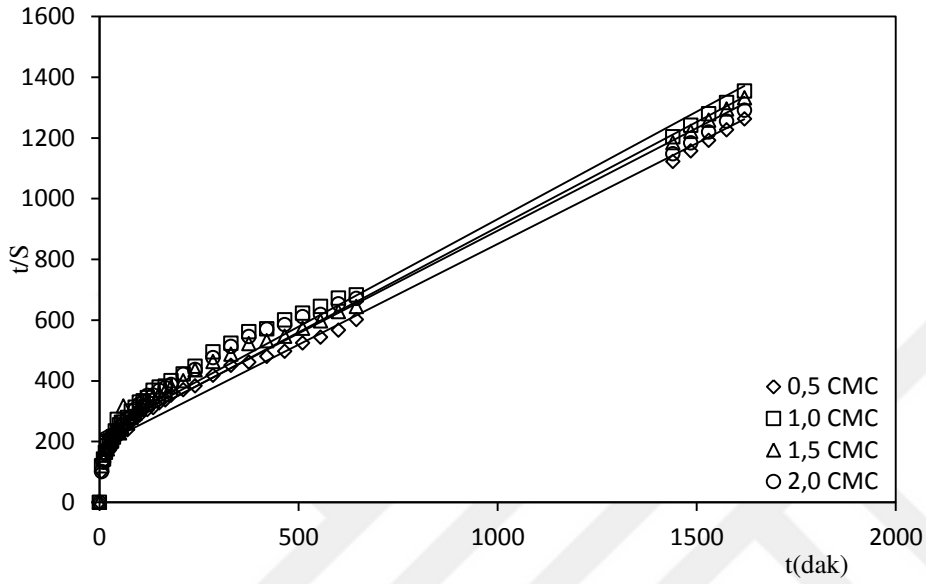
Şekil 4.87. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin MET-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri



Şekil 4.88. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinin MET-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri

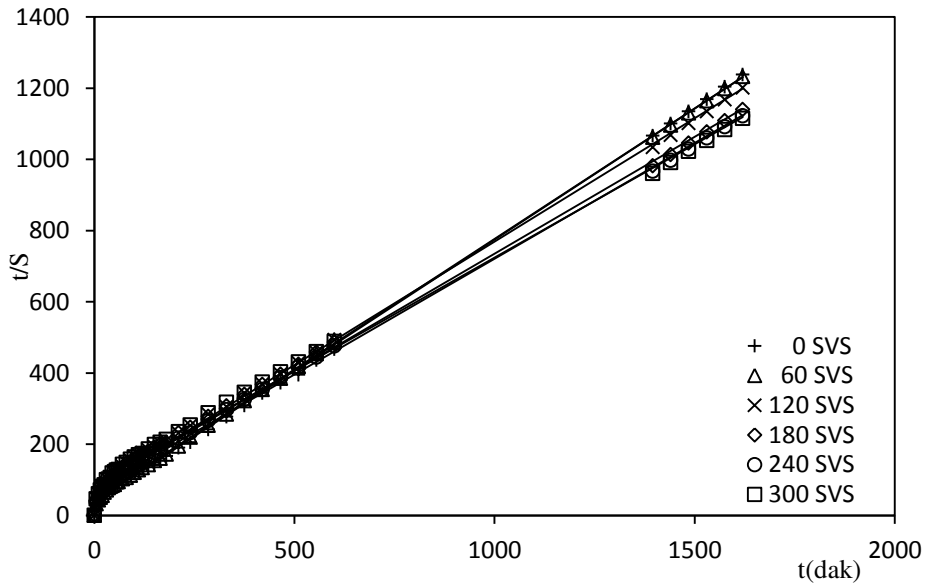


Şekil 4.89. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinin MET-su'da sıvı soğurum eğrileri

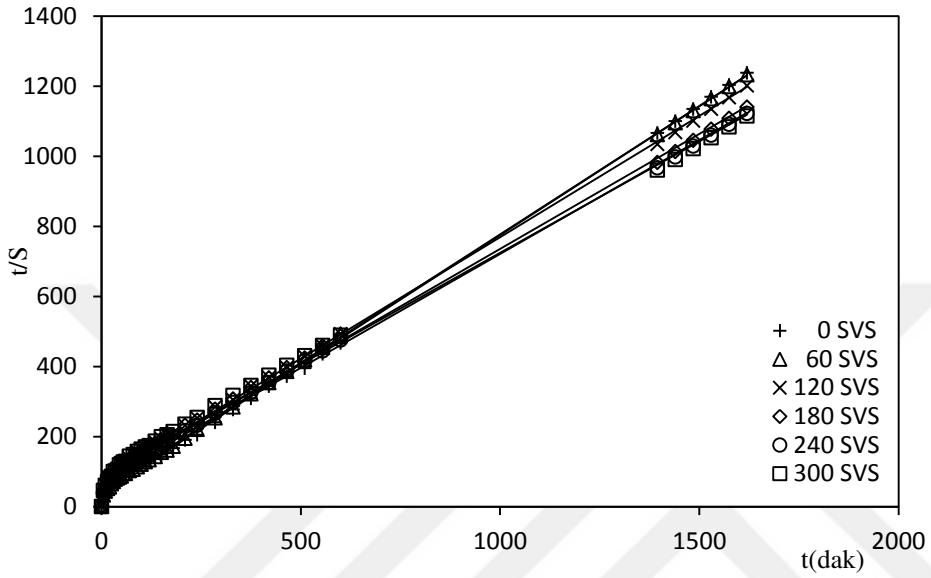


Şekil 4.90. Farklı CMC içeriğine sahip AAM/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin MET-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri

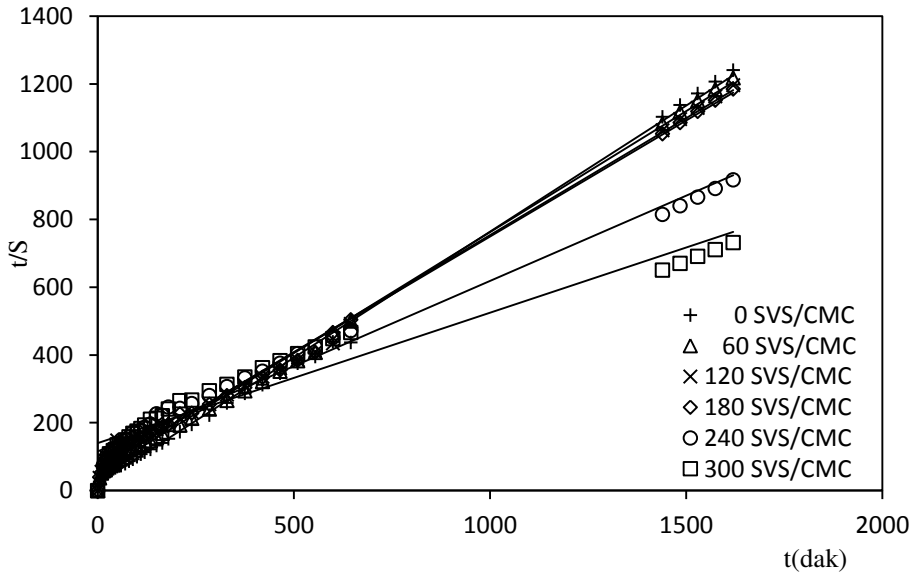
THF-Su'da Sıvı Soğurum Kinetiği



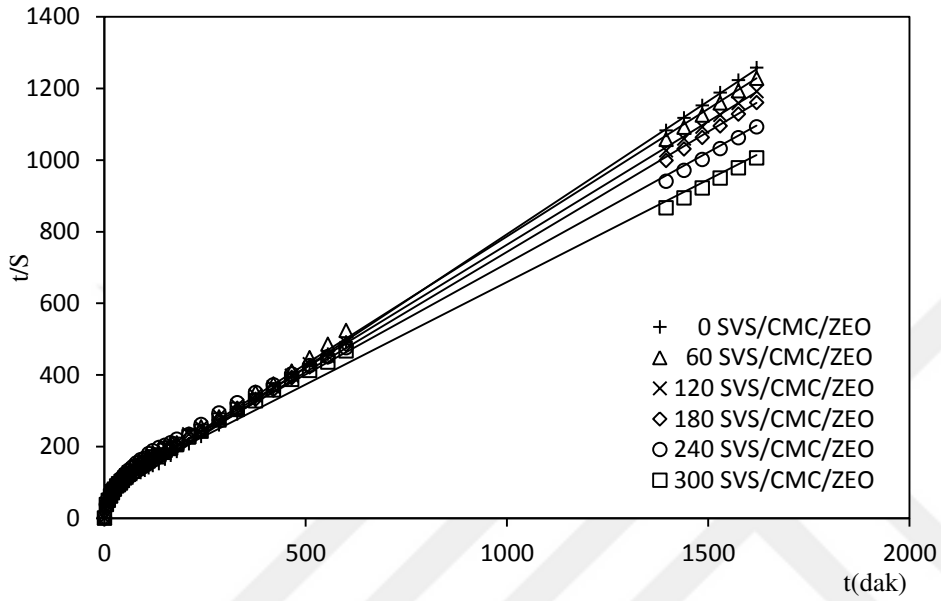
Şekil 4.91. AAm/SVS hidrojenlerinin THF-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri



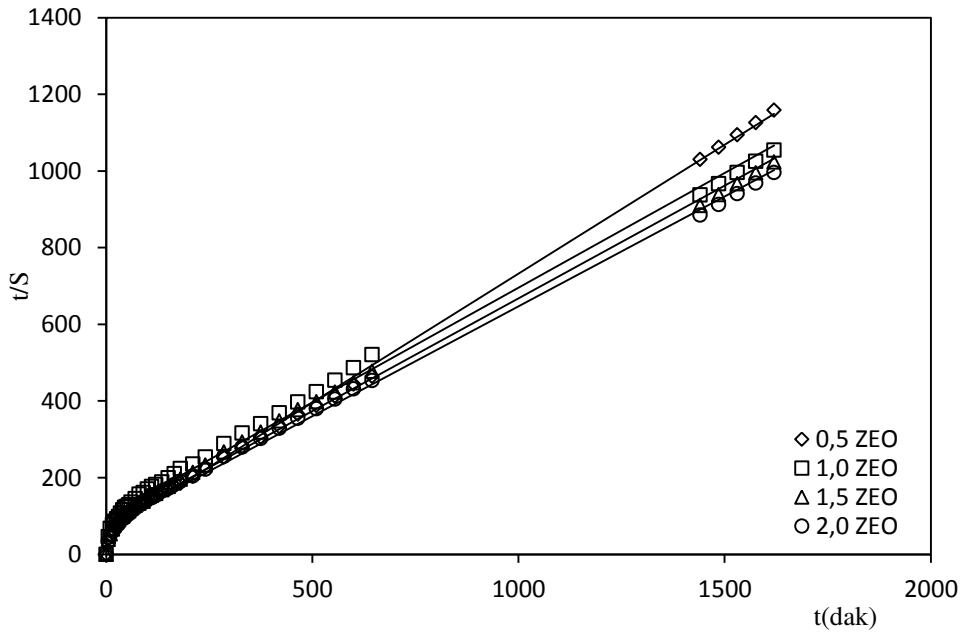
Şekil 4.92. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin THF-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri



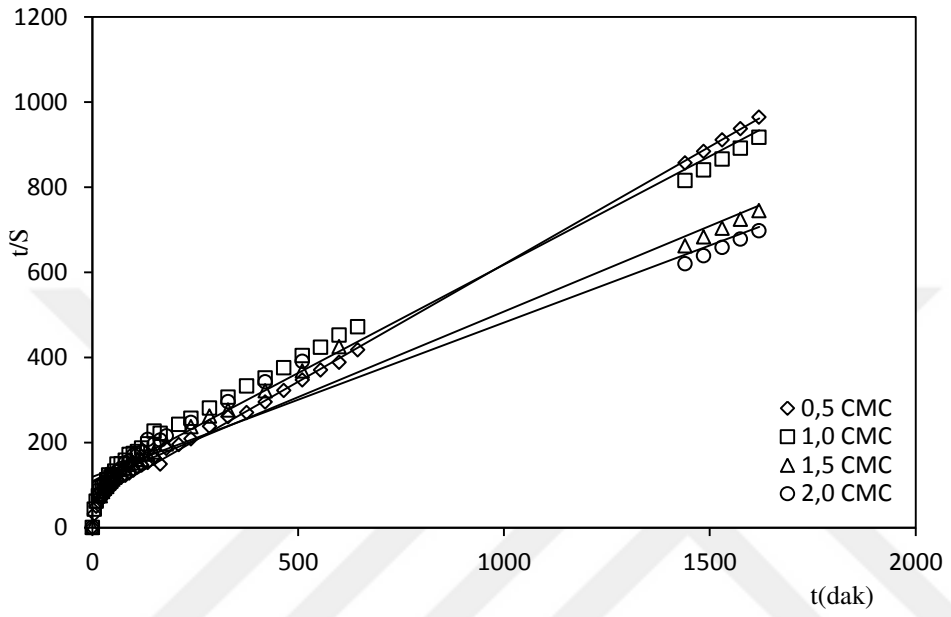
Şekil 4.93. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin THF-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri



Şekil 4.94. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinin THF-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri



Şekil 4.95. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinin THF-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri



Şekil 4.96. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin THF-su'da sıvı soğurum kinetiği eğrileri

Çizelge 4.11. Hidrojel sistemlerin ASE-su'daki sıvı soğurum kinetiği ile ilgili parametreleri

SVS/ μL	0	60	120	180	240	300
	ASE-su					
	Başlangıç su/sıvı soğurum hızı (r_0 (dS/dt) ₀ , g _{sıvı} /g _{jel} dak)					
AAm/SVS	0,0103	0,0059	0,0068	0,0060	0,0064	0,0061
AAm/SVS/ZEO	0,0119	0,0092	0,0067	0,0061	0,0057	0,0047
AAm/SVS/CMC	0,0127	0,0085	0,0082	0,0075	0,0063	0,0063
AAm/SVS/CMC/ZEO	0,0056	0,0048	0,0066	0,0049	0,0054	0,0057
	Su/sıvı soğurum hız sabiti ($k_s \times 10^6$, g _{jel} /g _{sıvı} dak)					
AAm/SVS	16804	8807	10291	8246	9171	8296
AAm/SVS/ZEO	19574	14467	9892	8595	7912	6188
AAm/SVS/CMC	17393	11600	11413	11008	9420	10696
AAm/SVS/CMC/ZEO	4852	3995	5937	4092	4515	4561
	Teorik denge su/sıvı soğurum (S_{mak} , g _{sıvı} /g _{jel})					
AAm/SVS	0,7813	0,8197	0,8130	0,8547	0,8333	0,8547
AAm/SVS/ZEO	0,7813	0,8000	0,8264	0,8475	0,8547	0,8772
AAm/SVS/CMC	0,8547	0,8547	0,8475	0,8264	0,8197	0,7962
AAm/SVS/CMC/ZEO	1,0730	1,0917	1,0526	1,0917	1,0941	0,1161

Çizelge 4.12. Hidrojel sistemlerin MET-su'daki sıvı soğurum kinetiği ile ilgili parametreleri

SVS/ μL	0	60	120	180	240	300
	MET-su					
	Başlangıç su/sıvı soğurum hızı (r_0 (dS/dt) ₀ , g _{sıvı} /g _{jel} dak)					
AAm/SVS	0,0042	0,0048	0,0048	0,00480	0,0052	0,0048
AAm/SVS/ZEO	0,0075	0,0069	0,0053	0,0055	0,0046	0,0050
AAm/SVS/CMC	0,0121	0,0049	0,0046	0,0041	0,0044	0,0048
AAm/SVS/CMC/ZEO	0,0061	0,0040	0,0041	0,0035	0,0039	0,0043
	Su/sıvı soğurum hız sabiti ($k_s \times 10^6$, g _{jel} /g _{sıvı} dak)					
AAm/SVS	3470	3995	3360	3360	3112	2423
AAm/SVS/ZEO	8227	6171	4279	3982	2896	2635
AAm/SVS/CMC	10752	3648	3135	2583	2215	1797
AAm/SVS/CMC/ZEO	5024	2706	2599	2030	1748	1179
	Teorik denge su/sıvı soğurum (S_{mak} , g _{sıvı} /g _{jel})					
AAm/SVS	1,1050	1,1050	1,1990	1,990	1,2937	1,4085
AAm/SVS/ZEO	0,9524	1,0571	1,1148	1,1779	1,2642	1,3774
AAm/SVS/CMC	1,0604	1,1534	1,2151	1,2594	1,4164	1,6393
AAm/SVS/CMC/ZEO	1,1050	1,2180	1,2531	1,3123	1,4859	1,9157

Çizelge 4.13. Hidrojel sistemlerin THF-su'daki sıvı soğurum kinetiği ile ilgili parametreleri

SVS/ μL	0	60	120	180	240	300
	THF-su					
	Başlangıç su/sıvı soğurum hızı (r_0 (dS/dt) $_{0, g_{\text{sıvı}}/g_{\text{jel}}}$ dak)					
AAm/SVS	0,0257	0,0227	0,0131	0,0126	0,0141	0,0113
AAm/SVS/ZEO	0,0138	0,0107	0,0120	0,0096	0,0103	0,0119
AAm/SVS/CMC	0,0505	0,0208	0,0157	0,0155	0,0086	0,0071
AAm/SVS/CMC/ZEO	0,0199	0,0135	0,0132	0,0139	0,0109	0,0114
	Su/sıvı soğurum hız sabiti ($k_s \times 10^6$, $g_{\text{jel}}/g_{\text{sıvı}}$ dak)					
AAm/SVS	13961	12238	6294	5433	5967	4607
AAm/SVS/ZEO	6508	4557	4732	3450	3682	4144
AAm/SVS/CMC	27956	10642	7509	7308	2181	1053
AAm/SVS/CMC/ZEO	10996	6879	6252	6280	4223	3760
	Teorik denge su/sıvı soğurum (S_{mak} , $g_{\text{sıvı}}/g_{\text{jel}}$)					
AAm/SVS	1,3587	1,3643	1,4430	1,5244	1,5385	1,5723
AAm/SVS/ZEO	1,4577	1,5361	1,5974	1,6694	1,6722	1,6949
AAm/SVS/CMC	1,3441	1,4006	1,4493	1,4599	1,9881	2,6042
AAm/SVS/CMC/ZEO	1,3459	1,4025	1,4535	1,4881	1,6103	1,7483

Çizelge 4.14. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 μ L SVS içeren hidrojel sistemlerde ASE-su; MET-su ve THF-su'daki sıvı soğurum kinetiği ile ilgili parametreleri

%2'lik ZEO-su süspansiyonu / %2'lik sulu CMC çözeltisi (mL)	0,25	0,50	0,75	1,00
	ASE-su			
	Başlangıç su/sıvı soğurum hızı (r_0 (dS/dt) ₀ , g _{sıvı} /g _{jel} dak)			
ZEO	0,0067	0,0058	0,0067	0,0066
CMC	0,0176	0,0063	0,0089	0,0078
	Su/sıvı soğurum hız sabiti ($k_s \times 10^6$, g _{jel} /g _{sıvı} dak)			
ZEO	9408	7958	8627	8214
CMC	29701	9420	13289	10793
	Teorik denge su/sıvı soğurum (S_{mak} , g _{sıvı} /g _{jel})			
ZEO	0,8475	0,8574	0,8850	0,9009
CMC	0,7692	0,8197	0,8197	0,8475
	MET-su			
	Başlangıç su/sıvı soğurum hızı (r_0 (dS/dt) ₀ , g _{sıvı} /g _{jel} dak)			
ZEO	0,0041	0,0047	0,0068	0,0053
CMC	0,0053	0,0045	0,0047	0,0046
	Su/sıvı soğurum hız sabiti ($k_s \times 10^6$, g _{jel} /g _{sıvı} dak)			
ZEO	2512	3002	4113	3177
CMC	2350	2237	2244	2096
	Teorik denge su/sıvı soğurum (S_{mak} , g _{sıvı} /g _{jel})			
ZEO	1,2771	1,2563	1,2903	1,2903
CMC	1,5083	1,4124	1,4430	1,4793

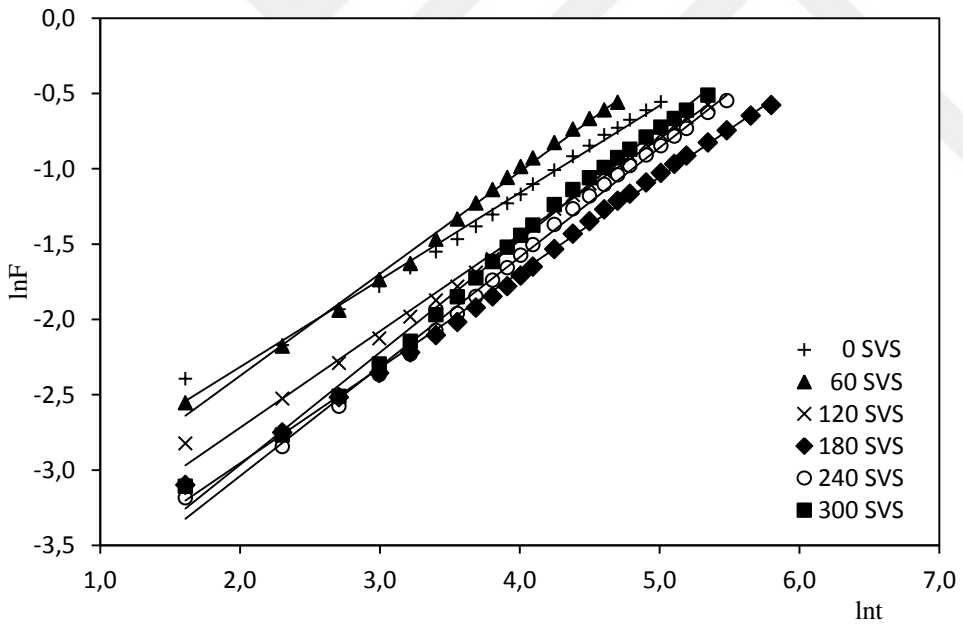
Çizelge 4.15. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 µL SVS içeren hidrojel sistemlerde THF-su'da sıvı soğurum kinetiği ile ilgili parametreler

%2'lik ZEO-su süspansiyonu / %2'lik sulu CMC çözeltisi (mL)	0,25	0,50	0,75	1,00
	THF-su			
	Başlangıç su/sıvı soğurum hızı ($r_0(dS/dt)_0$, g_{siv}/g_{jel} dak)			
ZEO	0,0168	0,0103	0,0124	0,0135
CMC	0,0149	0,0092	0,0094	0,0083
	Su/sıvı soğurum hız sabiti ($k_s \times 10^6$, g_{jel}/g_{siv} dak)			
ZEO	7612	3682	4316	4442
CMC	4547	2376	1524	1092
	Teorik denge su/sıvı soğurum (S_{mak} , g_{siv}/g_{jel})			
ZEO	1,4859	1,6722	1,7007	1,7452
CMC	1,8116	1,9646	2,4876	2,7624

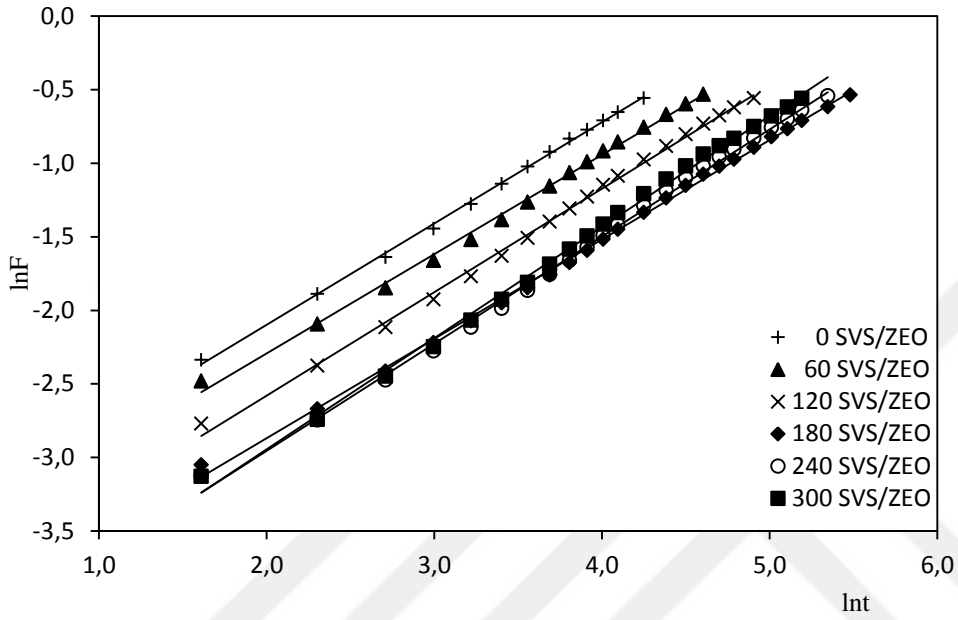
Çizelge 4.11-12-13 incelendiğinde S_{mak} değerleri ile daha önceden hesaplanan su/sıvı soğurum değerlerinin uyumlu olduğu görülür. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojelleri dinamik su/sıvı soğurum testleri sonucunda 0,7330-1,453 arasında su/sıvı soğurum değeri gösterirken, su soğurum kinetiği analizleri sonucunda bu değerler 0,7813-0,8547 olarak hesaplanmıştır. Çizelge 4.14-15 incelendiğinde S_{mak} değerleri ile daha önceden hesaplanan su/sıvı soğurum değerleri uyumludur. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojelleri dinamik sıvı soğurum testleri sonucunda 0,7795-1,626 arasında su/sıvı soğurum değeri gösterirken, su/sıvı soğurum kinetiği analizleri sonucu bu değerler, 0,8475-0,9009 aralığında değişmektedir. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojelleri dinamik su/sıvı soğurum testleri sonucunda 0,7375-2,323 arasında su/sıvı soğurum değeri gösterirken, su/sıvı soğurum kinetiği analizleri sonucunda bu değerler, 0,7692-1,4793 olarak hesaplanmıştır.

4.3.5. Suyun Geçirimi

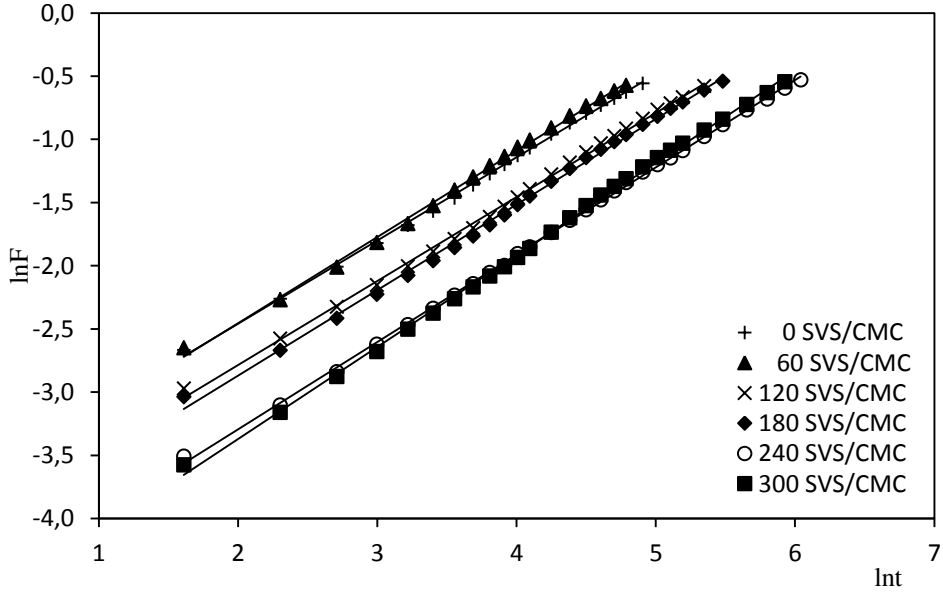
Çapraz bağlı polimerik yapıların temel şişme davranışlarının ve geçirim türünün açıklanmasında kullanılan en temel yasalar Fick yasalarıdır. Geçirimin temelleri 1855 yılında Fick tarafından ortaya atılmıştır. Su soğurum kinetiği; Eşitlik 5'te verilen temel bağıntı ile incelenmektedir. Bu amaçla PEGDA ile çapraz bağlanmış polimerlere su geçiriminin incelenmesi için Eşitlik 5'te verilen bağıntının logaritmik formu kullanılarak $\ln F$ - $\ln t$ grafikleri çizilmiştir. Grafiklerde elde edilen doğruların eğiminden geçirim üsteli (n) ve kesim noktalarından ise geçirim sabiti (k) değerleri bulunmuştur. Bulunan (n) ve (k) değerlerinden Eşitlik 6'daki geçirim katsayısı (D) hesaplanmıştır.



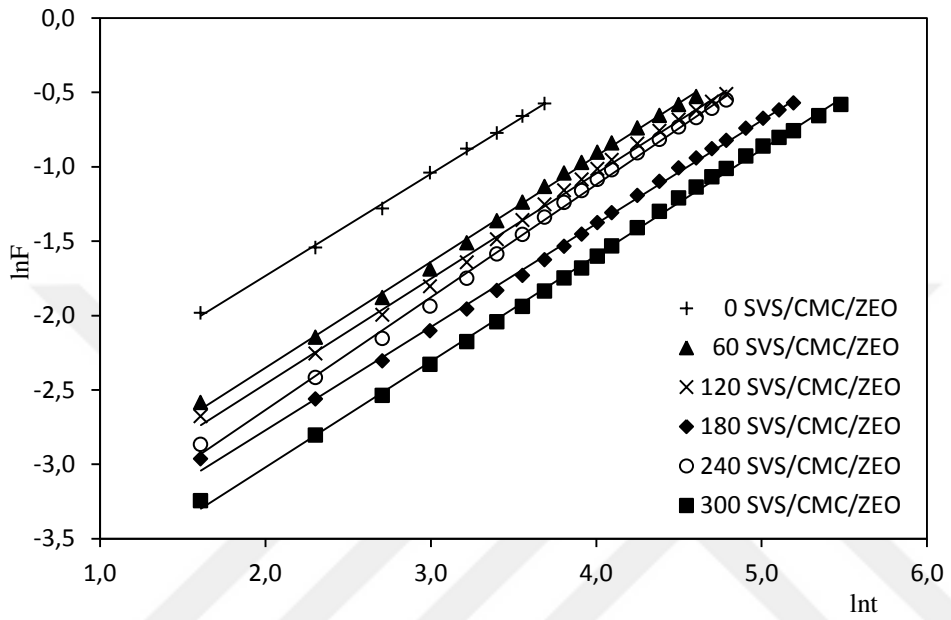
Şekil 4.97. AAm/SVS hidrojellerinde $\ln F$ - $\ln t$ değişimi



Şekil 4.98. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojelinde $\ln F$ - $\ln I$ değişimi



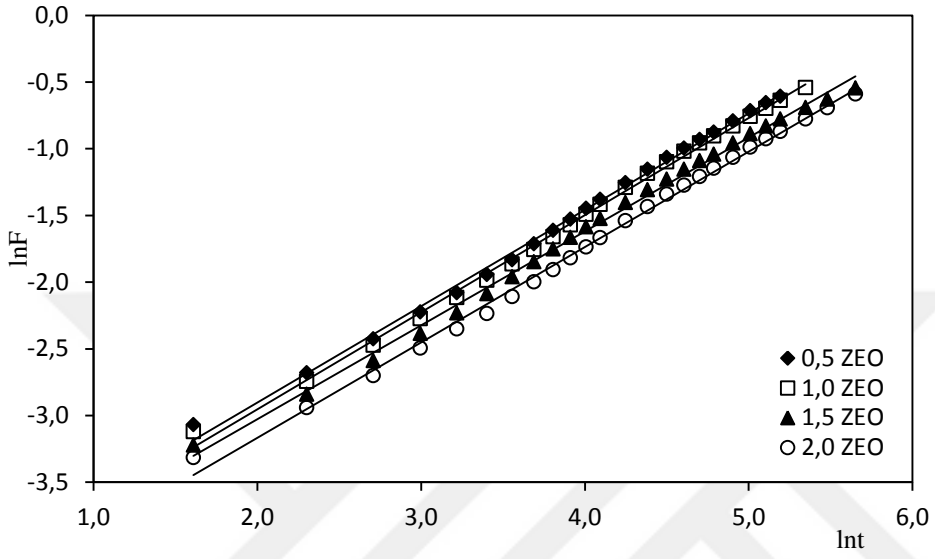
Şekil 4.99. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojelinde $\ln F$ - $\ln I$ değişimi



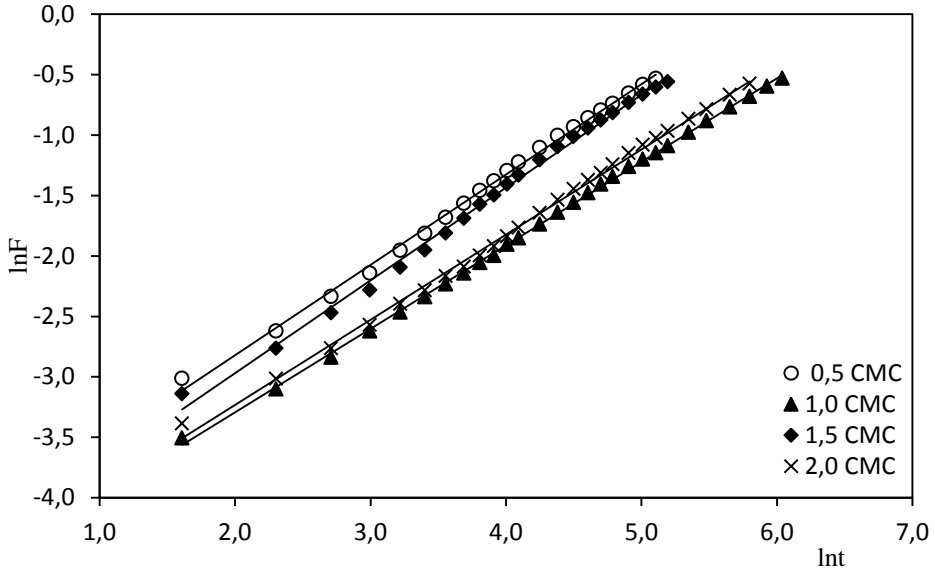
Şekil 4.100. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinde $\ln F$ - $\ln I$ değişimi

Çizelge 4.16. Hidrojel sistemlerde su geçirimi ile ilgili parametreler

SVS/ μ L	0	60	120	180	240	300
	Geçirim üsteli (n)					
AAm/SVS	0,5785	0,6783	0,6401	0,6334	0,7270	0,7453
AAm/SVS/ZEO	0,6882	0,6752	0,7028	0,6760	0,7280	0,7552
AAm/SVS/CMC	0,6586	0,6820	0,6650	0,6772	0,6908	0,7282
AAm/SVS/CMC/ZEO	0,6862	0,7111	0,7077	0,6940	0,7573	0,7120
	Geçirim sabiti ($k \times 10^3$)					
AAm/SVS	30,9959	23,9496	18,3358	14,6678	14,6839	11,6110
AAm/SVS/ZEO	30,9742	26,1684	18,5980	14,6810	12,1503	11,6354
AAm/SVS/CMC	22,9302	21,9695	16,3112	14,6355	9,3199	8,0105
AAm/SVS/CMC/ZEO	44,7707	22,9899	20,7543	15,6231	15,7849	11,7463
	Geçirim katsayısı ($D \times 10^5$)					
AAm/SVS	19,4816	56,3358	34,3133	16,3604	99,2078	85,5262
AAm/SVS/ZEO	112,4030	88,8384	82,5302	52,0489	83,8678	123,3028
AAm/SVS/CMC	45,8453	67,5011	45,5564	54,2045	40,9539	65,7160
AAm/SVS/CMC/ZEO	136,5761	106,7723	103,9521	72,6902	178,4328	90,0880



Şekil 4.101. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojelinde $\ln F$ - $\ln I$ değişimi



Şekil 4.102. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojelinde $\ln F$ - $\ln I$ değişimi

Çizelge 4.17. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 µL SVS içeren hidrojel sistemlerde su geçirimi ile ilgili parametreler

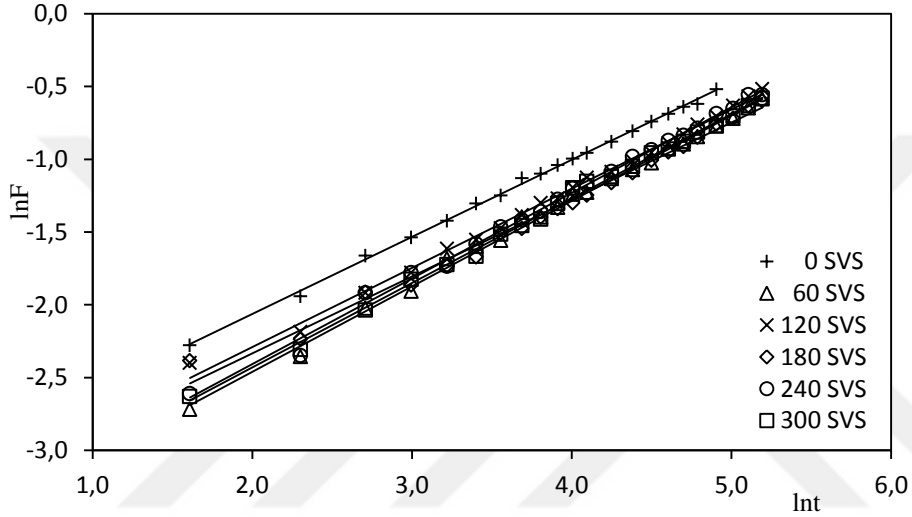
%2'lik ZEO-su süspansiyonu / %2'lik sulu CMC çözeltisi (mL)	0,25	0,50	0,75	1,00
	Geçirim üsteli (n)			
ZEO	0,7229	0,7280	0,7042	0,7148
CMC	0,7472	0,6908	0,7678	0,7043
	Geçirim sabiti ($k \times 10^3$)			
ZEO	12,9184	12,1503	11,8396	10,0860
CMC	13,3612	9,3199	11,0503	9,6528
	Geçirim katsayısı ($D \times 10^5$)			
ZEO	66,2376	83,8678	64,1160	70,1967
CMC	94,1897	40,9540	131,5800	58,3362

Geçirim üsteli (n), geçirim türünün belirlenmesi için kullanılan önemli bir parametredir. Çizelge 4.16 incelendiğinde hazırlanan çapraz bağlı semi-IPN ve biyohibrit hidrojeller için n değeri 0,57-0,75 arasında bulunmuştur. Bu değerler $0,5 < n < 1$ aralığındadır. Bu durumda, hidrojellerin su geçirimi türü Fick tipi olmayan (anormal) geçirim sınıfına girmektedir. Yani hidrojellerin soğurumu sırasında geçirimin ve durulmanın aynı anda olduğu söylenebilir.

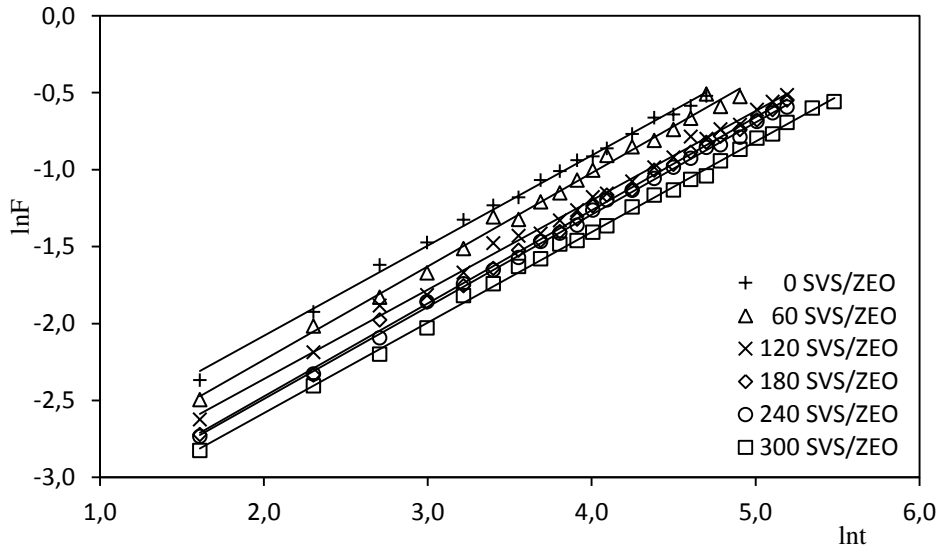
Çizelge 4.17 incelendiğinde, hazırlanan çapraz bağlı semi-IPN ve biyohibrit hidrojeller için n değerleri 0,69-0,76 arasında bulunmuştur. Bu değerler $0,5 < n < 1$ aralığındadır. Bu durumda, hidrojellerin su geçirimi türü Fick tipi olmayan (anormal) geçirim sınıfına girmektedir. Yani hidrojellerin soğurumu sırasında geçirimin ve durulmanın aynı anda olduğu söylenebilir.

4.3.5.1. Farklı Çözücü-Su Karışımlarında Sıvının Geçirimi

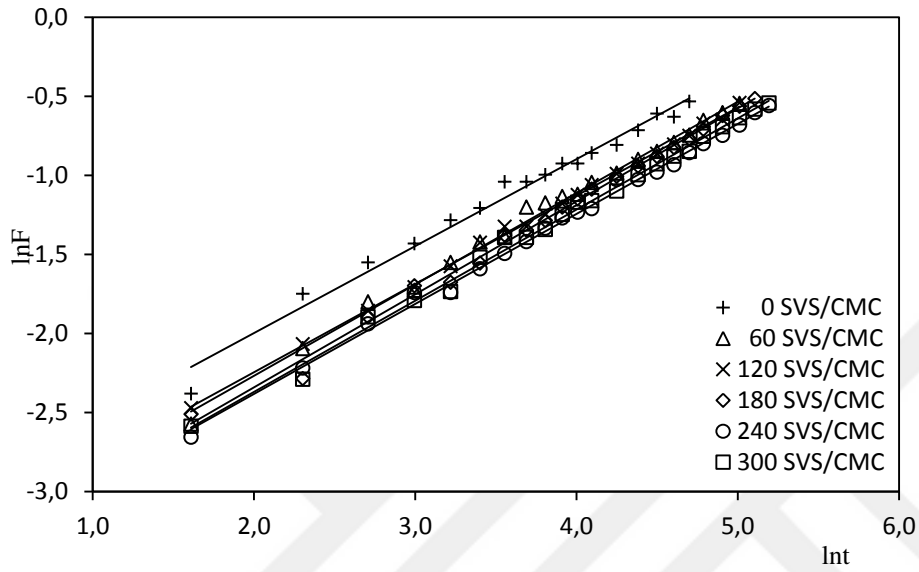
ASE-Su'da Sıvının Geçirimi



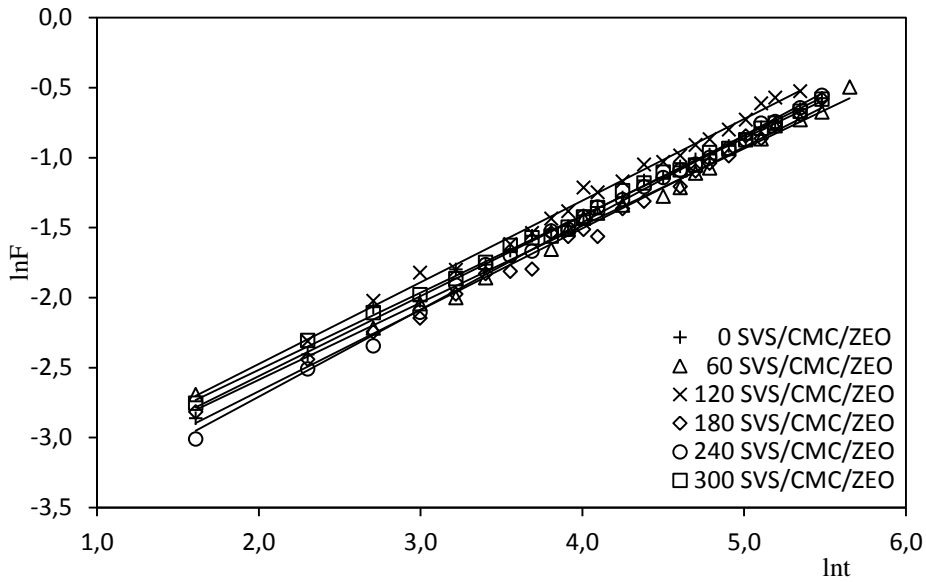
Şekil 4.103. AAm/SVS hidrojenlerinde ASE-su'daki $\ln F$ - $\ln I$ değişimi



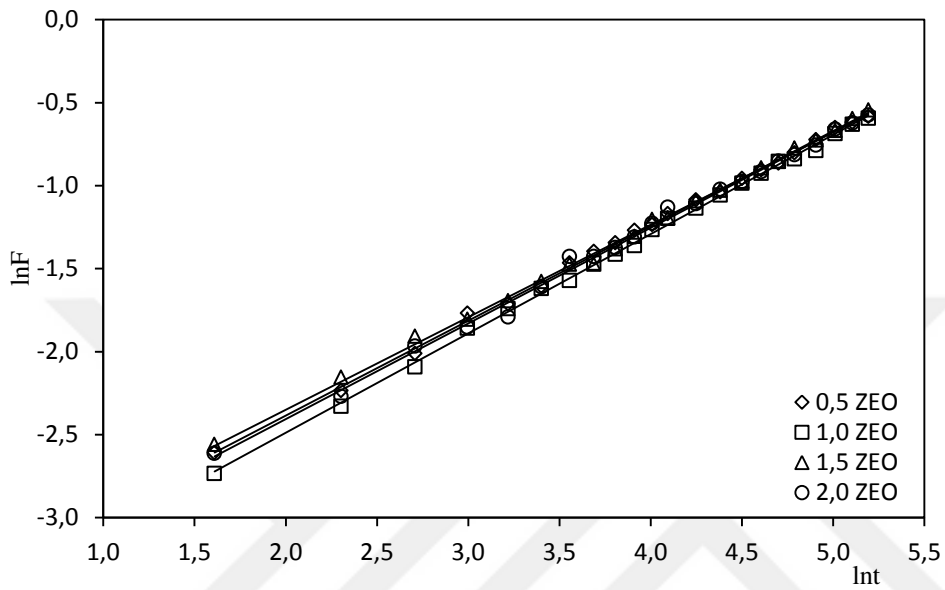
Şekil 4.104. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinde ASE-su'daki $\ln F$ - $\ln I$ değişimi



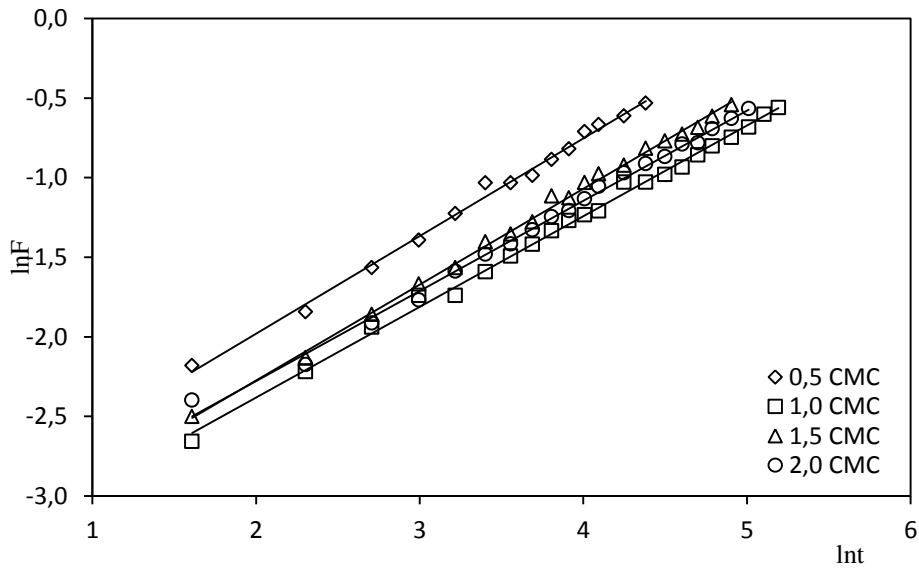
Şekil 4.105. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinde ASE-su'daki $\ln F$ - $\ln I$ değişimi



Şekil 4.106. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinde ASE-su'daki $\ln F$ - $\ln I$ değişimi

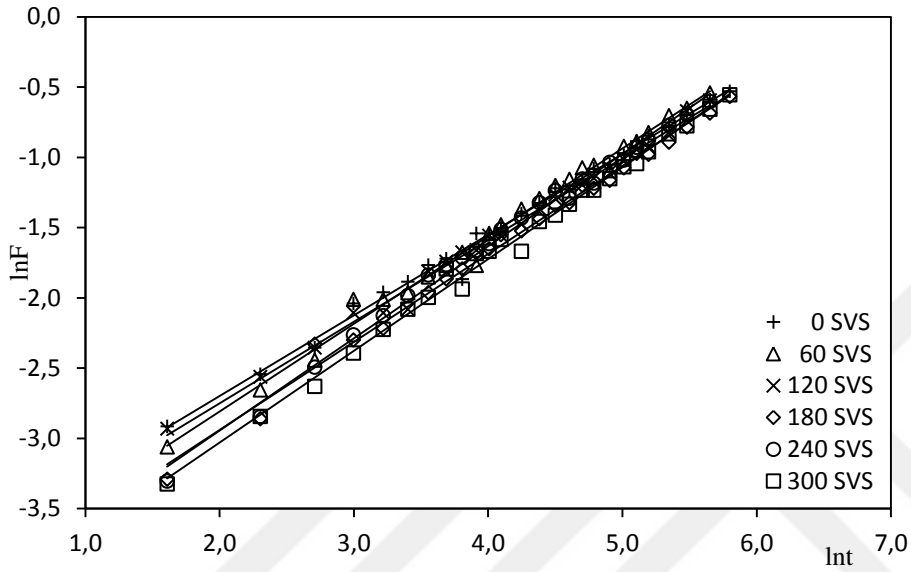


Şekil 4.107. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinde ASE-su'daki $\ln F$ - $\ln I$ değişimi

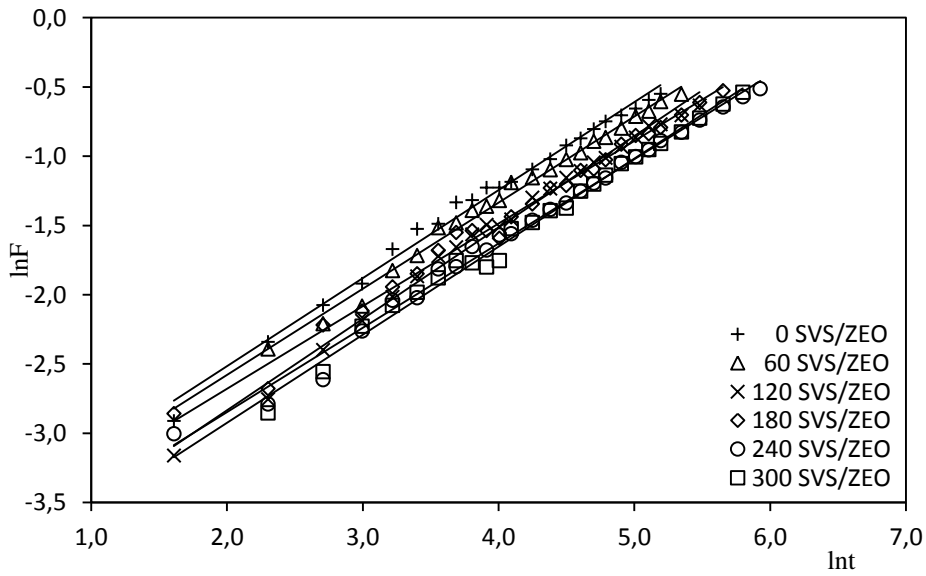


Şekil 4.108. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinde ASE-su'daki $\ln F$ - $\ln I$ değişimi

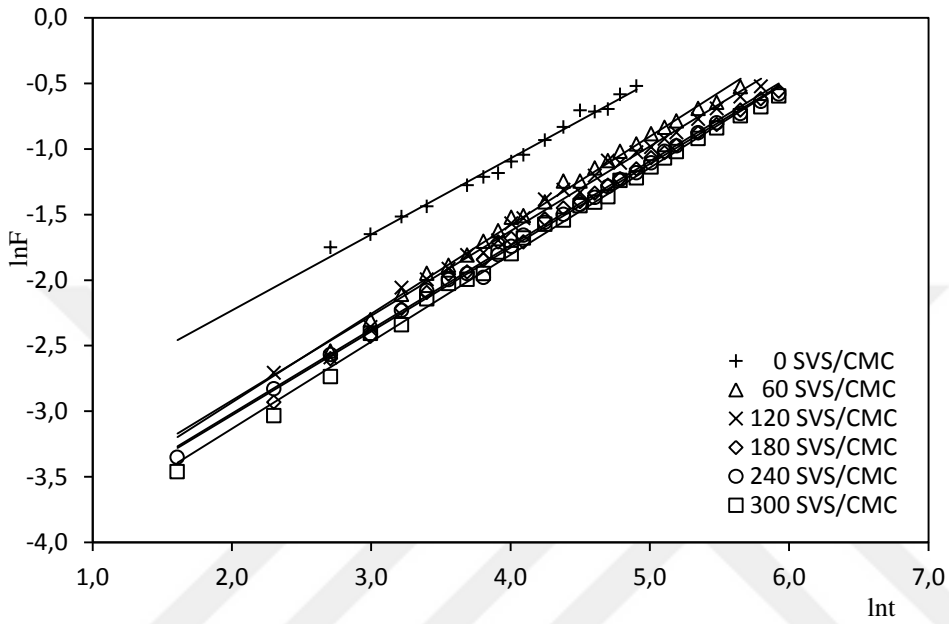
MET-Su'daki Sıvının Geçirimi



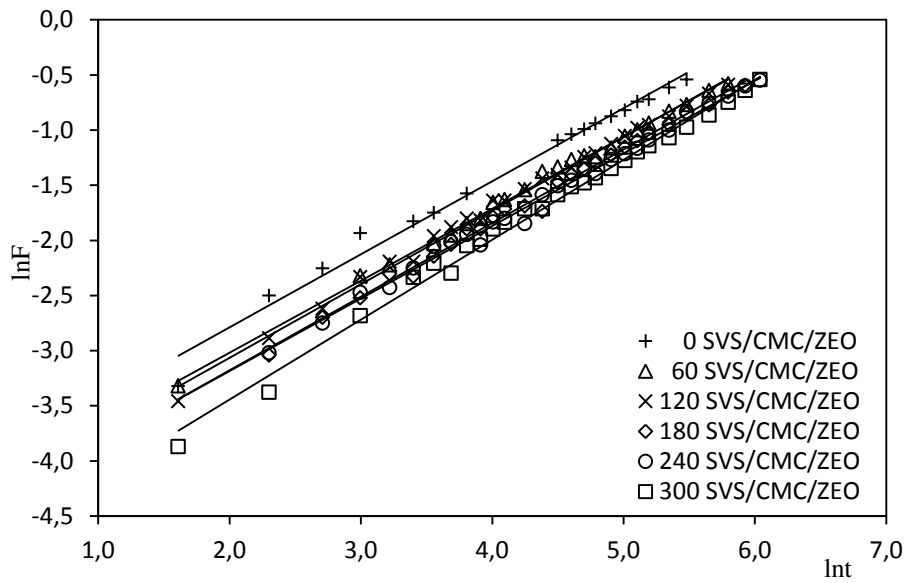
Şekil 4.109. AAm/SVS hidrojenlerinde MET-su'daki $\ln F$ - $\ln I$ değişimi



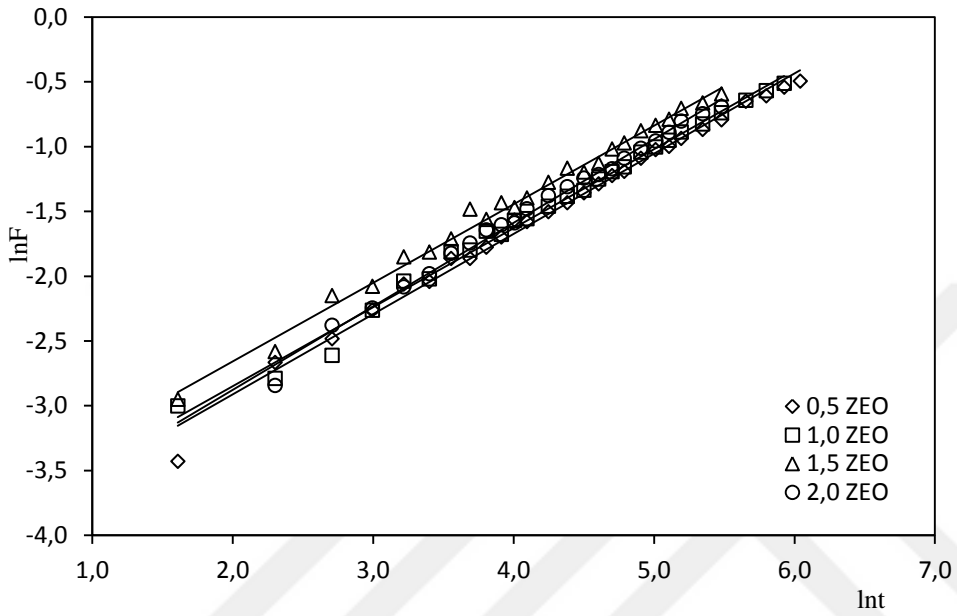
Şekil 4.110. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinde MET-su'daki $\ln F$ - $\ln I$ değişimi



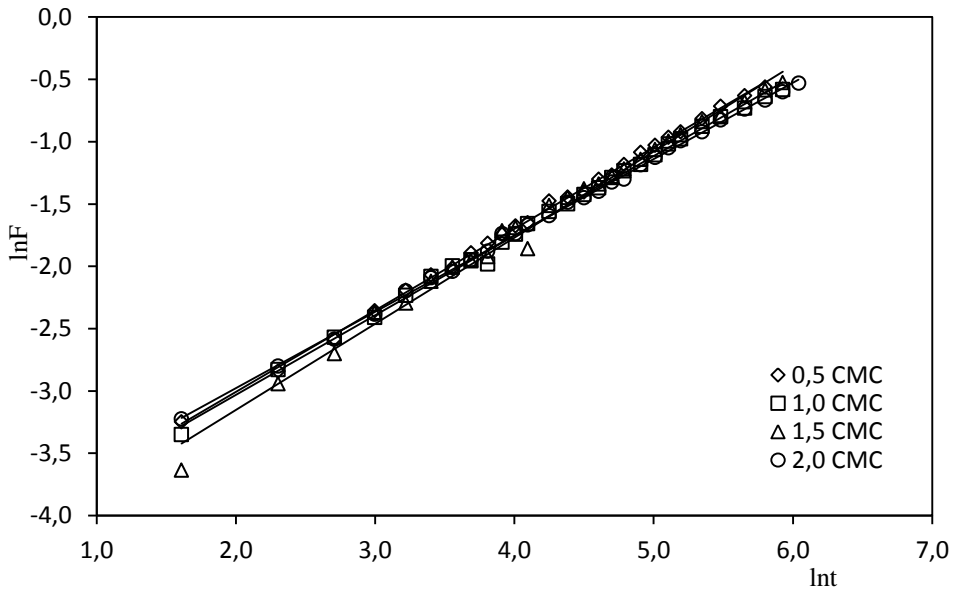
Şekil 4.111. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinde MET-su'daki $\ln F$ - $\ln I$ değişimi



Şekil 4.112. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinde MET-su'daki $\ln F$ - $\ln I$ değişimi

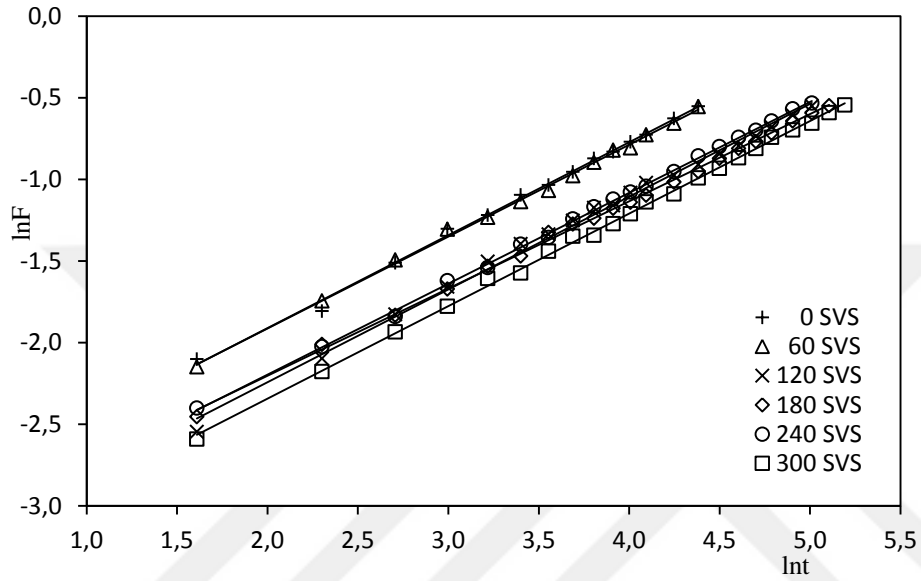


Şekil 4.113. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojelinde MET-su'daki $\ln F$ - $\ln t$ değişimi

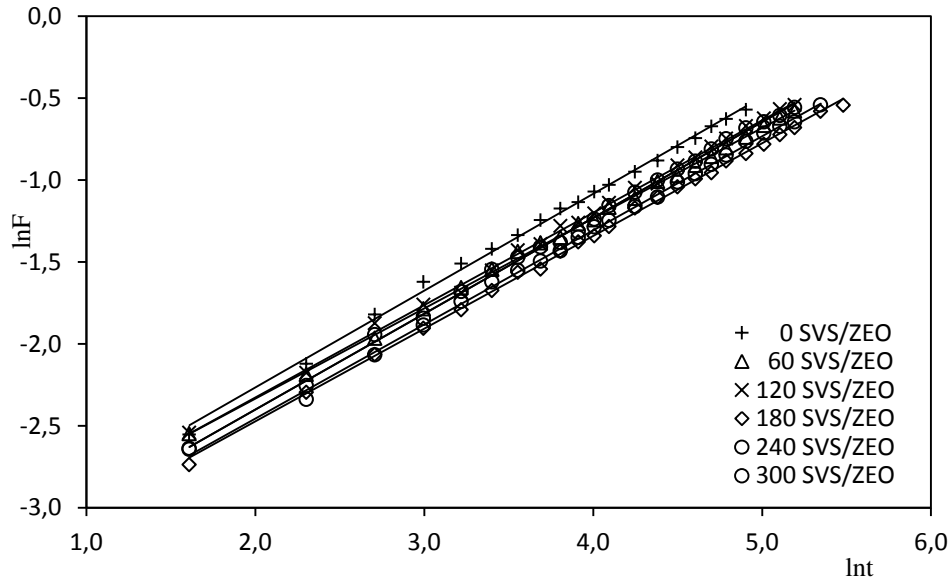


Şekil 4.114. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojelinde MET-su'daki $\ln F$ - $\ln t$ değişimi

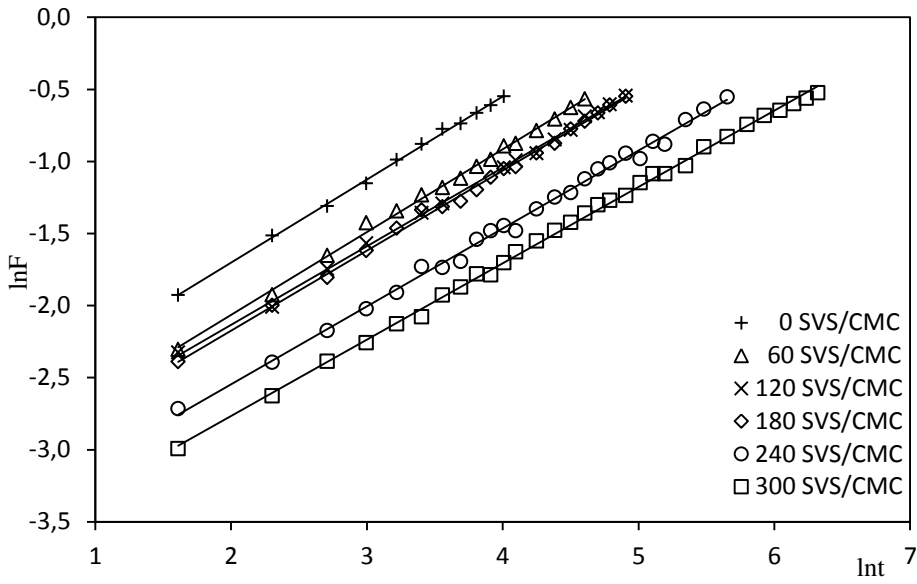
THF-Su'da Sıvının Geçirimi



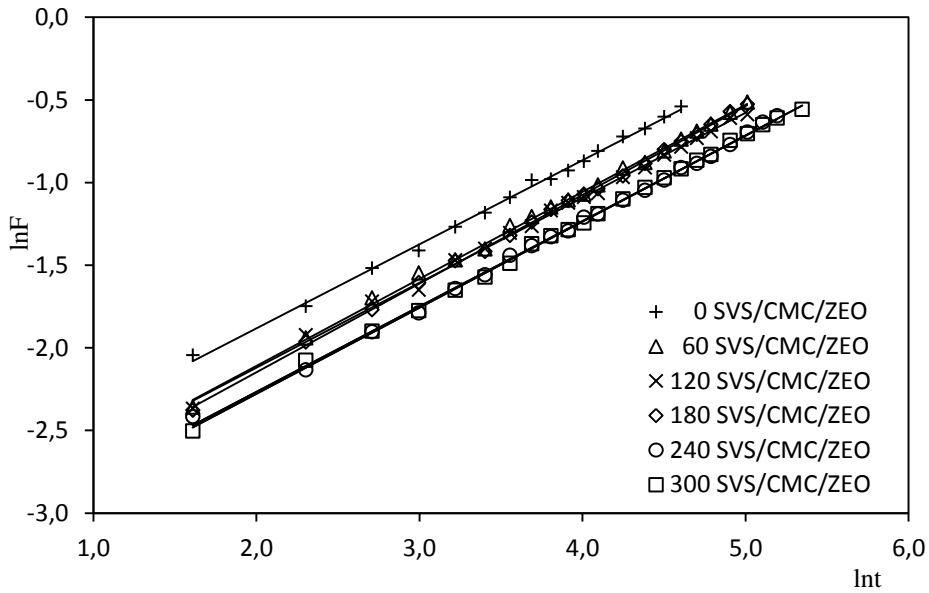
Şekil 4.115. AAm/SVS hidrojenlerinde THF-su'daki $\ln F$ - Int değişimi



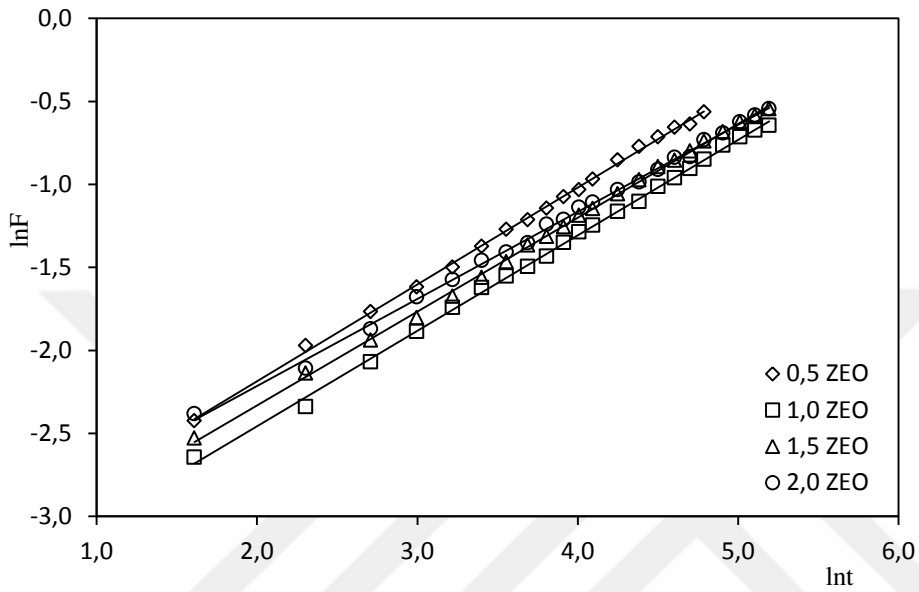
Şekil 4.116. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinde THF-su'daki $\ln F$ - Int değişimi



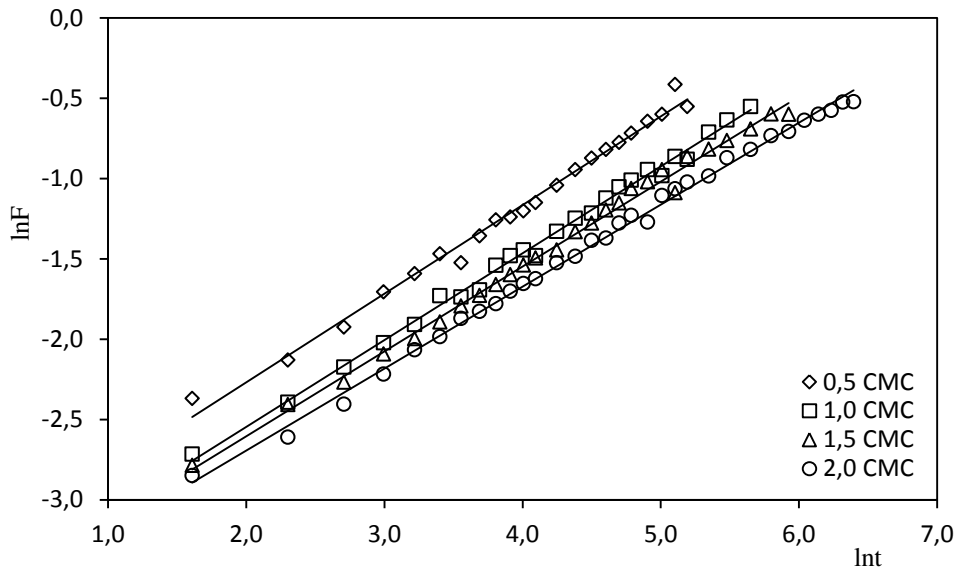
Şekil 4.117. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinde THF-su'daki $\ln F$ - $\ln I$ değişimi



Şekil 4.118. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinde THF-su'daki $\ln F$ - $\ln I$ değişimi



Şekil 4.119. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojelinde THF-su'daki $\ln F$ - $\ln I$ değişimi



Şekil 4.120. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojelinde THF-su'daki $\ln F$ - $\ln I$ değişimi

Çizelge 4.18. Hidrojel sistemlerin ASE-su'daki sıvı geçirimi ile ilgili geçirim parametreleri

SVS/ μ L	0	60	120	180	240	300
	ASE-su					
	Geçirim üsteli (n)					
AAm/SVS	0,5294	0,5874	0,5439	0,5288	0,5884	0,5802
AAm/SVS/ZEO	0,5862	0,6076	0,5804	0,6044	0,5992	0,5881
AAm/SVS/CMC	0,5505	0,5780	0,5579	0,5881	0,5698	0,5764
AAm/SVS/CMC/ZEO	0,5717	0,5511	0,5836	0,5817	0,6226	0,5517
	Geçirim sabiti ($k \times 10^3$)					
AAm/SVS	44,077	26,376	34,136	33,674	27,797	27,623
AAm/SVS/ZEO	38,685	31,694	29,566	25,175	24,996	23,323
AAm/SVS/CMC	45,125	32,575	34,721	29,697	29,528	29,558
AAm/SVS/CMC/ZEO	24,597	24,974	26,197	21,648	19,189	26,774
	Geçirim katsayısı ($D \times 10^5$)					
AAm/SVS	5,3298	5,7935	6,1340	5,1291	9,7256	9,6283
AAm/SVS/ZEO	8,8214	13,8696	9,2759	11,154	10,275	8,002
AAm/SVS/CMC	8,2753	8,5145	7,7446	9,2693	7,6342	5,7466
AAm/SVS/CMC/ZEO	4,1339	4,2054	8,4575	6,7833	7,9976	5,1401

Çizelge 4.19. Hidrojel sistemlerin MET-su'daki sıvı geçirimi ile ilgili geçirim parametreleri

SVS/ μL	0	60	120	180	240	300
	MET-su					
	Geçirim üsteli (n)					
AAm/SVS	0,5741	0,6236	0,5805	0,6264	0,6564	0,6528
AAm/SVS/ZEO	0,6360	0,6217	0,6602	0,5966	0,6095	0,6359
AAm/SVS/CMC	0,5796	0,6758	0,6461	0,6407	0,6386	0,6629
AAm/SVS/CMC/ZEO	0,6618	0,6526	0,6668	0,6676	0,6579	0,7241
	Geçirim sabiti ($k \times 10^3$)					
AAm/SVS	21,343	17,332	20,012	15,094	14,156	13,111
AAm/SVS/ZEO	22,618	21,879	15,673	20,802	17,115	15,027
AAm/SVS/CMC	33,685	13,769	14,843	13,588	13,463	11,583
AAm/SVS/CMC/ZEO	16,379	13,261	12,301	10,962	11,107	7,5222
	Geçirim katsayısı ($D \times 10^5$)					
AAm/SVS	5,1590	7,6769	5,4683	7,0442	9,9546	9,6854
AAm/SVS/ZEO	10,714	8,9493	9,3336	6,2493	5,7863	6,0960
AAm/SVS/CMC	7,4471	9,0213	9,4758	7,6930	7,6843	8,4327
AAm/SVS/CMC/ZEO	9,6273	7,1245	8,3746	8,1458	7,5921	10,946

Çizelge 4.20. Hidrojel sistemlerin THF-su'daki sıvı geçirimi ile ilgili geçirim parametreleri

SVS/ μL	0	60	120	180	240	300
	THF-su					
	Geçirim üsteli (n)					
AAm/SVS	0,5691	0,5626	0,5680	0,5342	0,5569	0,5666
AAm/SVS/ZEO	0,5909	0,5507	0,5642	0,5658	0,5746	0,5851
AAm/SVS/CMC	0,5765	0,5765	0,5447	0,5550	0,5405	0,5294
AAm/SVS/CMC/ZEO	0,5090	0,5265	0,5141	0,5372	0,5164	0,5215
	Geçirim sabiti ($k \times 10^3$)					
AAm/SVS	47,4252	47,9306	34,1088	37,9494	36,5344	30,9154
AAm/SVS/ZEO	31,8282	32,2157	31,5652	27,1847	27,1928	28,1052
AAm/SVS/CMC	57,5328	57,5328	39,8353	37,5005	26,5985	21,8162
AAm/SVS/CMC/ZEO	54,9792	42,3536	42,9250	39,8274	36,9422	36,0950
	Geçirim katsayısı ($D \times 10^5$)					
AAm/SVS	16,6164	18,0831	11,8993	10,6519	14,4771	12,5915
AAm/SVS/ZEO	11,7249	8,1015	10,5862	9,2160	11,0333	15,4968
AAm/SVS/CMC	20,1314	23,0226	10,0982	12,2316	5,9760	3,9620
AAm/SVS/CMC/ZEO	10,2906	9,8674	8,8196	11,8888	7,4865	8,2957

Çizelge 4.21. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 µL SVS içeren hidrojel sistemlerin ASE-su ve MET-su'daki sıvı geçirimi ile ilgili geçirim parametreleri

%2.0'lik ZEO-su süspansiyonu / %2.0'lik sulu CMC çözeltisi (mL)	0,25	0,50	0,75	1,00
	ASE-su			
	Geçirim üsteli (n)			
ZEO	0,5710	0,5983	0,5573	0,5763
CMC	0,6137	0,5698	0,6022	0,5666
	Geçirim sabiti ($k \times 10^3$)			
ZEO	29,4194	25,1298	31,2980	28,4843
CMC	40,4778	29,5284	30,8413	33,0015
	Geçirim katsayısı ($D \times 10^5$)			
ZEO	6,3935	10,2360	7,4511	10,4328
CMC	23,7017	7,6342	14,4341	9,9955
	MET-su			
	Geçirim üsteli (n)			
ZEO	0,6190	0,6095	0,6062	0,6453
CMC	0,6542	0,6386	0,6915	0,6125
	Geçirim sabiti ($k \times 10^3$)			
ZEO	15,7549	17,1150	20,8646	15,4754
CMC	13,3451	13,4631	10,7236	14,9820
	Geçirim katsayısı ($D \times 10^5$)			
ZEO	5,1773	5,7863	7,2804	7,9608
CMC	6,5002	5,9742	8,1026	4,7620

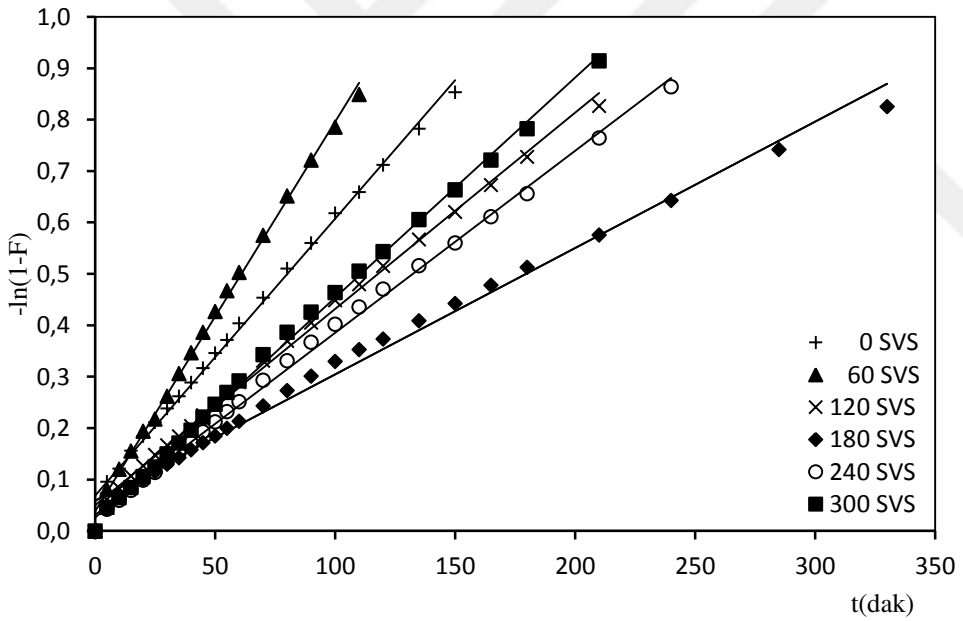
Çizelge 4.22. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 µL SVS içeren hidrojel sistemlerin THF-su'daki sıvı geçirimi ile ilgili geçirim parametreleri

%2.0'lik ZEO-su süspansiyonu / %2.0'lik sulu CMC çözeltisi (mL)	0,25	0,50	0,75	1,00
	THF-su			
	Geçirim üsteli (n)			
ZEO	0,5828	0,5754	0,5654	0,5250
CMC	0,5525	0,5405	0,5281	0,5100
	Geçirim sabiti ($k \times 10^3$)			
ZEO	35,0492	27,1249	31,3669	38,1969
CMC	34,2386	26,5985	25,7299	24,4042
	Geçirim katsayısı ($D \times 10^5$)			
ZEO	15,4656	11,1190	11,0931	9,0946
CMC	7,4955	5,9760	3,1946	3,5492

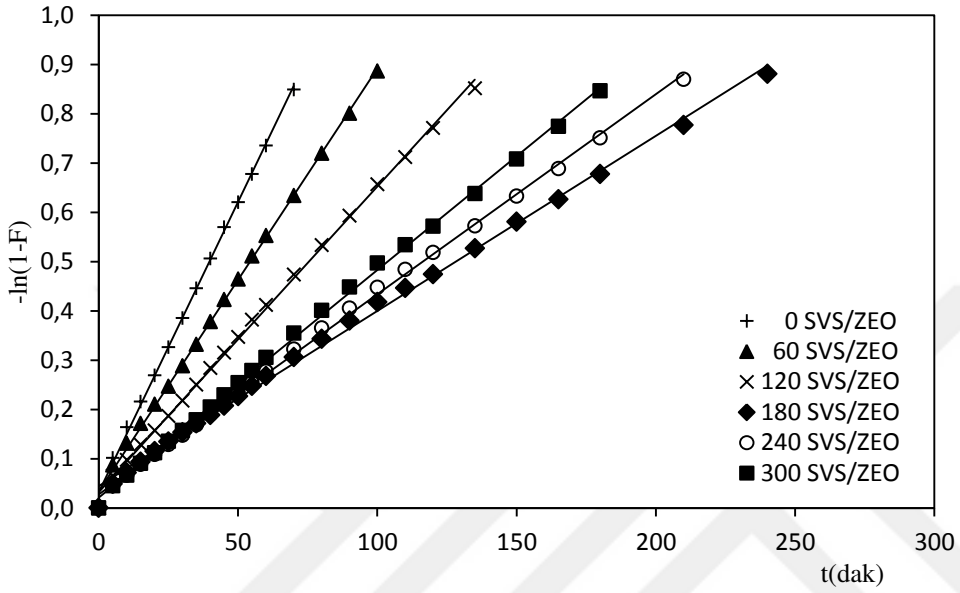
Çizelge 4.18-4.20 incelendiğinde, geçirim üsteli (n) değerleri, semi-IPN ve biyohibrit hidrojeller için 0,51-0,72 aralığında bulunmuştur. Bu değerler $0,5 < n < 1$ aralığındadır. Bu durumda, hidrojellerin geçirim türü; Fick tipi olmayan (anormal) geçirim sınıfına girmektedir. Yani hidrojellerin şişmesi sırasında geçirimin ve durulmanın aynı anda olduğu söylenebilir. Çizelge 4.21-4.22 incelendiğinde, hazırlanan çapraz bağlı semi-IPN ve biyohibrit hidrojellerin (n) değerleri 0,51-0,69 arasında bulunmuştur.

4.3.6. Hidrojel sistemlerde Su/Sıvı Soğurum Hız Katsayısı

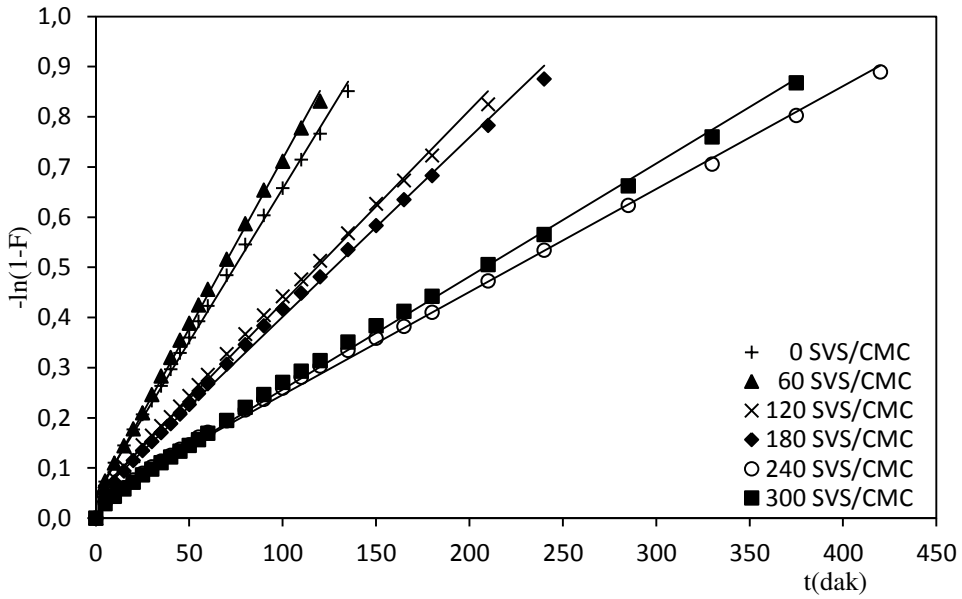
Çapraz bağlı semi-IPN ve biyohibrit hidrojelere yada gözenekli katılara suyun ya da bir başka sıvının geçirimini karakterize eden bir diğer parametre de su/sıvı soğurum hız katsayısı (k_{ss})'dır. Eşitlik 7'den elde edilen (k_{ss}) değerleri değerlendirilir ve su soğurumunun temelleri hakkında bilgi edinilir. $[-\ln(1-F)-t]$ grafiklerinin eğiminden hesaplanan (k_{ss}) değerleri yorumlanarak su/sıvı soğurumunun temelleri araştırılabilir. Bu çalışmada hazırlanan hidrojel sistemler için düzenlenen $[-\ln(1-F)-t]$ grafikleri aşağıda sırası ile sunulmuştur.



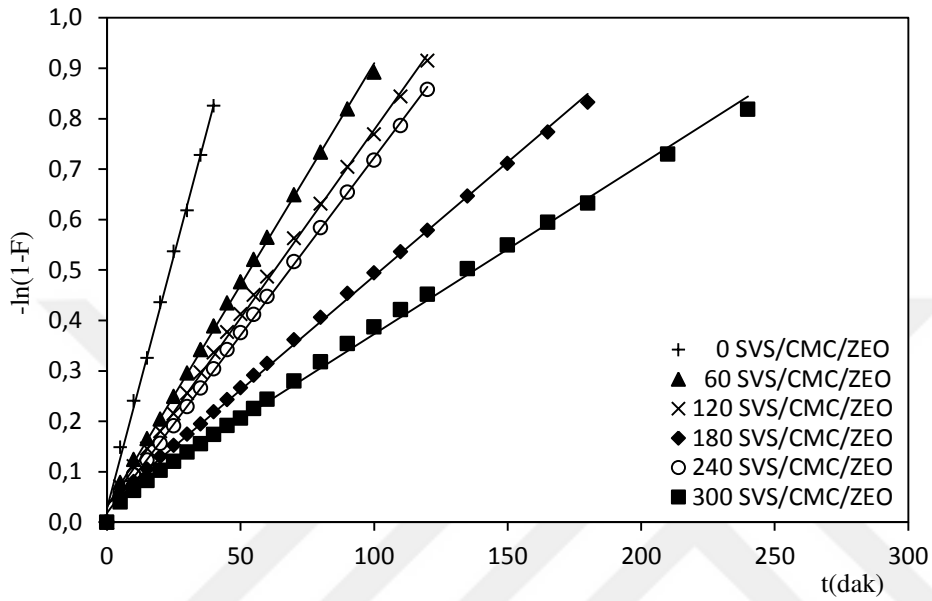
Şekil 4.121. AAm/SVS hidrojellerinin $-\ln(1-F)-t$ değişimi



Şekil 4.122. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin $-\ln(1-F)$ - t değişimi



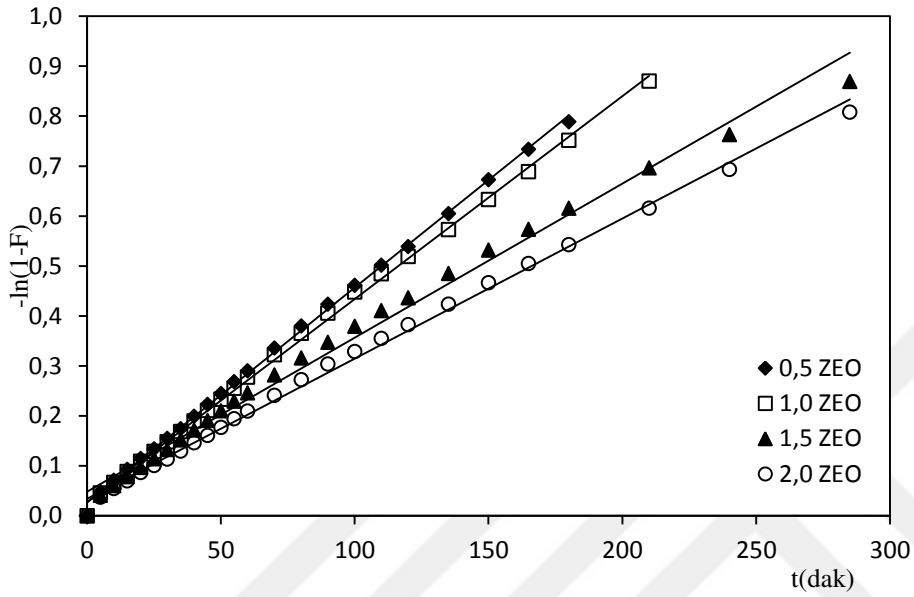
Şekil 4.123. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinin $-\ln(1-F)$ - t değişimi



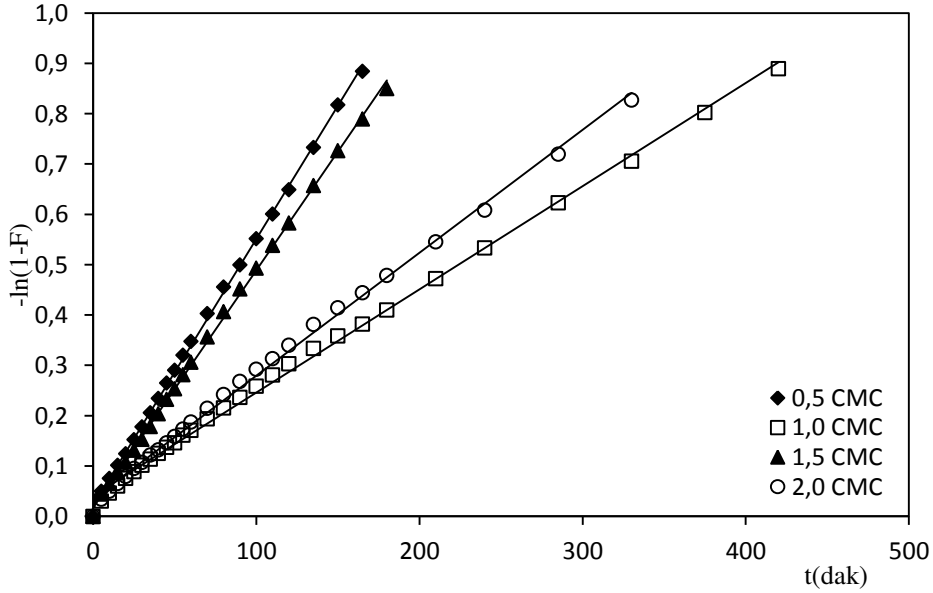
Şekil 4.124. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinin $-\ln(1-F)$ -t değişimi

Çizelge 4.23. Hidrojel sistemde su/sıvı soğurum hız katsayısı değerleri

SVS/ μ L	0	60	120	180	240	300
	Su/sıvı soğurum hız katsayısı ($k_{ss} \times 10^3$)					
AAm/SVS	5,4	7,6	3,8	2,5	3,5	4,3
AAm/SVS/ZEO	11,8	8,6	6,2	3,6	4,1	4,6
AAm/SVS/CMC	6,1	6,8	3,8	3,6	2,1	2,3
AAm/SVS/CMC/ZEO	20	8,8	7,5	4,5	7,0	3,4



Şekil 4.125. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinin $-\ln(1-F)$ - t değişimi



Şekil 4.126. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinin $-\ln(1-F)$ - t değişimi

Çizelge 4.24. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 µL SVS içeren hidrojel sistemlerde su/sıvı soğurum hız katsayısı değerleri

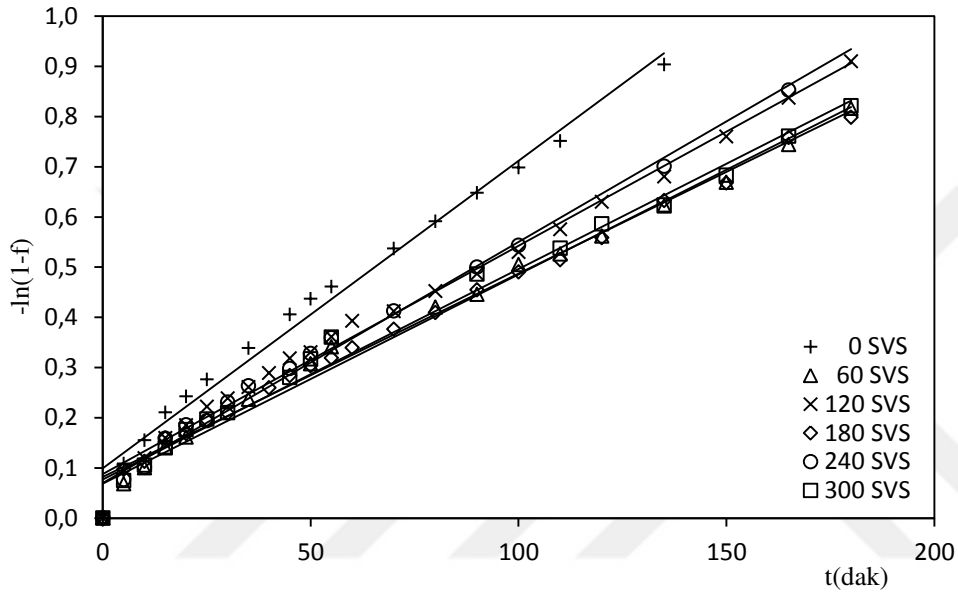
%2'lik ZEO-su süspansiyonu / %2'lik sulu CMC çözeltisi (mL)	0,25	0,50	0,75	1,00
	Su/sıvı soğurum hız katsayısı ($k_{ss} \times 10^3$)			
ZEO	4,3	4,1	3,1	2,8
CMC	5,3	2,1	4,7	2,4

Çizelge 4.23 incelendiğinde, (k_{ss}) değerleri, genellikle SVS eklenmesi ile azalmıştır. Su soğurumunun düşük SVS değerlerinde artış gösterdiği söylenebilir. Aynı şekilde ZEO ve CMC 'un ayrı ayrı eklenmesi ile de (k_{ss}) değerlerinde düşüş görülmektedir. CMC ve ZEO eklenmesiyle düşüş oranının, SVS eklenmesiyle oluşan düşüş oranından fazla olduğu görülmektedir. Bu nedenle, AAm/SVS hidrojellerinin gözeneklerine su geçiriminin, AAm/SVS/ZEO ve AAm/SVS/CMC hidrojellerine göre daha kararlı bir şekilde ilerleyebileceği ya da daha kararlı davranabileceği düşünülebilir. Ayrıca ZEO ve CMC birlikte eklenmesiyle (k_{ss}) değerlerinde artış görülmektedir. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerinin gözeneklerine su geçiriminin daha kararlı bir şekilde ilerleyebileceği ya da kararlı davranabileceği ileri sürülebilir.

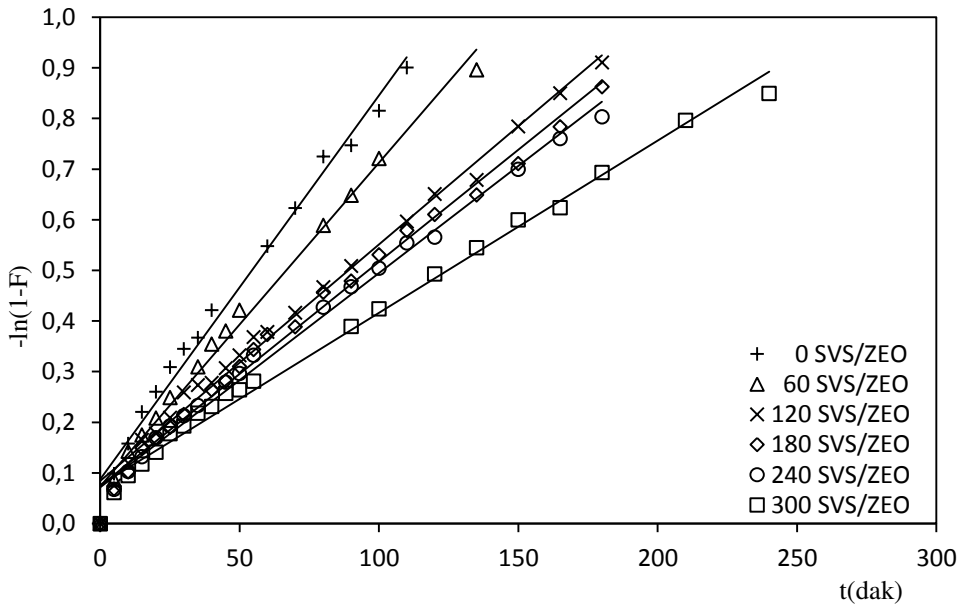
Çizelge 4.24 incelendiğinde, farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip 240 µL SVS içeren semi-IPN ve biyohibrit hidrojellerin (k_{ss}) değerleri incelendiğinde ZEO ve CMC derişiminin artmasıyla genellikle düşüş gösterdiği söylenebilir.

4.3.6.1. Farklı Su-Çözücü Karışımlarında Su/Sıvı Soğurum Hız Katsayısı

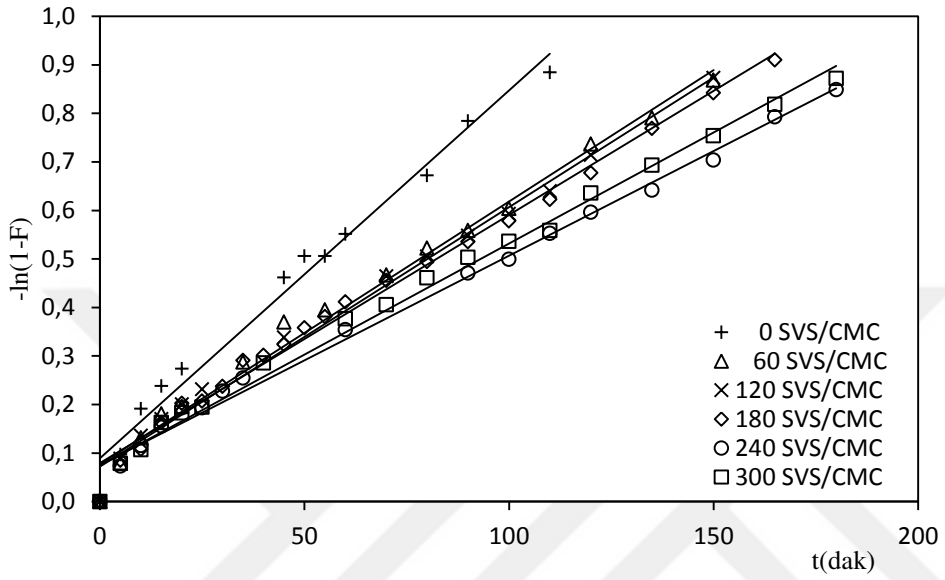
ASE-Su'da Su/Sıvı Soğurum Hız Katsayısı



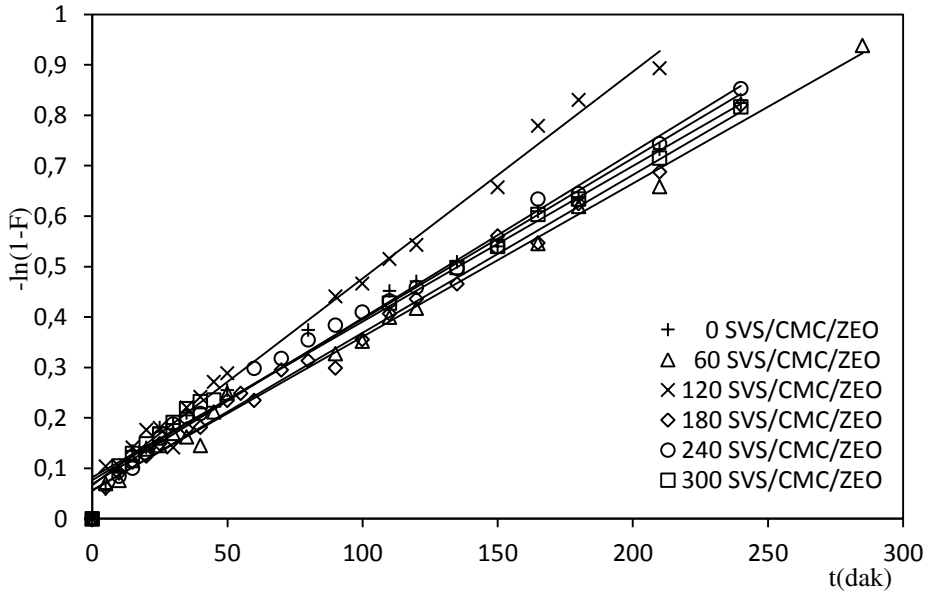
Şekil 4.127. AAm/SVS hidrojenlerinde ASE-su'daki $-\ln(1-F)$ - t değişimi



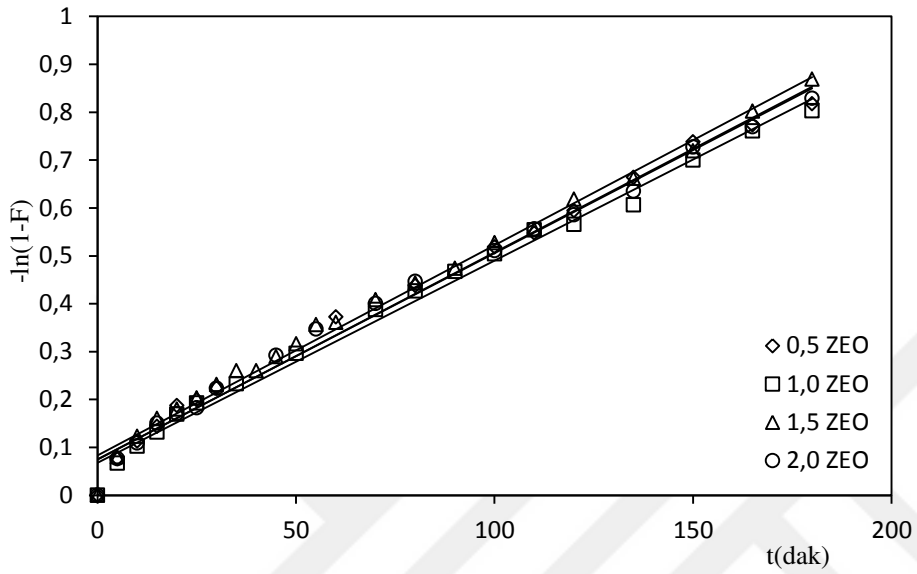
Şekil 4.128. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinde ASE-su'daki $-\ln(1-F)$ - t değişimi



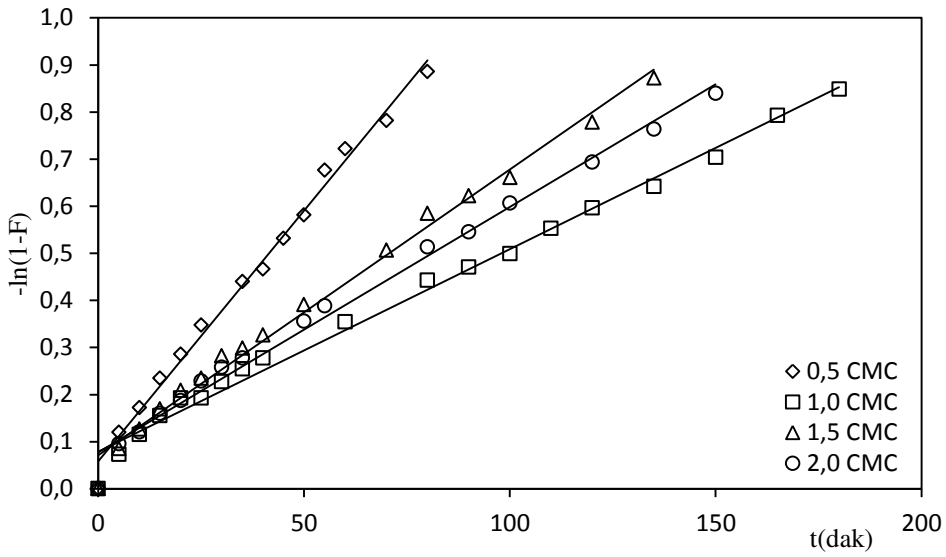
Şekil 4.129. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinde ASE-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi



Şekil 4.130. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinde ASE-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi

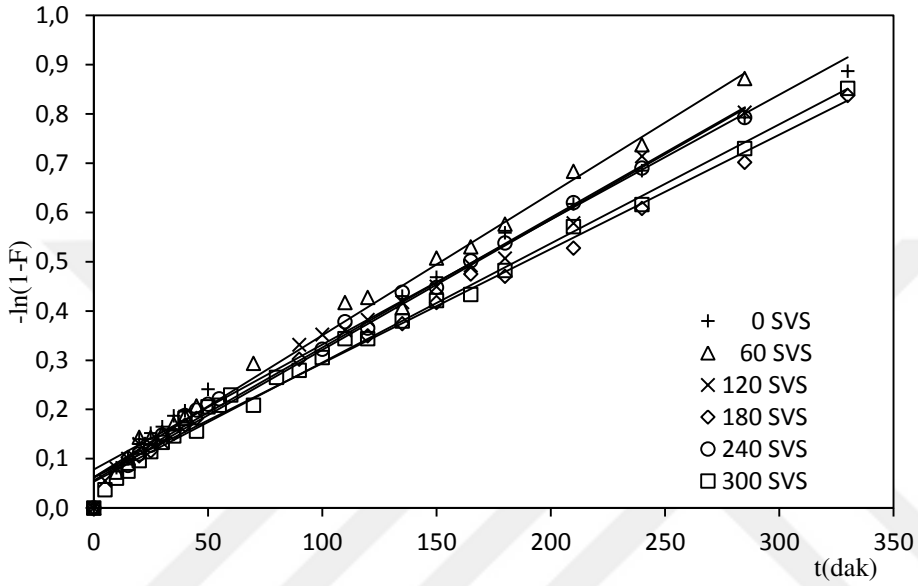


Şekil 4.131. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinde ASE-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi

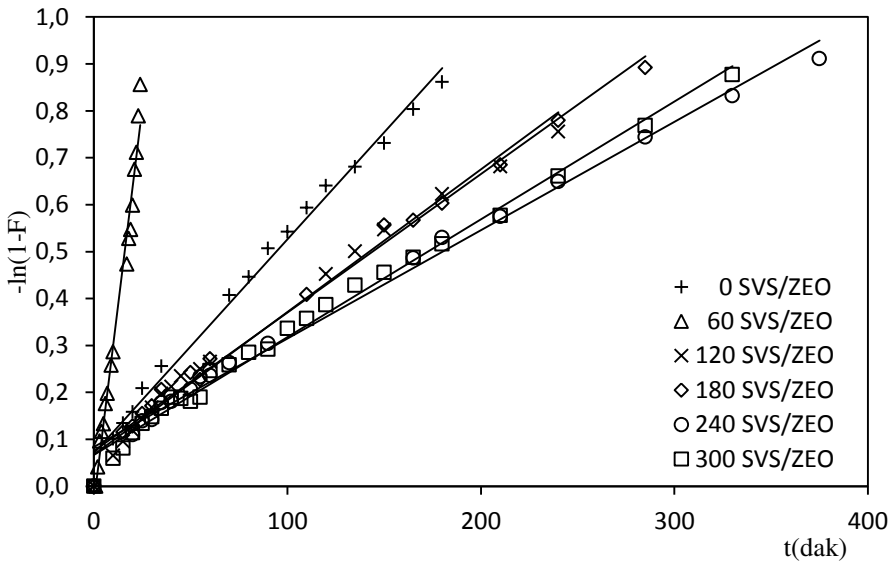


Şekil 4.132. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinde ASE-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi

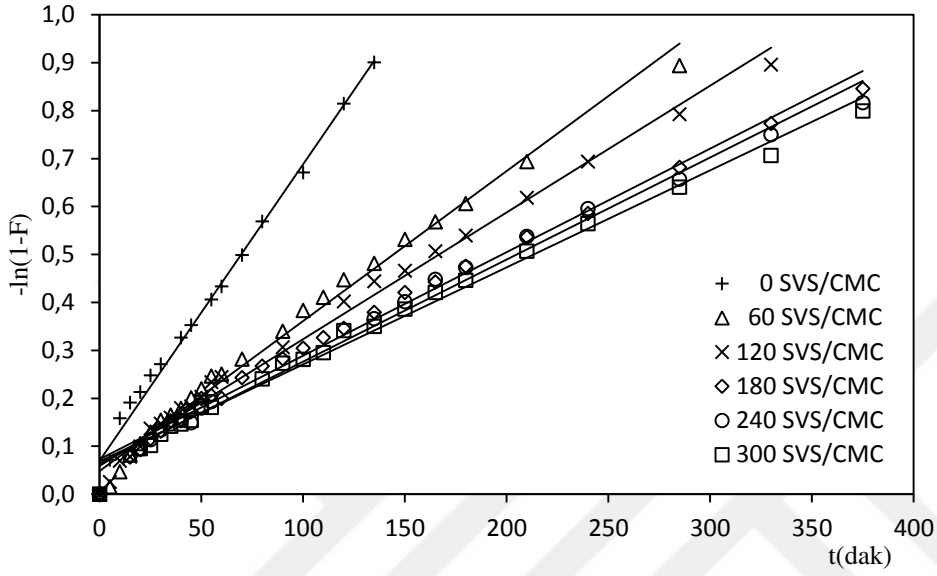
MET-Su'da Su/Sıvı Soğurum Hız Katsayısı



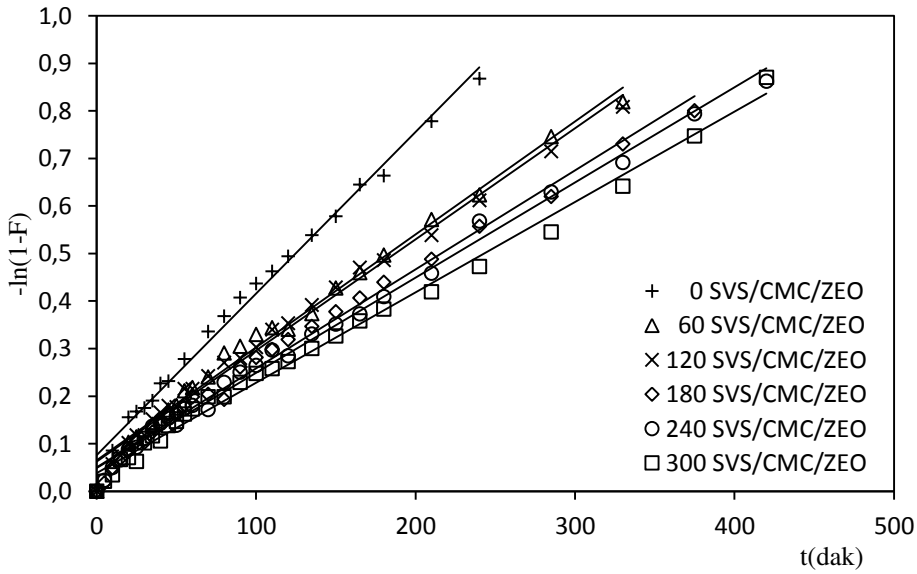
Şekil 4.133. AAm/SVS hidrojenlerinde MET-su'daki $-\ln(1-F)$ - t değişimi



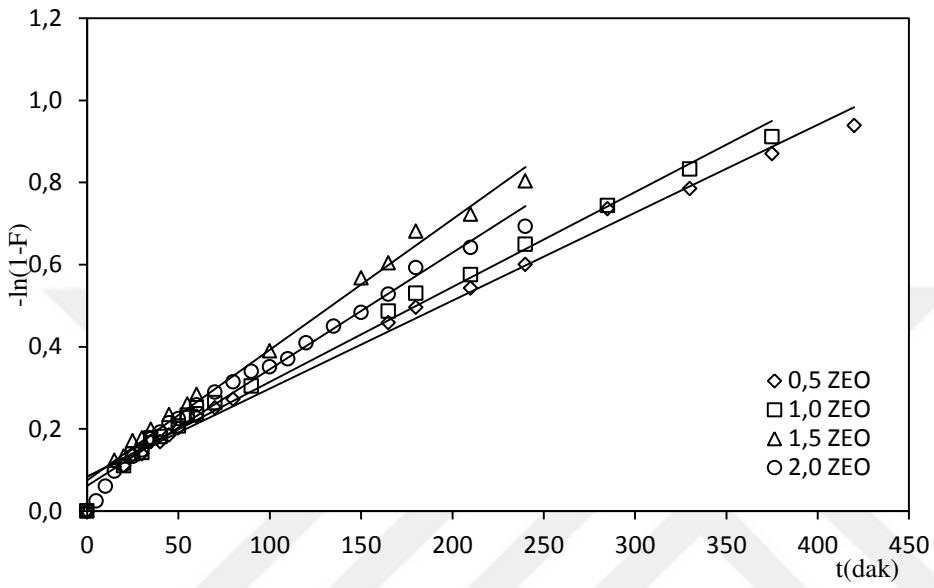
Şekil 4.134. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinde MET-su'daki $-\ln(1-F)$ - t değişimi



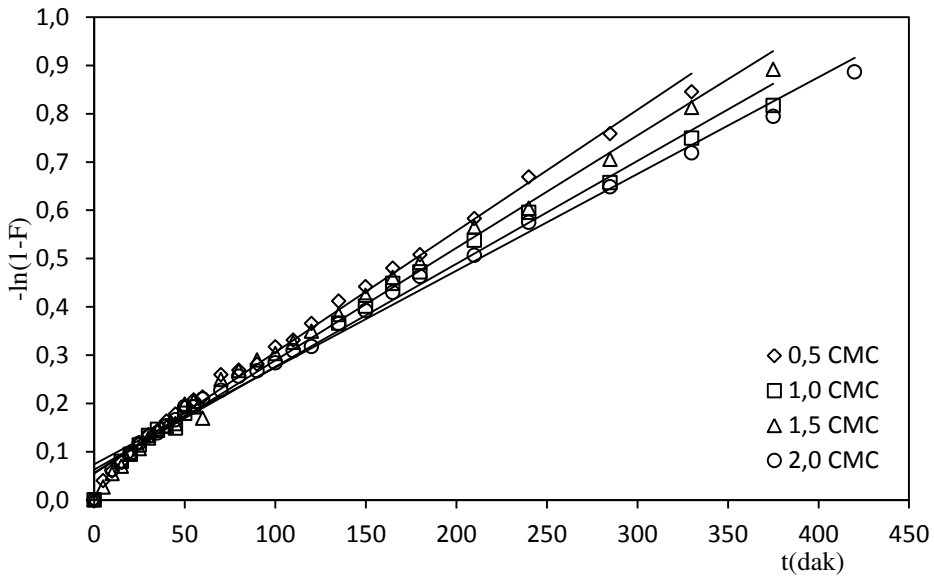
Şekil 4.135. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinde MET-su'daki $-\ln(1-F)$ - t değişimi



Şekil 4.136. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinde MET-su'daki $-\ln(1-F)$ - t değişimi

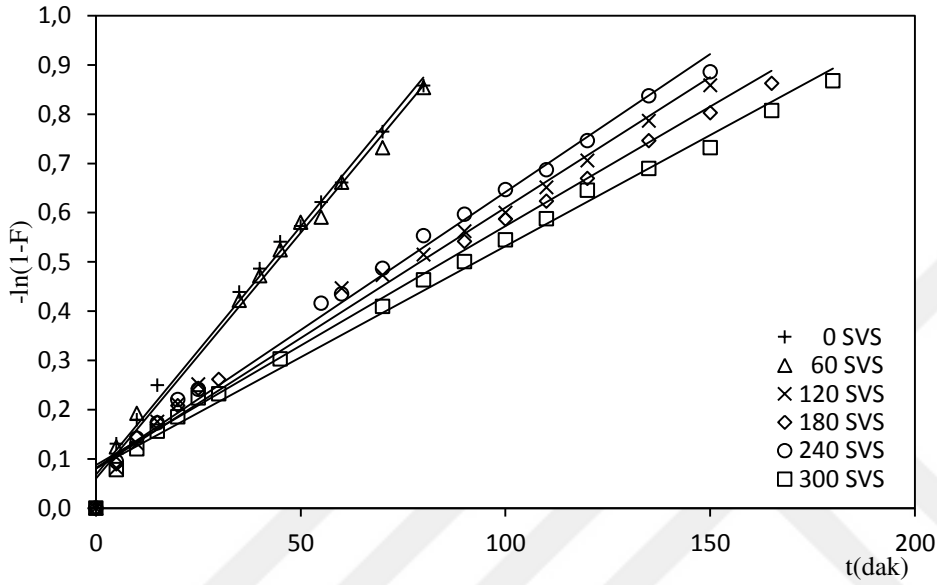


Şekil 4.137. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinde MET-su'daki $-\ln(1-F)$ - t değişimi

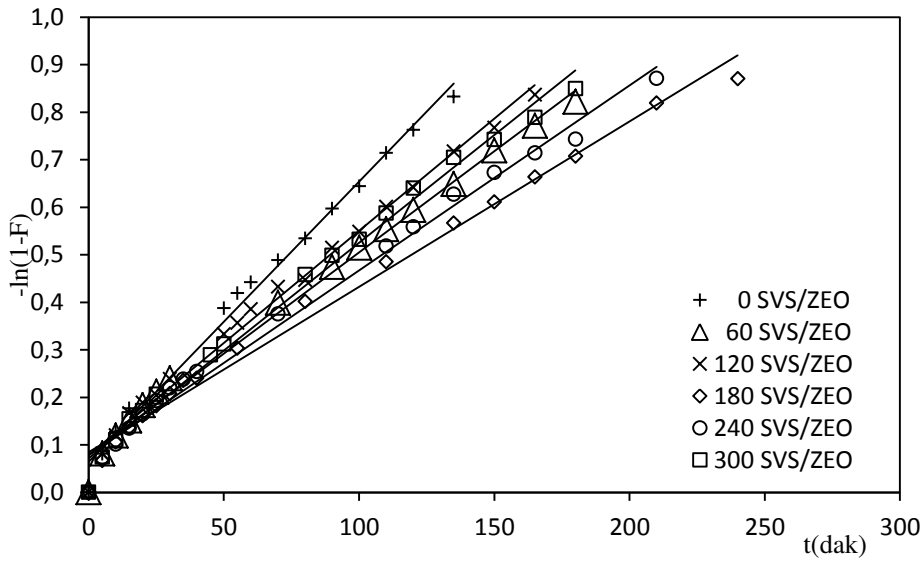


Şekil 4.138. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinde MET-su'daki $-\ln(1-F)$ - t değişimi

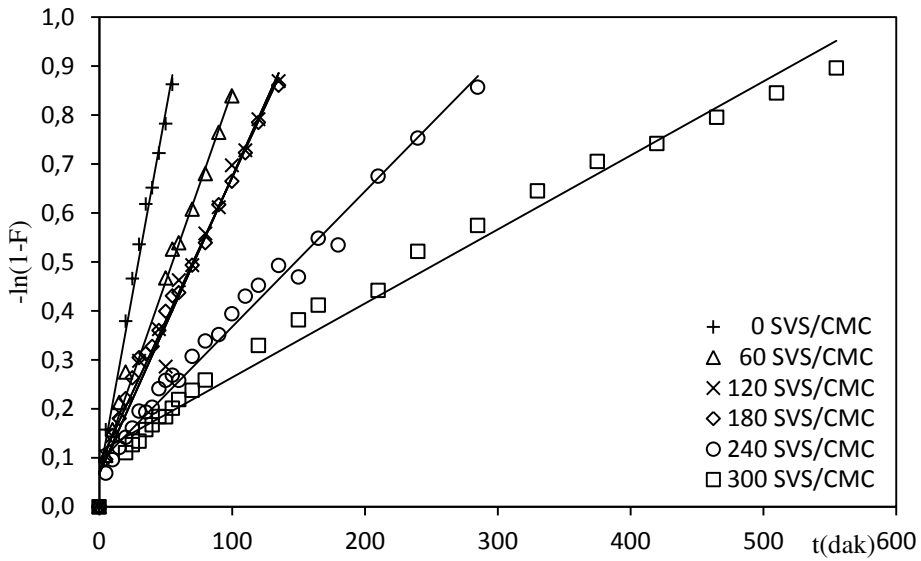
THF-Su'da Su/Sıvı Soğurum Hız Katsayısı



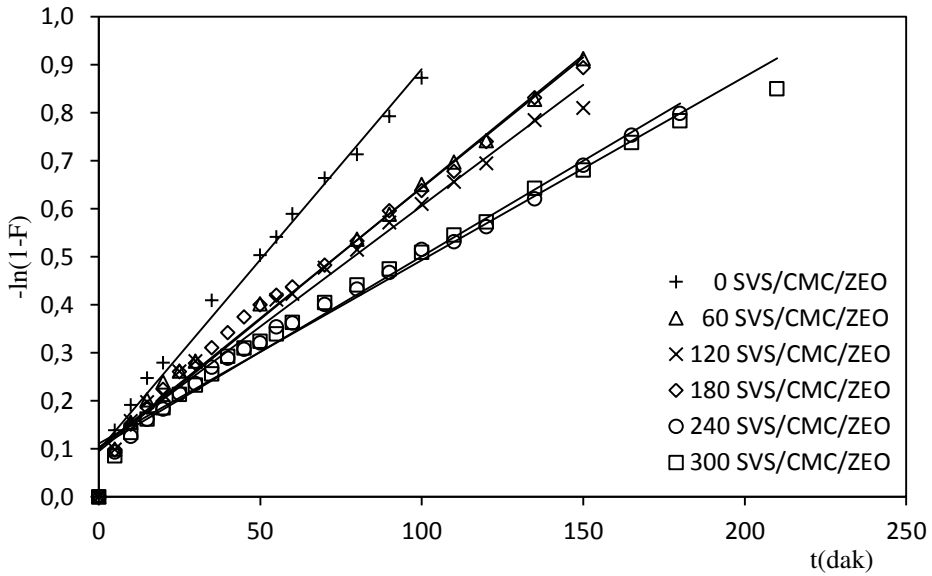
Şekil 4.139. AAm/SVS hidrojenlerinde THF-su'daki $-\ln(1-F)$ - t değişimi



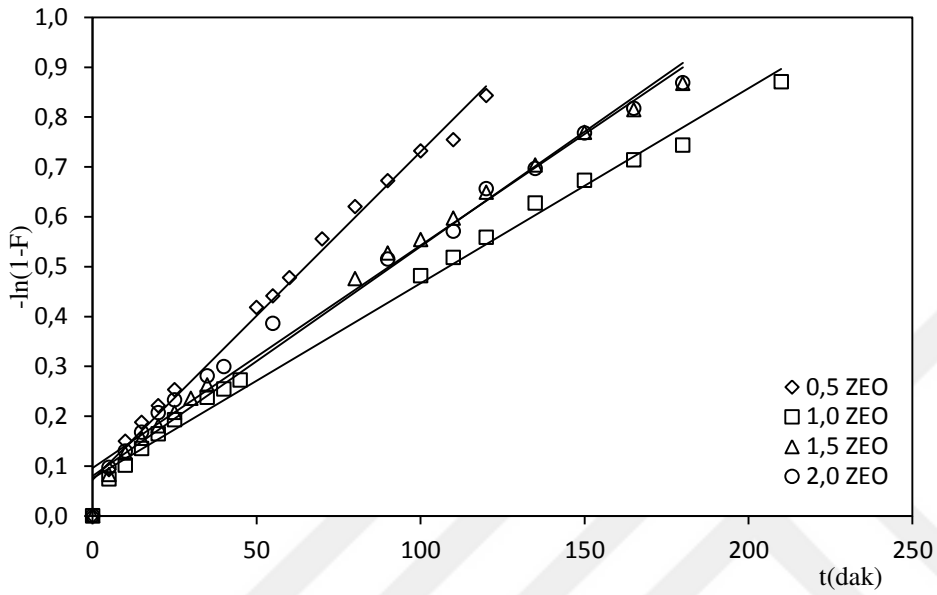
Şekil 4.140. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinde THF-su'daki $-\ln(1-F)$ - t değişimi



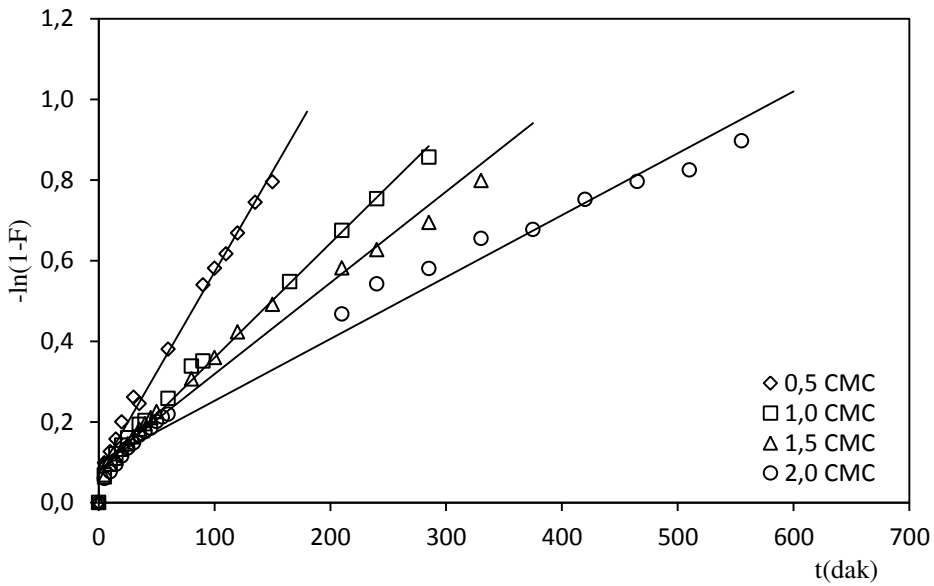
Şekil 4.141. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojelinde THF-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi



Şekil 4.142. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojelinde THF-su'daki $-\ln(1-F)$ -t değişimi



Şekil 4.143. Farklı ZEO içeriğine sahip AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinde THF-su'daki $-\ln(1-F)$ - t değişimi



Şekil 4.144. Farklı CMC içeriğine sahip AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojenlerinde THF-su'daki $-\ln(1-F)$ - t değişimi

Çizelge 4.25. Hidrojel sistemlerin ASE-su; MET-su ve THF-su'daki su/sıvı soğurum hız katsayısı değerleri

SVS/ μ L	0	60	120	180	240	300
	Su/sıvı soğurum hız katsayısı ($k_{ss} \times 10^3$)					
	ASE-su					
AAm/SVS	6,1	4,2	4,5	4,1	4,8	4,2
AAm/SVS/ZEO	7,6	6,4	4,7	4,4	4,2	3,4
AAM/SVS/CMC	7,6	5,4	5,3	5,1	4,3	4,6
AAm/SVS/CMC/ZEO	3,2	3,0	4,1	3,1	3,3	3,1
	MET-su					
AAm/SVS	2,5	2,9	2,7	2,3	2,6	2,4
AAm/SVS/ZEO	4,6	33,5	3,0	3,0	2,3	2,5
AAM/SVS/CMC	6,2	3,1	2,6	2,2	2,1	2,0
AAm/SVS/CMC/ZEO	3,4	2,4	2,3	2,1	2,0	1,9
	THF-su					
AAm/SVS	10,1	10,0	5,3	4,9	5,6	4,5
AAm/SVS/ZEO	5,9	4,3	4,7	3,5	3,9	4,5
AAM/SVS/CMC	14,9	7,8	6,1	5,8	2,8	1,5
AAm/SVS/CMC/ZEO	7,9	5,5	5,0	5,4	4,0	3,8

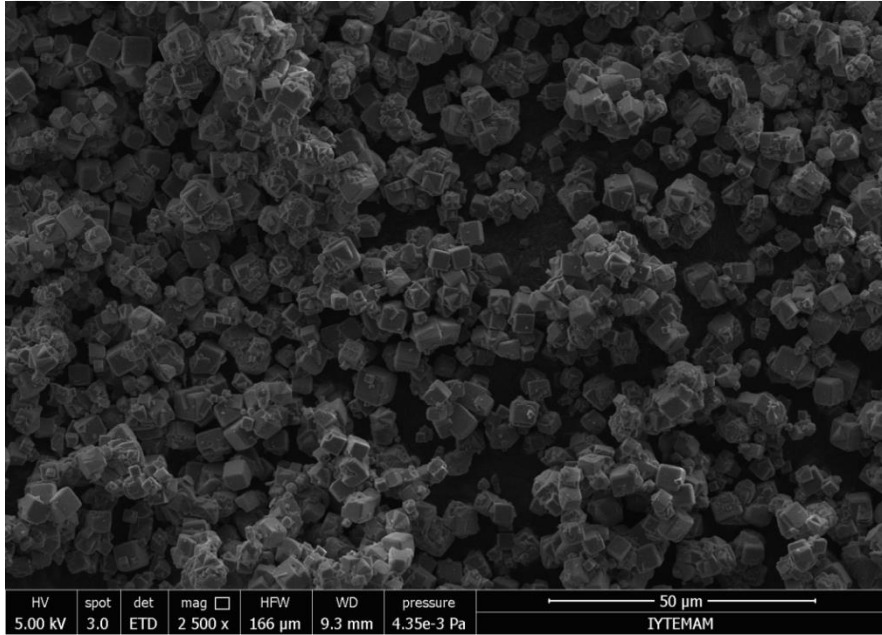
Çizelge. 4.26. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 µL SVS içeren hidrojel sistemlerde su/sıvı soğurum hız katsayısı değerleri

%2'lik ZEO-su süspansiyonu / %2'lik sulu CMC çözeltisi (mL)	0,25	0,50	0,75	1,00
	Su/sıvı soğurum hız katsayısı ($k_{ss} \times 10^3$)			
	ASE-su			
ZEO	4,3	4,2	4,4	4,3
CMC	10,6	4,3	6,1	5,2
	MET-su			
ZEO	2,1	2,3	3,2	2,8
CMC	2,5	2,1	2,3	2,0
	THF-su			
ZEO	6,6	3,9	4,6	4,5
CMC	5,0	2,8	2,3	1,5

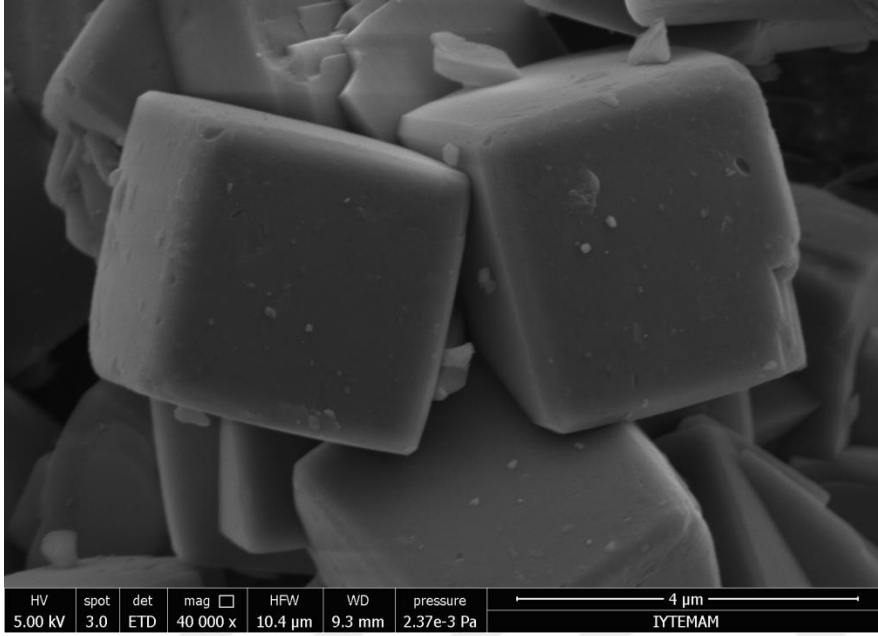
Çizelge 4.25 ve 4.26 incelendiğinde (k_{ss}) değerlerinin, genellikle SVS eklenmesiyle ve aynı şekilde ZEO ve CMC eklenmesiyle de azaldığı görülmektedir.

4.4. Sem Çalışmaları

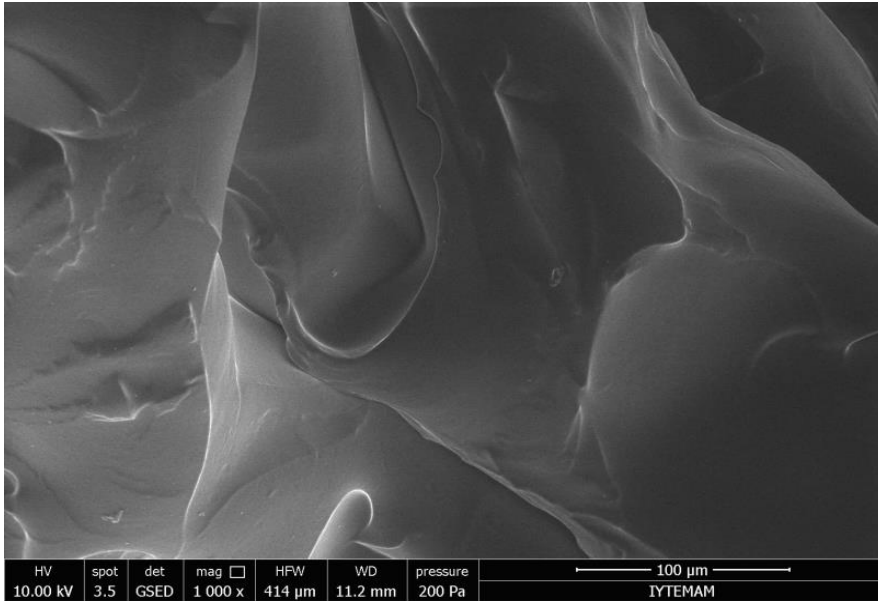
Hazırlanan çapraz bağlı semi-IPN ve biyohibrit hidrojellerin yüzey gözenekliliği hakkında bilgi edinebilmek çalışmada elde edilen örneklerin karakterizasyonlarını daha iyi yapabilmek adına, örneklerin SEM mikrografları da alınmıştır. SEM mikrograflarının elde edilmesinde şişmiş haldeki polimerik örnekler kullanılmıştır. Farklı büyütme ölçekleri kullanılarak alınan görüntüler sırası ile sunulmuştur.



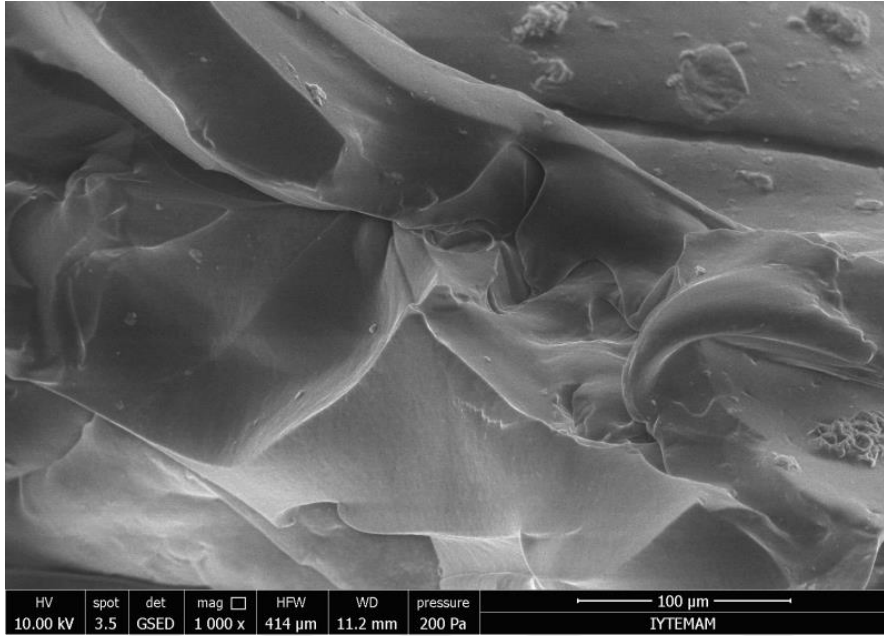
Şekil 4.145. Çalışmada kullanılan ZEO'nin SEM görüntüsü (x2500)



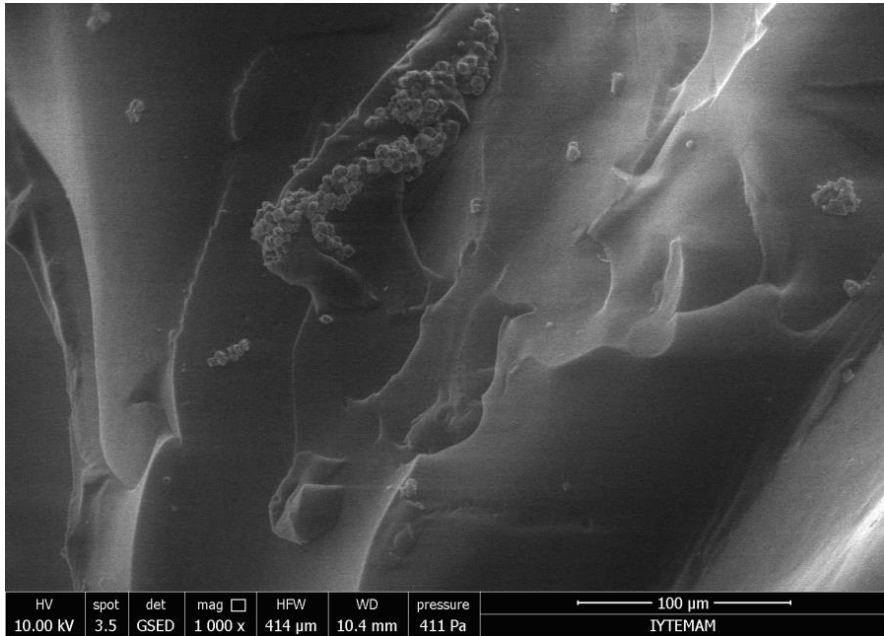
Şekil 4.146. Çalışmada kullanılan ZEO'nin SEM görüntüsü (x40000)



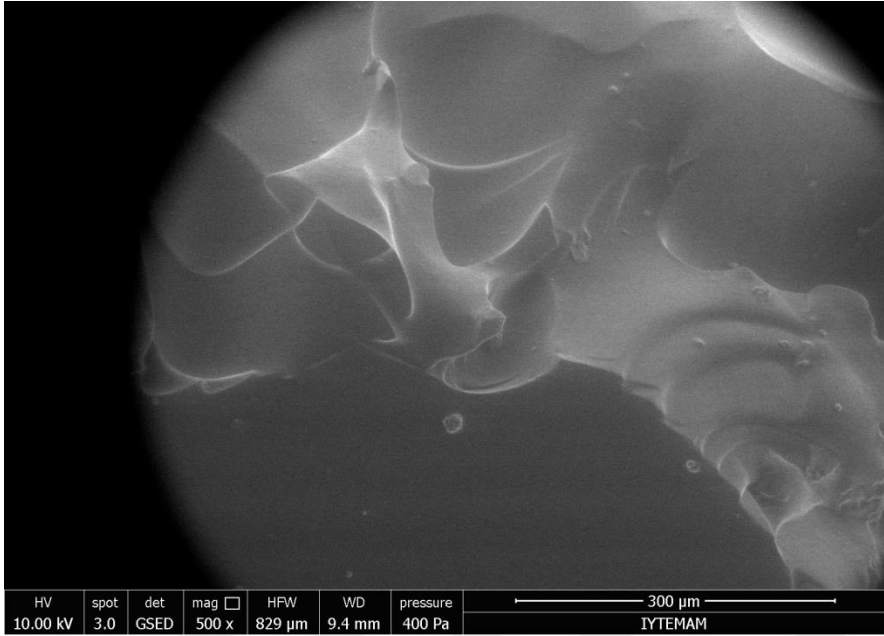
Şekil 4.147. AAm hidrojelinin SEM görüntüsü



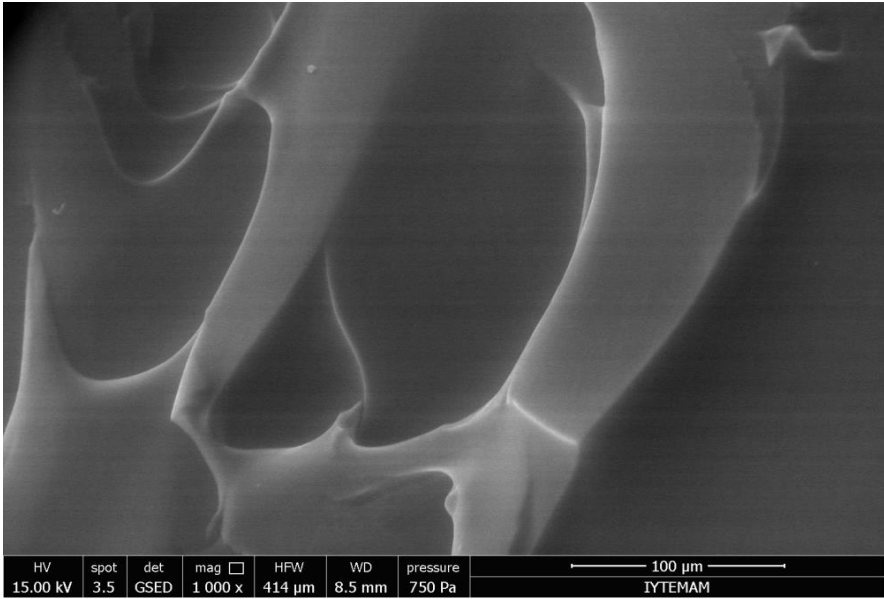
Şekil 4.148. AAm/SVS hidrojelinin SEM görüntüsü (240 µL SVS)



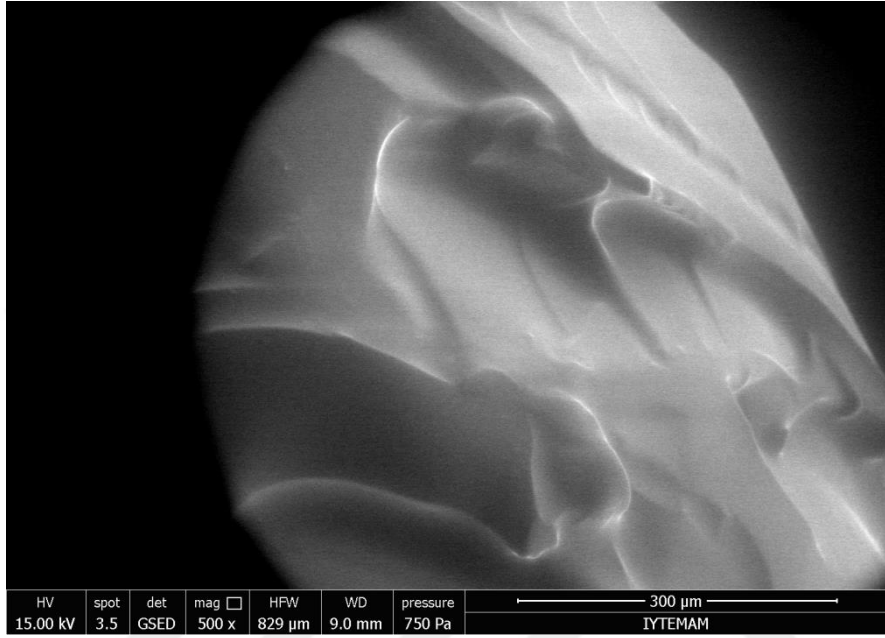
Şekil 4.149. AAm/ZEO biyohibrit hidrojelinin SEM görüntüsü



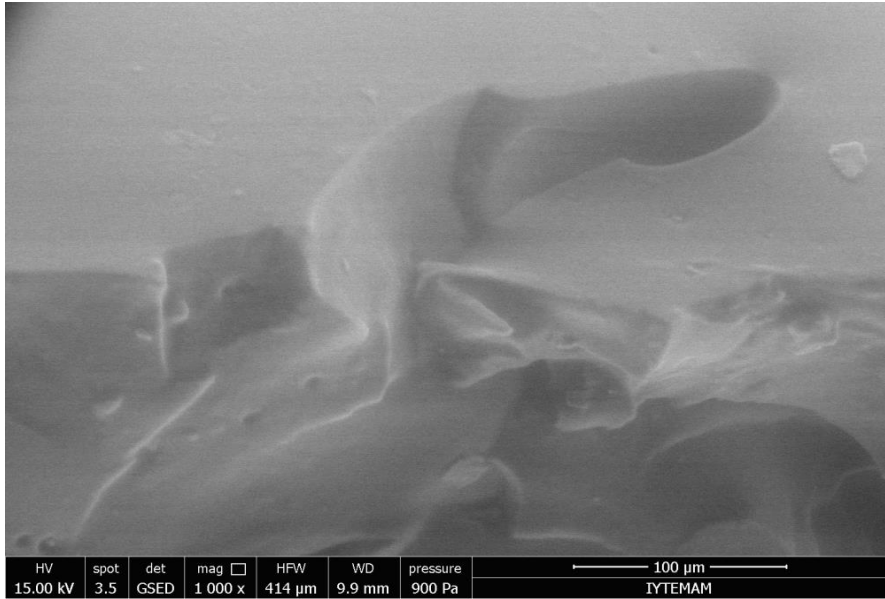
Şekil 4.150. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojelinin SEM görüntüsü (240 µL SVS)



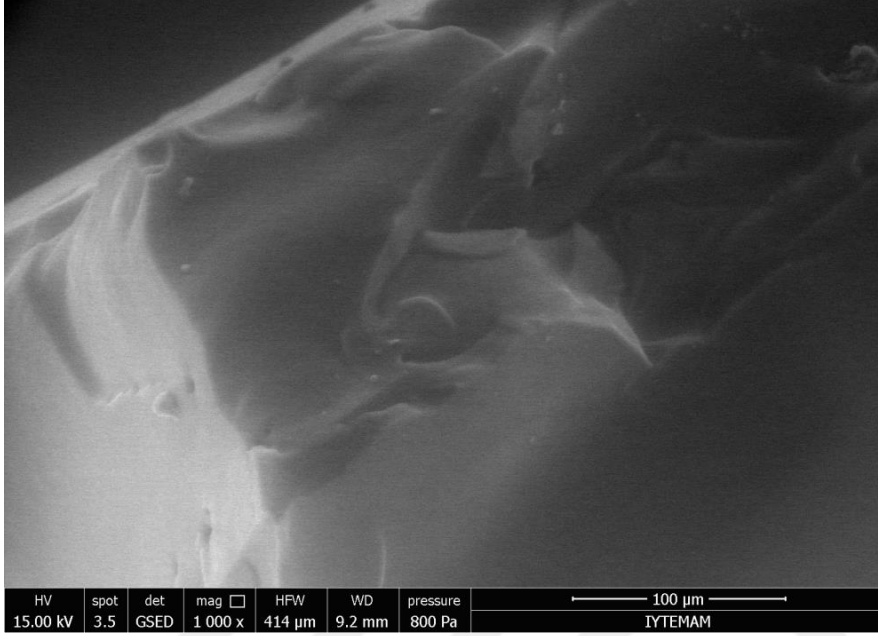
Şekil 4.151. AAm/CMC semi-IPN hidrojelinin SEM görüntüsü



Şekil 4.152. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojelinin SEM görüntüsü (240 µL SVS)



Şekil 4.153. AAm/CMC/ZEO biyohibrit hidrojelinin SEM görüntüsü



Şekil 4.154. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojelinin SEM görüntüsü (240 µL SVS)

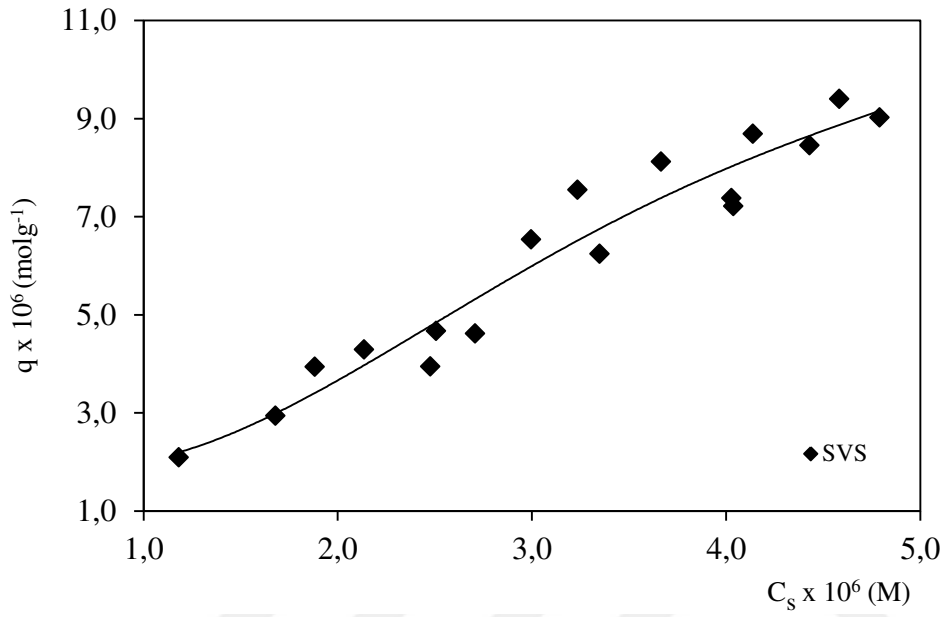
SEM mikrografları, çapraz bağlanmalar sonucunda oluşan gözenekler hakkında görsel fikir vermektedir. Özellikle ZEO'ya ait olan görünümelerde, endüstriyel amaçlarla satışa sunulmuş olan böyle bir zeolit ürünün daha homojen bir biçimde gözlemlendiği görülmektedir. Bu çalışmada üretilen ve ZEO içeren örneklerde polimerik yapıya giren ZEO parçacıkların, SEM mikrograflarda yer aldığı görülmektedir. Yine bu çalışmada elde edilen polimerik örnekler üzerindeki çapraz bağlanmanın ortaya koyduğu “oyuk” ve “gözenek” türü fiziksel oluşumlar, çok net bir biçimde olmasa da ilgili SEM mikrograflardan takip edilebilmektedir.

4.5. Yüzeye Soğurum

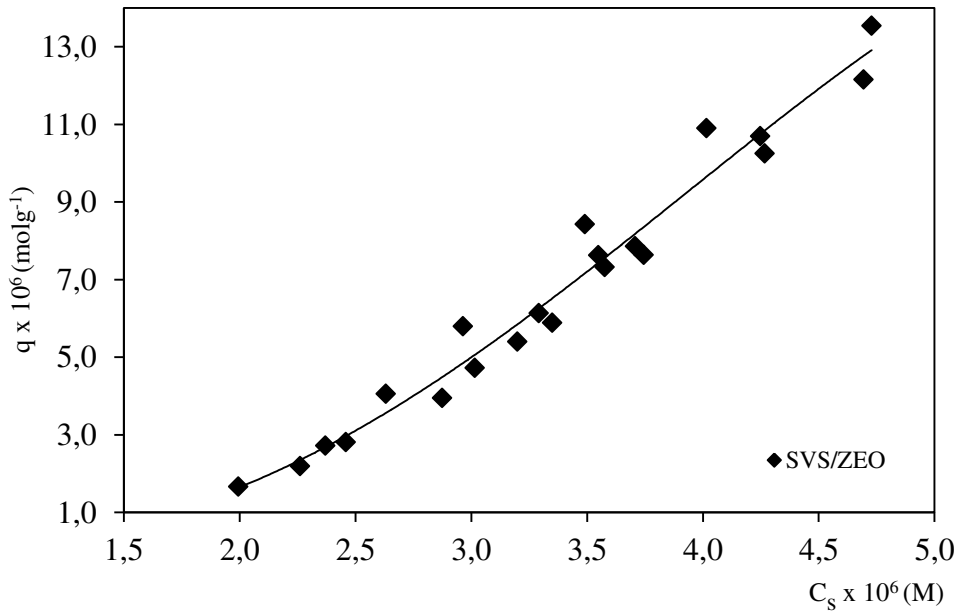
SVS yardımcı monomeri kullanılarak sentezlenen anyonik özellikteki hidrojellerin, biyohibrit hidrojellerin ve semi-IPN hidrojellerin yüzeye soğurum özelliklerinin araştırılabilmesi için, sulu ortamlarda katyonik özellik gösteren bir boyar maddenin model molekül olarak kullanılması amaçlanmıştır. Kimyasal yapısı Çizelge 3.2’de sunulan metil viyole (MV), katyonik özellikte bir boyarmaddedir ve anyonik özellikteki çapraz bağlı polimerler ile kuvvetli etkileşim göstermesi beklenmiştir.

Boya uzaklaştırma çalışmalarında temel olarak araştırılması gereken önemli iki nokta vardır. Bunlardan ilki, soğuruma çözelti derişiminin etkisi, diğeri ise sabit çözelti derişiminde polimerik örneklerde bulunan bileşenlerin değişik içeriklerinin boya uzaklaştırmaya etkisidir.

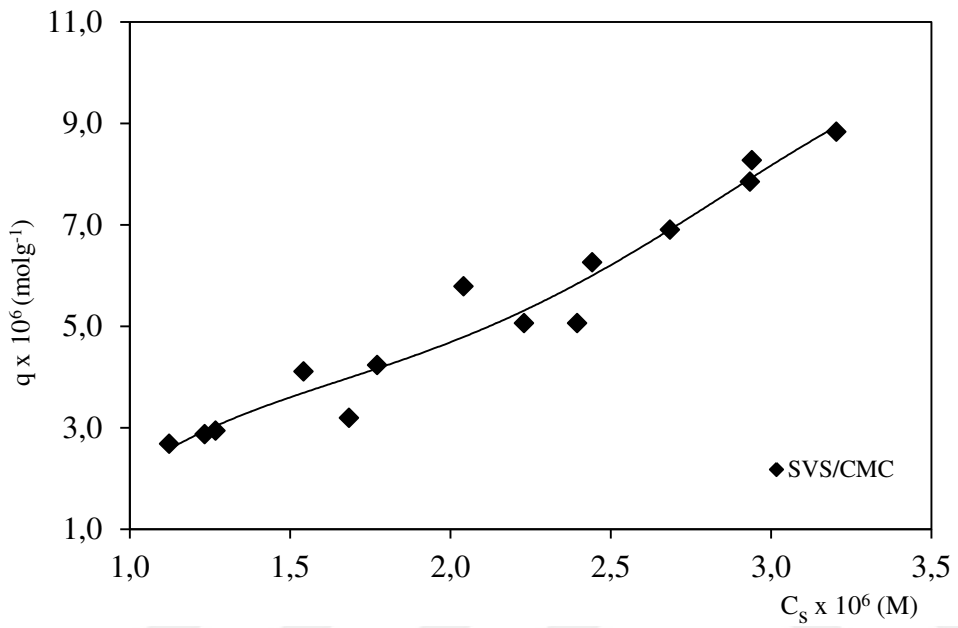
Boyar madde soğurumuna derişimin etkisini araştırabilmek amacıyla 240 µL sabit SVS içeriğine sahip hidrojellerin, biyohibrit hidrojellerin ve semi-IPN hidrojellerin, $0,75 \times 10^{-5}$ - $3,75 \times 10^{-5}$ arasında değişen 21 farklı derişimde MV çözeltileri ile dengeye gelene kadar etkileşmeleri sağlanmıştır. 25°C’da gerçekleştirilen soğurum çalışmaları sonucu elde edilen veriler yardımıyla, denge adsorpsiyon izotermi oluşturularak “boya uzaklaştırma performansı” (q) olarak adlandırılan, 1,0 g çapraz bağlı polimer tarafından uzaklaştırılan boyar maddenin mol miktarı hesaplanmıştır. MV için Eşitlik 8 yardımı ile hesaplanan (q) değerleri ve çözeltinin denge derişimleri kullanılarak çizilen denge adsorpsiyon izotermi Şekil 4.155-4.158’de sunulmuştur.



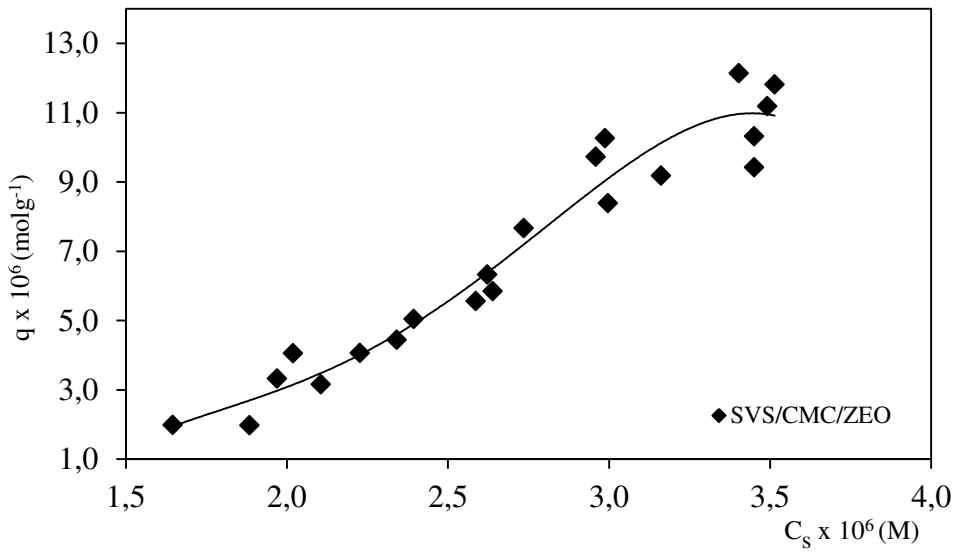
Şekil 4.155. AAm/SVS hidrojellerine MV soğurumu



Şekil 4.156. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerine MV soğurumu



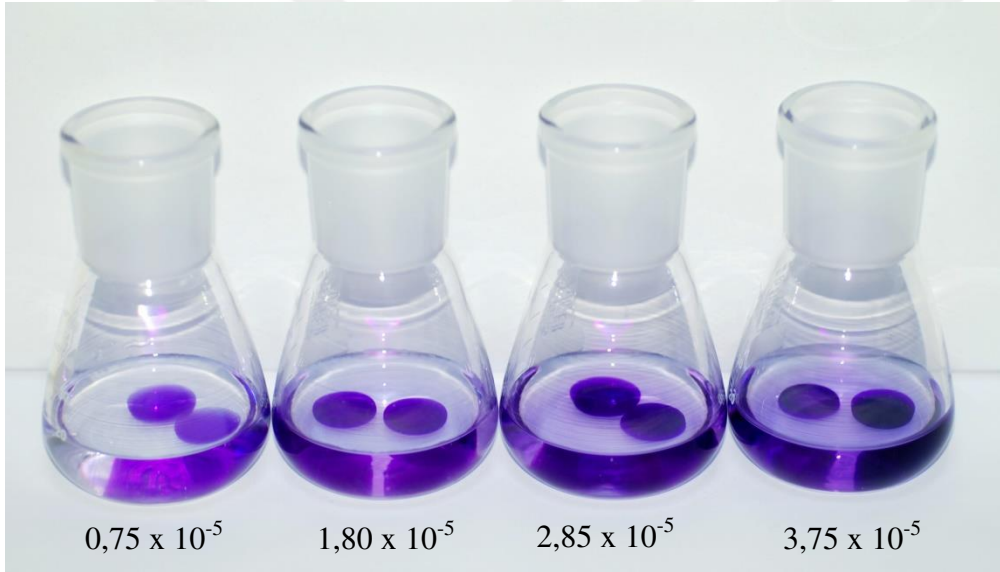
Şekil 4.157. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerine MV soğurumu



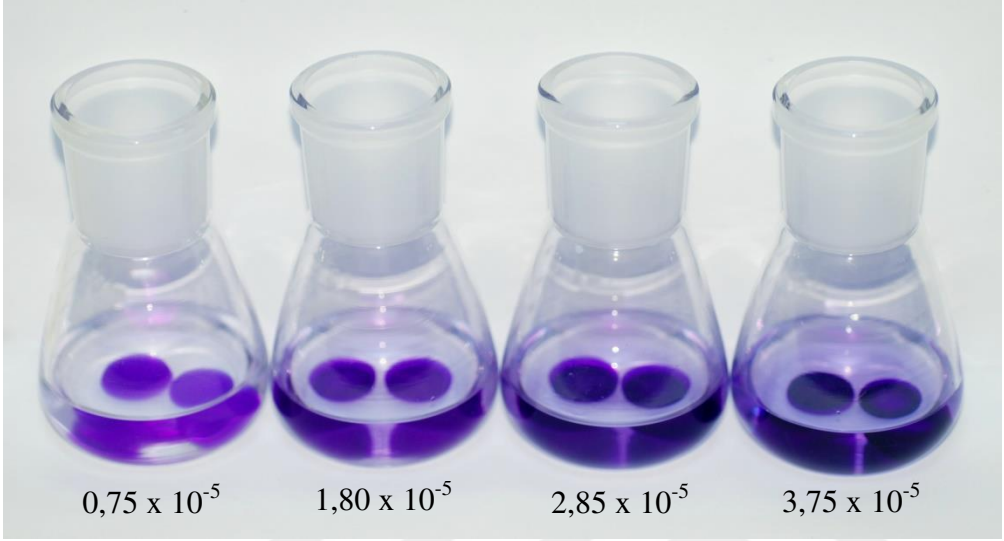
Şekil 4.158. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojellerine MV soğurumu

Grafikler incelendiğinde, adsorpsiyon izotermlerinin çözelti derişimlerine paralel olarak aynı karakterde artışlar gösterdiği gözlemlenmiştir. Üretilen semi-IPN hidrojjelerin ve biyohibrit hidrojjelerin çok yoğun ortamlarda bile soğurum yapabilme yetenekleri ortaya konabilir.

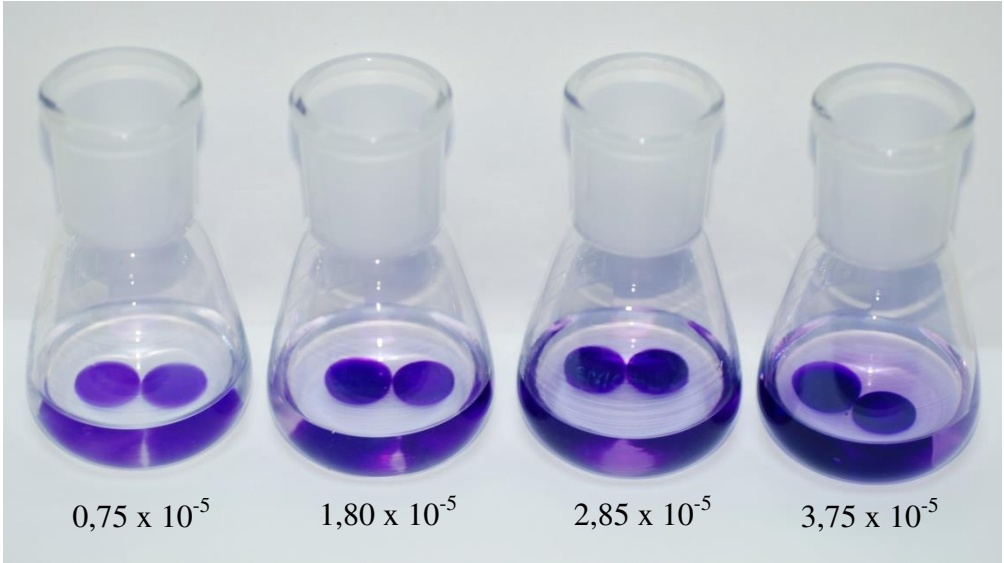
Görsel olarak fikir vermesi amacıyla, 4 farklı derişimde çözelti ile dengeye gelen semi-IPN hidrojjelerin ve biyohibrit hidrojjelerin görünüşleri sırası ile sunulmuştur.



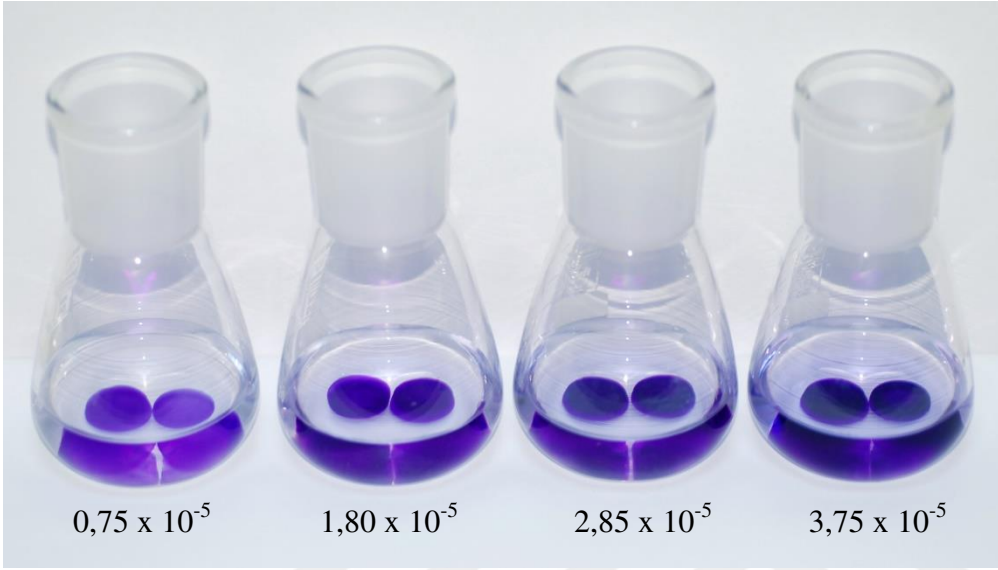
Şekil 4.159. AAm/SVS hidrojjelerinin farklı derişimlerde MV çözeltisindeki görünüşleri



Şekil 4.160. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojjlerinin farklı derişimlerde MV çöztisindeki görünümleri



Şekil 4.161. AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojjlerinin farklı derişimlerde MV çöztisindeki görünümleri



Şekil 4.162. AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin farklı derişimlerde MV çözeltilisindeki görünümüleri

Boya uzaklaştırmada SVS etkisinin araştırılması amacıyla $2,5 \times 10^{-5}$ M sabit çözelti derişimi seçilmiştir. 25°C sabit sıcaklıkta gerçekleştirilen çalışmanın ikinci kısmında, 60, 120, 180, 240 ve 300 μL SVS içeren hidrojenler sabit derişimdeki çözeltiler dengeye gelene kadar etkileştirilmiştir. Ayrıca biyohibrit hidrojel yapısında bulunan ZEO ve semi-IPN hidrojel yapısında bulunan CMC miktarının boya uzaklaştırmaya etkisini araştırabilmek amacıyla değişen oranlarda polimer içeren hidrojenler sabit derişimde çözeltiler ile etkileştirilmiştir. Eşitlik 8, 9 ve 10 yardımıyla hesaplanan (q), (%BS) ve (K_d) değerleri Çizelge 4.27 ve 4.28’de verilmiştir.

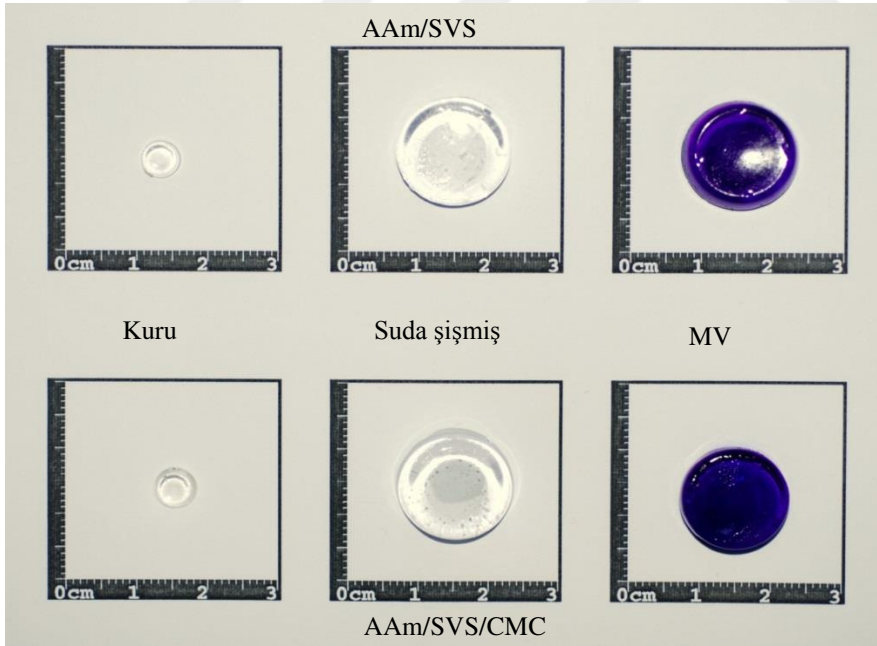
Çizelge 4.27. Hidrojel sistemlerde yüzeye soğurumu ile ilgili parametreler

SVS/ μ L	60	120	180	240	300
Yüzde boya soğurumu (%BS)					
AAm/SVS	53,12	77,18	81,87	84,24	84,17
AAm/SVS/ZEO	83,51	85,52	87,84	86,82	87,25
AAm/SVS/CMC	85,84	88,06	87,07	87,06	87,25
AAm/SVS/CMC/ZEO	80,54	86,22	88,01	88,60	87,52
Boya uzaklaştırma performansı ($q \times 10^6$)					
AAm/SVS	6,84	6,59	8,33	6,87	9,07
AAm/SVS/ZEO	7,44	7,11	6,51	6,67	7,09
AAm/SVS/CMC	7,69	5,91	8,15	6,71	7,98
AAm/SVS/CMC/ZEO	7,96	7,77	7,81	7,13	7,99
Dağılma katsayısı (K_d)					
AAm/SVS	1,13	3,38	4,52	5,35	5,32
AAm/SVS/ZEO	5,07	5,91	7,23	6,59	6,84
AAm/SVS/CMC	6,07	7,38	6,74	6,73	6,85
AAm/SVS/CMC/ZEO	4,14	6,26	7,34	7,78	7,02

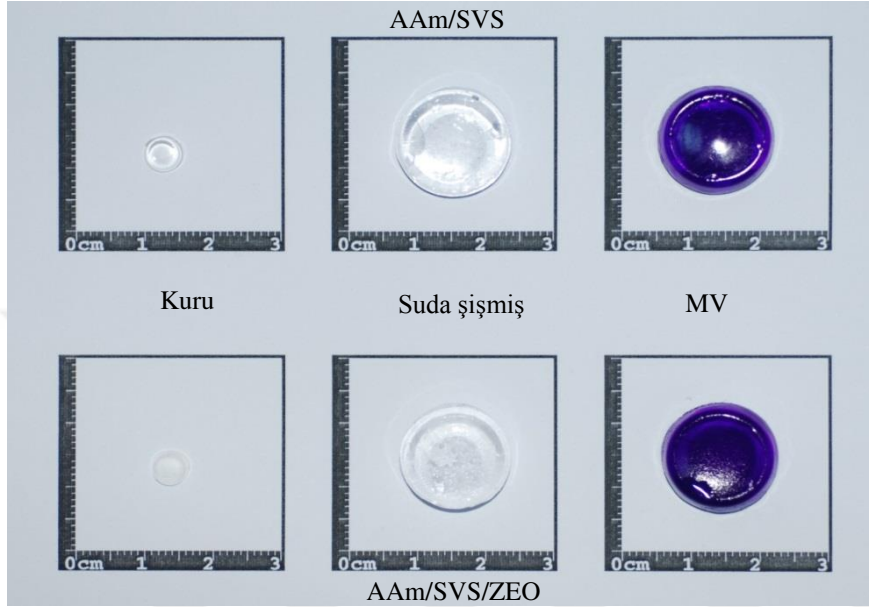
Çizelge 4.28. Farklı ZEO ve CMC içeriğine sahip, 240 μ L SVS içeren hidrojelde yüzeye soğurum ile ilgili parametreler

%2'lik ZEO-su süspansiyonu/%2lik sulu CMC çözeltisi (mL)	0,25	0,50	0,75	1,00
Yüzde boya soğurumu (%BS)				
ZEO	87,40	87,85	87,31	85,14
CMC	87,40	86,04	88,08	85,06
Boya uzaklaştırma performansı ($q \times 10^6$)				
ZEO	8,54	6,09	9,44	7,93
CMC	8,27	7,21	7,09	8,49
Dağılma katsayısı (K_d)				
ZEO	6,94	7,24	6,89	5,73
CMC	6,94	6,17	7,40	5,70

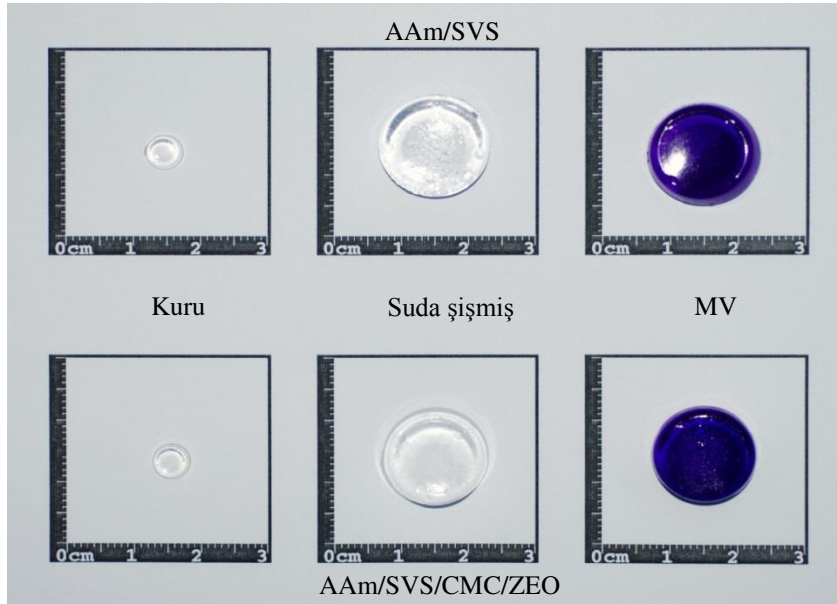
SVS içermeyen çapraz bağlı AAm polimerleri herhangi bir boya soğurumu göstermemektedir. Bu çalışmada SVS gibi sulu ortamlarda anyonik özellik gösteren yardımcı monomerlerin çapraz bağlı yapıda bulunması ile katyonik moleküllere karşı duyarlı, biyohibrit hidrojel ve semi-IPN hidrojel elde edilmiştir. SVS miktarının artması ile artan (q) değerleri bunu kanıtlar niteliktedir. Çizelge 4.27 incelendiğinde, (%BS) değerlerinin SVS içeriğinin artmasıyla arttığı görülmektedir. Çizelge 4.28 incelendiğinde, ZEO ve CMC içeriğinin artmasıyla (q), (%BS) ve (K_d) değerlerinde bir kararlılık gözlenmemektedir. (%BS) değerleri 85,06-88,08 arasında değişmiştir. Çapraz bağlı biyohibrit hidrojel ve semi-IPN tarafından uzaklaştırılan boyarmadde derişiminin çözeltide kalan boyarmadde derişimine oranlanması ile bulunan K_d değerlerinin 1'den büyük çıkması, polimerik yapının seçilen boyar madde için iyi bir adsorban olduğu anlamına gelmektedir. Çizelgelerde sunulan (K_d) değerleri incelendiğinde, üretilen hidrojellerin MV için iyi birer adsorban oldukları söylenebilir.



Şekil 4.163. AAm/SVS hidrojellerinin ve AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojellerinin kuru, suda ve MV çözeltisindeki görünüşleri



Şekil 4.164. AAm/SVS hidrojenlerinin ve AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru, suda ve MV çözeltisindeki görünüşleri



Şekil 4.165. AAm/SVS hidrojenlerinin ve AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojenlerinin kuru, suda ve MV çözeltisindeki görünüşleri

5. SONUÇ

Bu çalışmada çözelti ortamında serbest radikalik katılma polimerleşmesi ile SVS yardımcı monomerini, ZEO mineralini ve doğal bir polimer olan CMC polisakkaritini içeren AAm esaslı yeni semi-IPN ve biyohibrit hidrojellerin sentezi gerçekleştirilmiştir. Bu sentezde PEGDA çapraz bağlayıcı olarak kullanılmıştır.

Üretilen AAm esaslı yeni semi-IPN ve biyohibrit hidrojellerin FT-IR spektrumları alınmıştır. Elde edilen spektrumlarda, hidrojeller, biyohibrit ve semi-IPN hidrojellerde bulunan fonksiyonel gruplara ait karakteristik bantlar izlenerek çapraz bağlı hidrojellerin yapıları aydınlatılmaya çalışılmıştır.

Çapraz bağlı hidrojellerin gözenekli yapısı hakkında bilgi edinebilmek için SEM (taramalı elektron mikroskopi) yöntemi kullanılmıştır. SEM mikrograflar incelendiğinde hidrojellerin genellikle gözenekli yapıya sahip oldukları ve içerdikleri maddelere göre gözenekli yapılarının değiştiği gözlemlenmiştir.

Hidrojellere dinamik şişme testleri uygulanarak, şişme davranışları hakkında önemli veriler elde edilmiştir. Suda yapılan dinamik şişme testleri sonunda elde edilen su/sıvı soğurum verileri incelendiğinde, SVS içeren hidrojellerde, SVS miktarının artmasıyla S_d değerlerinin 7,72-26,07 arasında değiştiği izlenmiştir. Elde edilen hidrojel sistemlerin ASE-su, MET-su ve THF-su gibi farklı su-çözücü karışımlarında da şişme davranışları incelenenmiş ve S_d değerlerinin 0,7330-2,214 arasında değiştiği görülmüştür.

Yapısına ZEO eklenen hidrojellerde SVS miktarının artmasıyla S_d değerlerinin 6,61-24,99 arasında artarak değiştiği, ASE-su, MET-su ve THF-su'da S_d değerlerinin ise 0,7413-1,573 arasında olduğu belirlenmiştir. İçeriğine CMC eklenen hidrojellerde SVS miktarının artmasıyla S_d değerlerinin 7,62-31,97 arasında değiştiği, ASE-su, MET-su ve THF-su ise S_d değerlerinin 0,7002-2,214 arasında değiştiği görülmüştür.

Hem ZEO hem de CMC eklenen hidrojellerde ise SVS eklenmesiyle S_d değerleri, 6,71-26,02 aralığında değişmekte, ASE-su, MET-su ve THF-su'daki S_d değerlerinin ise 0,9487-1,611 aralığında değiştiği izlenmektedir.

Hidrojel sistemlerde şişme sonuçları birlikte incelendiğinde, S_d değerlerinin çapraz bağlı yapıda bulunan SVS miktarının artışı ile uyumlu bir artış göstermektedir. S_d

değerleri ZEO içeriğinin değişimi yönünden incelendiğinde, 240 μ L SVS içeren semi-IPN ve biyohibrit hidrojellerde ZEO miktarının artmasıyla S_d değerlerinde artış izlenmiştir. 240 μ L SVS içeren semi-IPN ve biyohibrit hidrojellerde CMC miktarının artmasıyla S_d değerlerinde yine artışlar gözlemlenmiştir.

Çapraz bağlı hidrojel sistemlerinde bir başka önemli parametre olan dengede su/sıvı tutma kapasitesi (DSTK), su, ASE-su, MET-su ve THF-su'daki şişme çalışmaları sonunda değerlendirilmiştir. Çalışmada elde edilen hidrojellerin tümü için yapıdaki SVS içeriğinin artışı ile DSTK değerleri genel olarak artmaktadır. Elde edilen tüm hidrojeller değerlendirildiğinde DSTK değerleri 0,4119-0,9696 aralığında değişmektedir.

Şişme kinetiği ile ilgili olarak yapılan hesaplamalar sonunda, hesaplanan denge su/sıvı soğurum değerleri ile deneysel denge su/sıvı soğurum değerleri arasında uyum görülmektedir. Bu durum, kinetik analizin doğru temeller üzerine oluşturulduğunun göstergesidir.

Biyohibrit hidrojellerin ve semi-IPN hidrojellerin su/sıvı geçiriminin ya da difüzyon ile ilgili parametrelerin araştırılması adına yapılan çalışmalar sonunda, geçirim üsteli (n), geçirim sabiti (k) ve geçirim katsayısı (D) gibi bazı parametreler hesaplanmıştır. Geçirim üsteli değerleri, çapraz bağlı hidrojellerde su/sıvı geçirim türünün belirlenmesi açısından önem taşır. Su, ASE-su, MET-su ve THF-su'daki ZEO ve CMC içermeyen yapılarda (n) değerleri 0,5090-0,7472 aralığında değişim göstermiştir.

Geçirim üsteli (n) değerlerinin ZEO içeren yapılarda 0,5862-0,7229 aralığında, CMC içeren yapılarda 0,5505-0,7282 aralığında, ZEO ve CMC içeren yapılarda ise 0,5090-0,7241 aralığında değişim gösterdiği belirlenmiştir. Elde edilen sonuçlar değerlendirildiğinde; çapraz bağlı hidrojelere su/sıvı geçiriminin “Fick tipi” olmayan, yani *non-Fickian* geçirim (difüzyon) türüne uygun olduğu söylenebilir.

Çapraz bağlı hidrojellerde su/sıvı geçirimi açısından incelenecek bir diğer parametre olan geçirim katsayısının (D), SVS, ZEO ve CMC artışıyla düzenli bir artış veya azalma göstermediği gözlemlenmiştir. Çapraz bağlı hidrojeller için su/sıvı soğurumunu incelemek üzere su/sıvı soğurum hız katsayısı (k_{ss}) hesaplanarak değerlendirilmiştir. (k_{ss}) değerleri, genel olarak SVS, ZEO ve CMC eklenmesiyle azalmıştır.

Anyonik hidrojellerin boya uzaklaştırma performansının araştırılması amacıyla, katyonik özellikteki metil viyole (MV) seçilmiştir. Çapraz bağlı hidrojellerin boya uzaklaştırma performansları MV derişiminin, ZEO mineralinin, CMC doğal polimerinin ve SVS yardımcı monomerinin etkisi açısından değerlendirilmiştir.

Boyar madde uzaklaştırma performansına derişimin etkisini araştırabilmek için 240 μ L SVS içeriğine sahip semi-IPN ve biyohibrit hidrojellerin, $0,75 \times 10^{-5}$ - $3,75 \times 10^{-5}$ M arasında değişen 21 farklı derişimde MV çözeltileri ile dengeye gelene kadar etkileşimleri sağlanmıştır. Deneyler sonucunda elde edilen veriler yardımıyla ($q-C_s$) grafikleri çizilmiş ve hidrojel sistemler için sulu MV çözeltilerinin derişimi arttıkça, 1,0 g hidrojel tarafından uzaklaştırılan boyarmadde miktarı q değerlerinde genelde artış belirlenmiştir.

Boya uzaklaştırma performansına SVS etkisinin araştırılması amacıyla $2,5 \times 10^{-5}$ M sabit MV çözelti derişimi seçilmiştir. 25°C sabit sıcaklıkta gerçekleştirilen çalışmada, 60, 120, 180, 240 ve 300 μ L SVS içeren hidrojeller, sabit derişimdeki çözeltiler için de dengeye gelene kadar etkileştirilmiştir.

Değişik içeriklerle hazırlanan polimerik hidrojeller sabit derişimde çözeltiler ile etkileştirilerek, boya uzaklaştırma performansına SVS, ZEO ve CMC etkisi araştırılmıştır. Yürütülen deneyler sonucunda q , %BS ve k_d gibi parametreler hesaplanmıştır. AAm/SVS hidrojellerinin q değerleri $6,84 \times 10^{-6}$ - $9,07 \times 10^{-6}$ mol g⁻¹ aralığında değişim göstermiştir. AAm/SVS/ZEO biyohibrit hidrojellerinde, q değerleri $7,09 \times 10^{-6}$ - $7,44 \times 10^{-6}$ mol g⁻¹ aralığında değişmiştir. q değerleri AAm/SVS/CMC semi-IPN hidrojelleri için $7,69 \times 10^{-6}$ - $7,98 \times 10^{-6}$ mol g⁻¹ aralığında; AAm/SVS/CMC/ZEO biyohibrit hidrojelleri için de $7,96 \times 10^{-6}$ - $7,99 \times 10^{-6}$ mol g⁻¹ aralığında değişim göstermiştir.

Soğurumda hesaplanan bir diğer parametre olan %BS değerleri, SVS etkisiyle genel olarak artış göstermiştir. %BS değerleri; SVS içeren hidrojeller için 53,12-87,14 aralığında, ZEO içeren biyohibrit hidrojeller için 83,51-87,25 aralığında, CMC içeren semi-IPN hidrojeller için 85,84-87,25 aralığında, hem ZEO hem de CMC içeren biyohibrit hidrojellerin için de 80,54-87,52 arasında değişim göstermişlerdir.

(K_d) değerleri, çapraz bağlı hidrojellerin, belirlenen bir tür için iyi bir adsorban olup olmadığını belirlemek amacıyla kullanılabilir. (K_d)'nin 1,0'den büyük olması çapraz bağlı hidrojellerin iyi bir adsorban olduğunun bir göstergesidir. Elde edilen (K_d) değerleri incelendiğinde, biyohibrit ve semi-IPN hidrojellerin (K_d) değerlerinin 1,0'den büyük olduğu görülmektedir. Bu değer ZEO ve CMC eklenmesiyle daha da arttığı gözlemlenmiştir. Sonuç olarak üretilen semi-IPN ve biyohibrit hidrojellerin MV için iyi bir soğurucu olduğu söylenebilir. Çalışma sonunda elde edilen AAm/SVS, AAm/SVS/ZEO, AAm/SVS/CMC ve AAm/SVS/CMC/ZEO semi-IPN ve biyohibrit hidrojellerin, yüksek oranda su tutma kapasiteleri ile birlikte çevrede istenmeyen bazı boyar maddeleri, ağır metal iyonlarını, radyoaktif element iyonlarını, atık sularda bulunan bazı toksik maddeleri, deterjan benzeri organik maddeleri, vb. kirleticileri soğurarak uzaklaştırılabilecekleri ileri sürülebilir.

KAYNAKLAR

- Ajbary, M., Santos, A., Morales-Flórez, V., Esquivias, L. 2013. Removal of basic yellow cationic dye by an aqueous dispersion of Moroccan stevensite. **Applied Clay Science**, 80-81: 46-51.
- Ali, A.E., Shawskey, H.A., Abd El Rehim, H.A., Hegazy, E.A. 2003. Synthesis and characterization of PVP/AAc copolymer hydrogel and its applications in the removal of heavy metals from aqueous solution. **European Polymer Journal**, 39: 2337-2344.
- Allawzi, M., Al-Asher, S. 2015. Use of Jordanian natural zeolite as sorbent for removal of cadmium from aqueous solutions. **Desalination and Water Treatment**, 22: 1-3, 349-354.
- An, J., Wang, W., Wang, A. 2012. Preparation and swelling behavior of a pH-responsive psyllium-g-poly(acrylic acid)/attapulgit superabsorbent nanocomposite. **International Journal of Polymeric Materials**, 61: 906-918.
- Antic, K.M., Babic, M.M., Vukovic, J.J., Vasilijevic-Radovic, D.G., Onjia, A.E., Filipovic, J.M., Tomic, S.Lj. 2015. Preparation and characterization of novel P(HEA/IA) hydrogels for Cd²⁺ ion removal from aqueous solution. **Applied Surface Science**, 338: 178-189.
- Aydinoğlu, D., Akgül, Ö., Bayram, V., Şen, S. 2014. Polymer nanocomposite hydrogels with improved metal adsorption capacity and swelling behavior: influence of spirulina immobilization onto montmorillonite clay. **Polymer-Plastics Technology and Engineering**, 53: 16, 1706-1722.
- Azizian, S. 2004. Kinetic models of sorption a theoretical analysis. **Journal of Colloid and Interface Science**, 276: 47-52.
- Barbucci, R., Magnani, A. ve Consumi, M. 2000. Swelling behavior of carboxymethylcellulose hydrogels in relation to crosslinking, pH, and charge density. **Macromolecules**, 33(20): 7475-7480.

- Bardajee, G.R., Hooshyar, Z. 2013. Novel potentially biocompatible nanoporous hydrogel based on poly ((2-dimethylaminoethyl) methacrylate) grafted onto salep: synthesis, swelling behavior and drug release study. **Journal of Polymer Research**, 20: 67-74.
- Basan, S. 2015. Polimer Kimyası, Gazi Kitabevi, Ankara.
- Baybaş, D., Ulusoy, U. 2011. Polyacrylamide-clinoptilolite/Y-zeolite composites: characterization and adsorptive features for terbium. **Journal of Hazardous Materials**, 187: 241-249.
- Bhattacharyya, R., Ray, S.K. 2015. Adsorption of industrial dyes by semi-IPN hydrogels of acrylic copolymers and sodium alginate. **Journal of Industrial and Engineering Chemistry**, 22: 92-102.
- Bhattacharyya, S.S., Mishra, A., Pal, D., Ghosh, A.K., Ghosh, A., Banerjee, S., Sen, K.K. 2012. Synthesis and characterization of poly(acrylic acid)/poly(vinyl alcohol)-xanthan gum interpenetrating network (IPN) superabsorbent polymeric composites. **Polymer-Plastics Technology and Engineering**, 51: 878-884.
- Bonetto, L.R., Ferrarini, F., Marco, C., Crespo, J.S., Guegan, R., Giovanela, M. 2015. Removal of methyl violet 2B dye from aqueous solution using a magnetic composite as an adsorbent. **Journal of Water Process Engineering**, 6: 11-20.
- Bueno, V., Bentini, R., Catalani, L., Petri, D. 2013. Synthesis and swelling behavior of xanthan-based hydrogels. **Carbohydrate Polymers**, 92: 1091-1099.
- Callister, D.W., Rethwisch, D.G., 2014. Malzeme Bilimi ve Mühendisliği. (Kemal Genel, Editör). Nobel Akademik Yayıncılık, Ankara, Türkiye
- Chanthateyanonth, R., Ruchirawat, S., Srisitthiratkul, C., 2009. Preperation of new water-soluble chitosan containing hyperbranched-vinylsulfonic acid sodium salt and their antimicrobial activities and chelation with metals. **Journal of Applied Polymer Science**, 166: 2074-2082.

- Chen, Y., Chen, L., Bai, H., Li, L. 2013. Graphene oxide-chitosan composite hydrogels as broad-spectrum adsorbents for water purification. **Journal of Materials Chemistry A**, 1: 1992-2001.
- Chu, B., Hsiao, B.S. 2009. The role of polymers in break through technologies for water purification. **Journal of Polymer Science: Part B: Polymer Physics**, 47: 2431-2435.
- Crini, G. 2006. Non-conventional low-cost adsorbents for dye removal: A review. **Bioresource Technology**, 97: 1061-1085.
- Crini, G., Badot, P.M. 2008. Application of chitosan, a natural aminopolysaccharide, for dye removal from aqueous solutions by adsorption processes using batch studies: A review of recent literature. **Progress in Polymer Science**, 33: 399-447.
- Çakmak, H. 2013. Fiziksel ve Kimyasal Çapraz Bağlı DNA Hidrojellerinin Sentezi ve Karakterizasyonu. İstanbul Teknik Üniversitesi, Yüksek Lisans Tezi, İstanbul.
- Deng, S., Xu, H., Jiang, X., Yin, J. 2013. Poly(vinyl alcohol) (PVA)-enhanced hybrid hydrogels of hyperbranched poly(ether amine) (hPEA) for selective adsorption and separation of dyes. **Macromolecules**, 46: 2399-2406.
- Dengre, R., Bajpai, M., Bajpai, S.K. 2000. Release of vitamin B12 from poly(N-vinyl-2-pyrrolidone)-crosslinked polyacrylamide hydrogels: A kinetic study. **Journal of Applied Polymer Science**, 76: 1706-1714.
- Dogru, Ö., Abdurrahmanoğlu, S. 2015. Preparation and characterization of modified nanosilica/PNIPAm hybrid cryogels. **Polymer Bulletin**, 72: 993-1005.
- Dragan E., Dinu, M. 2015. Progress in polysaccharide/zeolites and polysaccharide hydrogel composite sorbents and their applications in removal of heavy metal ions and dyes. **Current Green Chemistry**, 2: 342-353.
- Dragan, E.S. 2014. Design and applications of interpenetrating polymer network hydrogels: A review. **Chemical Engineering Journal**, 243: 572-590.

- Dragan, E.S., Loghin, D.F.A. 2013. Enhanced sorption of methylene blue from aqueous solutions by semi-IPN composite cryogels with anionically modified potato starch entrapped in PAAm matrix. **Chemical Engineering Journal**, 234: 211-222.
- Ende, M.T., Peppas, N.A. 1996. Transport of ionizable drugs and proteins in crosslinked poly(acrylic acid) and poly(acrylic acid-co-2-hydroxyethyl methacrylate) hydrogels. I. Polymer characterization. **Journal of Applied Polymer Science**, 59: 673-685.
- Ende, M.T., Peppas, N.A. 1997. Transport of ionizable drugs and proteins in crosslinked poly(acrylic acid) and poly(acrylic acid-co-2-hydroxyethyl methacrylate) hydrogels. II. Diffusion and release studies. **Journal of Controlled Release**, 48: 47-56.
- Evmenenko, G., Alexev, V., Budtova, T., Buyanov, A., Frenkel, S. 1999. Swelling-induced changes of polyelectrolyte gels. **Polymer**, 40: 2975-2979.
- Fontanille, Y.G.M. 2008. Organic and Physical Chemistry of Polymers, John Wiley & Sons, Inc., Hoboken, New Jersey, USA.
- Ganji, F., Vasheghani-Farahani, S., Vasheghani-Farahani, E. 2010. Theoretical description of hydrogel swelling: A review. **Iranian Polymer Journal**, 19: 375-398.
- Gnanou, Y., Fontanille, M. 2008. Organic and Physical Chemistry of Polymers. John Wiley & Sons, Inc, Hoboken, New Jersey.
- Gooch, J.W. 2007. Encyclopedic Dictionary of Polymers. Springer Science Business Media, LLC, Springer Street, New York, NY 10013, USA.
- Hasgöl, B. 2013. Karragenan katkılı yeni polimer/kil kompozit hidrojellerinin sentezi, karakterizasyonu ve potansiyel soğurum kapasitelerinin araştırılması. Adnan Menderes Üniversitesi, Yüksek Lisans Tezi, Aydın.
- Hoffman, A.S. 2012. Hydrogels for biomedical applications. **Advanced Drug Delivery Reviews**, 64: 18-23.

- Hosseinzadeh, H., Zoroufi, S., Mahdavinia, G.R. 2015. Study on adsorption of cationic dye on novel kappa-carrageenan/poly(vinyl alcohol)/montmorillonite nanocomposite hydrogels. **Polymer Bulletin**, 72: 1339-1363.
- Hu, Y., Tao, C., Dong, X. 2015. Preparation and characterization of composite hydrogel beads based on sodium alginate. **Polymer Bulletin**, 72: 2857-2869.
- Hull, L.C., Grossman, C., Fjeld, R.A., Coates, J.T., Elzerman, A.W. 2004. Hybrid empirical-theoretical approach to modeling uranium adsorption. **Applied Geochemistry**, 19: 721-736.
- Humelnicu, D., Dinu, M.V., Dragan, E.S. 2011. Adsorption characteristics of UO_2^{2+} and Th^{4+} ions from simulated radioactive solutions onto chitosan/clinoptilolite sorbents. **Journal of Hazardous Materials**, 185: 447-455.
- Hüther, A., Xu, Xiaoping., Maurer, G. 2004. Swelling of *n*-isopropyl acrylamide hydrogels in water and aqueous solutions of ethanol and acetone. **Fluid Phase Equilibria**, 219: 231-244.
- Ilavsky, M., Mamytbekov, G., Hanykova, L., Dusek, K. 2002. Phase transition in swollen gels 31. Swelling and mechanical behaviour of interpenetrating networks composed of poly(1-vinyl-2-pyrrolidone) and polyacrylamide in water/acetone mixtures. **European Polymer Journal**, 38: 875-883.
- Kabiri, K., Zohuriaan-Mehr, M.J., Mirzadeh, H., Kheirabadi, M. 2010. Solvent-, ion- and pH-specific swelling of poly(2-acrylamido-2-methylpropane sulfonic acid) superabsorbing gels. **Journal of Polymer Research**, 17: 203-212.
- Karadağ, E., Hasgöl, B., Kundakç1, S. Üzüml, Ö.B. 2014 (a). A study of polymer/clay hybrid composite sorbent based AAm/SMA hydrogels and semi IPNs composed of *ι*-carrageenan and montmorillonite for water and dye sorption. **Advances in Polymer Technology**, 33; 21432 (1-11).

- Karadağ, E., Kundakcı, S. 2012. A novel polymeric adsorbent for water and dye uptake: acrylamide/sodium acrylate copolymers and semi-interpenetrating polymer networks composed of gelatin and/or PVA. **Polymer-Plastics Technology and Engineering**, 51: 1513-1523.
- Karadağ, E., Kundakcı, S. 2015. Application of highly swollen novel biosorbent hydrogels in uptake of uranyl ions from aqueous solutions. **Fibers and Polymers**, 16(10); 2165-2176.
- Karadağ, E., Kundakcı, S. 2016. "Uranyl ion uptake properties of highly swollen AAm/SA/GEL/PVA semi IPNs as novel biosorbent. **Polymer-Plastics Technology & Engineering** 55; 15-24.
- Karadağ, E., Nalbantoğlu, A., Kundakcı, S., Üzümlü, Ö.B. 2014 (b). Highly swollen polymer/clay composite sorbent-based AAm/AMPS hydrogels and semi-IPNs composed of carboxymethyl cellulose and montmorillonite and cross-linked by PEGDA. **Polymer-Plastics Technology and Engineering**, 53: 54-64.
- Kasim, Z.D., 2016. Bentonit ve sodyum aljinat içeren yeni akrilamid/potasyum 3-sülfopropil metakrilat hibrit hidrojelilerin eldesi, karakterizasyonu ve biyopotansiyel kullanım kapasitelerinin araştırılması. Adnan Menderes Üniversitesi, Yüksek Lisans Tezi, Aydın.
- Khoonsap, S., Amnuaypanich, S. 2011. Mixed matrix membranes prepared from poly(vinyl alcohol) (PVA) incorporated with zeolite 4A-graft-poly(2-hydroxyethyl methacrylate) (zeolite-g-PHEMA) for the pervaporation dehydration of water-acetone mixtures. **Journal of Membrane Science**, 367: 182-189.
- Kopecek, J., Yang, J. 2007. Hydrogels as smart biomaterials. **Polymer International**, 56: 1078-1098.
- Kundakcı, S. 2011. Jelatin, akrilamid, poli (etilen glikol) ve poli(vinil alkol) esaslı yeni polimerik taşıyıcı ve soğurucuların biyopotansiyel kullanım kapasitelerinin araştırılması. Adnan Menderes Üniversitesi, Doktora Tezi, Aydın.

- Kundakcı, S., Karadağ, E. 2014. Preliminary swelling and dye sorption studies of acrylamide/4-styrenesulfonic acid sodium salt copolymers and semi-interpenetrating polymer networks composed of gelatin and/or PEG. **Polymer Bulletin**, 71: 351-370.
- Kundakcı, S., Üzüm, Ö.B., Karadağ, E. 2008. Swelling and dye sorption studies of acrylamide/2-acrylamido-2-methyl-1-propanesulfonic acid/bentonite highly swollen composite hydrogels. **Reactive & Functional Polymers**, 68: 458-473.
- Kundakcı, S., Üzüm, Ö.B., Karadağ, E. 2009. A new composite sorbent for water and dye uptake: Highly swollen acrylamide/2-acrylamido-2-methyl-1-propanesulfonic acid/clay hydrogels crosslinked by 1,4-butanediol dimethacrylate. **Polymer Composites**, 30: 29-37.
- Laftah, W.A., Hashim, S., Ibrahim, A.N. 2011. Polymer hydrogels: A review. **Polymer-Plastics Technology and Engineering**, 50: 1475-1486.
- Li, W., Sun, B. ve Wu, P. 2009. Study on hydrogen bonds of carboxymethyl cellulose sodium film with two-dimensional correlation infrared spectroscopy. **Carbohydrate Polymers**, 78, 454-461.
- Lopes, A.C., Martins, P., Lanceros-Mendez, S. 2014. Aluminosilicate and aluminosilicate based polymer composites: Present status, applications and future trends. **Progress in Surface Science**, 89: 239-277.
- Maity, J., Ray, S.K. 2014. Enhanced adsorption of methyl violet and congo red by using semi and full IPN of polymethacrylic acid and chitosan. **Carbohydrate Polymers**, 104: 8-16.
- Marandi, G.B., Kermani, Z.P., Kurdtabar, M. 2013. Fast and efficient removal of cationic dyes from aqueous solution by collagen-based hydrogel nanocomposites. **Polymer-Plastics Technology & Engineering**, 52: 310-318.
- Missana, T., Garcia-Gutierrez, M., Maffiote, C. 2003. Experimental and modeling study of the uranium (VI) sorption on Goethite. **Journal of Colloid and Interface Science**, 260: 291-301.

- Miyazaki, T., Imamura, M., Ishida, E., Ashizuka, M., Ohtsuki, C. 2009. Apatite formation abilities and mechanical properties of hydroxyethylmethacrylate-based organic-inorganic hybrids incorporated with sulfonic groups and calcium ions. **Journal of Materials Science**, 20: 157-161.
- Nalbantoğlu, A. 2012. Kimyasal çapraz bağlı 2-Akrilamido-2-Metil-1-propansülfonik asit, sodyum karboksimetil selüloz ve montmorillonit İçeren akrilamid esaslı polimerik kompozitlerin hazırlanması, karakterizasyonu ve yüzeye soğurum çalışmalarının değerlendirilmesi. Adnan Menderes Üniversitesi, Yüksek Lisans Tezi, Aydın.
- Nasir, A., Kausar, A., Younus, A. 2015. A review on preparation, properties and applications of polymeric nanoparticle-based materials. **Polymer-Plastics Technology and Engineering**, 54(4): 325-341.
- Navalon, S., Alvaro, M., Garcia, H. 2010. Heterogeneous fenton catalysts based on clays, silicas and zeolites. **Applied Catalysis B: Environmental**, 99: 1-26.
- Ngah, W.S., Teong, L.C., Toh, R.H., Hanafiah, M.A.K.M. 2013. Comparative study on adsorption and desorption of Cu(II) ions by three types of chitosan-zeolite composites. **Chemical Engineering Journal**, 223: 231-238.
- Odian, G. 1991. Principles of polymerization. John Wiley&Sons, Inc., United States of America.
- Orakdogan, N., Okay, O. 2006. Reentrant conformation transition in poly(*N,N*-dimethylacrylamide) hydrogels in water-organic solvent mixtures. **Polymer**, 47:561-566.
- Orlov, Y., Xu, X., Maurer, G. 2005. Swelling of a *N*-isopropyl acrylamide hydrogel in two aqueous/organic two-phase systems. **Fluid Phase Equilibria**, 235: 18-25.
- Panic, V., Velickovic, S.J. 2014. Removal of model cationic dye by adsorption onto poly(methacrylic acid)/zeolite hydrogel composites: kinetics,

- equilibrium study and image analysis. **Separation and Purification Technology**, 122: 384-394.
- Patrickios, C.S. 2010. Polymer networks: Recent developments. **Macromolecular Symposia**, 291-292: 1-11.
- Peng, F., Guan, Y., Zhang, B., Bian, J., Ren, J., Yao, C. 2014. Synthesis and properties of hemicelluloses-based semi-IPN hydrogels. **International Journal of Biological Macromolecules**, 65: 564-572.
- Peniche, C., Cohen, M.E., Vazquez, B., Roman, J.S. 1997. Water sorption of flexible networks based on 2-hydroxyethyl methacrylate-triethylenglycol dimethacrylate copolymers. **Polymer**, 38: 5977-5982.
- Peppas, N.A., Franson, N.M. 1983. The swelling interface number as a criterion for prediction of diffusional solute release mechanisms in swellable polymers. **Journal of Polymer Science**, 21: 983-997.
- Pourjavadi, A., Ghasemzadeh H. 2007 Carrageenan-g-poly (acrylamide)/poly(vinylsulfonic acid sodium salt) as a novel semi-IPN hydrogel: Synthesis, characterization and swelling behavior. **Polymer Engineering and Science**, 20829; 1387-1395.
- Rashidzadeh, A., Olad, A., Salari, D., Reyhanitabar, A. 2014. On the preparation and swelling properties of hydrogel nanocomposite based on sodium alginate-g-poly(acrylic acid-co-acrylamide)/clinoptilolite and its application as slow release fertilizer. **Journal of Polymer Research**, 21: 344-358.
- Saçak, M. 2012. Polimer Kimyası. Gazi Kitabevi, Ankara.
- Sahiner, N. 2007. Colloidal nanocomposite hydrogel particles. **Colloid Polymer Science**, 285: 413-421.
- Sakızcı, M., Tanrıverdi, L.Ö., 2015. Influence of acid and heavy metal cation exchange treatments on methane adsorption properties of mordenite. **Turkish Journal of Chemistry**, 39: 970-983.

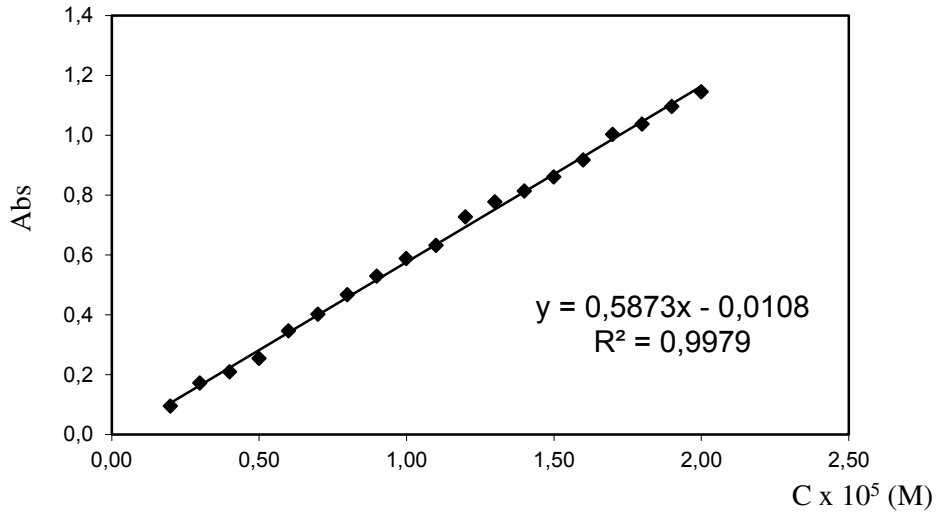
- Salama, A., Shukry, N., El-Sakhawy, M. 2015. Carboxymethyl cellulose-g-poly(2-(dimethylamino)ethyl methacrylate) hydrogel as adsorbent for dye removal. **International Journal of Biological Macromolecules**, 73: 72-75.
- Sannino, A., Demitri, C. ve Madaghiele, M. 2009. Biodegradable Cellulose-based Hydrogels. Design and Applications. **Materials**, 2: 353-373.
- Saraydın, D., Karadağ, E., Işıkver, Y., Şahiner, N., Güven, O. 2004. The influence of preparation methods on the swelling and network properties of acrylamide hydrogels with crosslinkers. **Journal of Macromolecular Science, Part, A-Pure and Applied Chemistry**, A41(4): 421-433.
- Schwarte, L.M., Peppas, N.A. 1998. Novel poly(ethylene glycol)-grafted, cationic hydrogels: preparation, characterization and diffusive properties. **Polymer**, 39: 6057-6066.
- Scognamillo, S., Alzari, V., Nuvoli, D., Illescas, J., Marceddu, S., Mariani, A. 2011. Thermoresponsive super water absorbent hydrogels prepared by frontal polymerization of n-isopropyl acrylamide and 3-sulfopropyl acrylate potassium salt. **Journal of Polymer Science**, 49(5): 1228-1234.
- Seçkin, T. 2015. Polimer Kimyası Fonksiyonel Yaklaşım ve Uygulamaları. Seçkin Yayıncılık, Ankara.
- Seidel A. (Editör) 2008. Characterization and Analysis of Polymers. John Wiley&Sons, Inc., Hoboken, New Jersey. USA.
- Seven, F., Sahiner, N. 2013. Poly(acrylamide-co-vinyl sulfonic acid) p(AAm-co-VSA) hydrogel templates for Co and Ni metal nanoparticle preparation and their use in hydrogen production. **International Journal of Hydrogen Energy**, 38: 777-784.
- Singh, V., Pandey, S., Singh, S.K, Sanghi, R. 2009. Removal of cadmium from aqueous solutions by adsorption using poly(acrylamide) modified guar gum-silica nanocomposites. **Separation and Purification Technology**, 67: 251-261.

- Singhon, R., Husson J., Knorr, M., Lakard, B., Euvrard, M. 2012. Adsorption of Ni(II) ions on colloidal hybrid organic-inorganic silica composites. **Colloids and Surfaces B: Biointerfaces**, 93: 1-7.
- Skoog, D.A., Leary, J.J. 1992. Principles of Instrumental Analysis. Saunders College Publishing, Florida, USA.
- Sorenson, W., Sweeny, F., Campbell, T.W. 2011. Preparative Methods of Polymer Chemistry. John Wiley & Sons Inc., US.
- Sperling, L.H. 2006. Introduction to Physical Polymer Science. John Willy & Sons, Inc., Hoboken, New Jersey, USA.
- Şahin, Y. 2006. Kompozit Malzemelere Giriş. Gazi Kitabevi, Ankara.
- Şahiner, N., Pekel, N., Güven, O. 1998. Radiation synthesis of N-vinyl-2-pyrrolidone/acrylonitrile interpenetrating polymer networks and their use in uranium recovery from aqueous systems. **Radiation Physics and Chemistry**, 52(1-6): 271-276.
- Unuabonah, I.E., Taubert, A. 2014. Clay-polymer nanocomposites (CPNs): Adsorbent of the future for water treatment. **Applied Clay Science**, 99: 83-92.
- Üzüm, Ö.B. 2008. Yeni akrilamid esaslı anyonik IPN'lerin sentezi, karakterizasyonu ve şişme/soğurum/denetimli salınım potansiyellerinin araştırılması. Adnan Menderes Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü Doktora Tezi, Aydın.
- Üzüm, Ö.B., Karadağ, E. 2010. Equilibrium swelling studies of chemically crosslinked highly swollen acrylamide-sodium acrylate hydrogels in various water-solvent mixtures. **Polymer-Plastics Technology and Engineering**, 49: 609-616.
- Üzüm, Ö.B., Karadağ, E. 2011. Dye sorption and water uptake properties of crosslinked acrylamide/sodium methacrylate copolymers and semi-interpenetrating polymer networks composed of PEG. **Separation Science and Technology**, 46: 489-499.

- Wang, Y., Zeng, L., Ren, X., Song, H., Wang, A. 2010. Removal of methyl violet from aqueous using poly(acrylic acid-co-acrylamide) attapulgite composite. **Journal of Environmental Sciences**, 22: 7-14.
- Wu, F.C., Tseng, R.L., Juang, R.S. 2010. A review and experimental verification of using chitosan and its derivatives as adsorbents for selected heavy metals. **Journal of Environmental Management**, 91: 798-806.
- Zendehdel, M., Zendejma, A., Hoseini, F., Azarkish, M. 2015. Investigation of removal of chemical oxygen demand (COD) wastewater and antibacterial activity of nanosilver incorporated in poly(acrylamide-co-acrylic acid)/NaY zeolite nanocomposite. **Polymer Bulletin**, 72: 1281-1300.
- Zhao, S.P., Ma, D., Zhang, L.M. 2006. New semi-interpenetrating network hydrogels: synthesis, characterization and properties. **Macromolecular Bioscience**, 6: 445-451.

EKLER

Ek 1. Metil viyole çözeltilerinin denge derişimlerinin hesaplanması için kullanılan çalışma eğrisi



ÖZGEÇMİŞ

KİŞİSEL BİLGİLER

Adı Soyadı : Belgin YEL
Doğum Yeri ve Tarihi : 27.01.1991 / AYDIN

EĞİTİM DURUMU

Lisans Öğrenimi : Muğla Sıtkı Koçman Üniversitesi,
Fen Fakültesi, Kimya Bölümü 2009-2014
Yüksek Lisans Öğrenimi : Adnan Menderes Üniversitesi,
Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Anabilim Dalı 2014-2016
Yabancı Diller : İngilizce

BİLİMSEL FAALİYETLERİ

A) Bildiriler

1-Akrilamid/sodyum 4-stirensülfonat/PVA esaslı yarı-IPN'lere *toluidin blue* soğurumu

Belgin YEL, Ebru YURDAKUL, Semiha KUNDAKÇI, Ömer Barış ÜZÜM, Erdener KARADAĞ

Kimya 2015, 27. Ulusal Kimya Kongresi, Çanakkale Onsekiz Mart Üniversitesi, 23-28 Ağustos 2015, Çanakkale.

2-Sodyum akrilat içeren yarı-IPN hidrojenlerin Thionin soğurum kapasitelerinin araştırılması

Ebru YURDAKUL, **Belgin YEL**, Semiha KUNDAKÇI, Ömer Barış ÜZÜM, Erdener KARADAĞ

Kimya 2015, 27. Ulusal Kimya Kongresi, Çanakkale Onsekiz Mart Üniversitesi, 23-28 Ağustos 2015, Çanakkale.

3-Zeolit ve karboksimetil selüloz içeren yeni akrilamid/sodyum vinilsülfonat biyohibrit hidrojenlerde şişme karakterizasyonu

Belgin YEL, Erdener KARADAĞ

Polimer 2016, 6. Ulusal Polimer Bilim ve Teknolojisi Kongresi, Hacettepe Üniversitesi, Beytepe, Ankara, 04-07 Eylül 2016.

B) Katıldığı projeler

-Adnan Menderes Üniversitesi Araştırma Projeleri Komisyon Başkanlığı tarafından desteklenen ve 2015 yılında başlatılan “*Zeolit İçeren Yeni Biyohibrit Hidrojellerin Hazırlanışı, Karakterizasyonu ve Biyopotansiyel Kullanım Özellikleri*” (FEF 15038) adlı yüksek lisans araştırma projesi Prof. Dr. Erdener KARADAĞ ile birlikte yürütülerek 2016 yılında sonlandırılmıştır.

İLETİŞİM

E-Posta Adresi : belginyel@hotmail.com