

**T.C.  
YILDIZ TEKNİK ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**BADEM VE KESTANE KABUKLARI KULLANILARAK SULU  
ÇÖZELTİLERDEN BENTAZON VE METALAXYL  
PESTİSİTERİNİN GİDERİMİ: DENEYSEL TASARIM İLE  
OPTİMİZASYON, ADSORPSİYON KİNETİĞİ VE  
İZOTERMINİN İNCELENMESİ**

**BARIŞ DİLER**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ  
KİMYA MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI  
KİMYA MÜHENDİSLİĞİ PROGRAMI**

**DANIŞMAN  
DOÇ. DR. DİLEK KILIÇ APAR**

**İSTANBUL, 2015**

**T.C.**  
**YILDIZ TEKNİK ÜNİVERSİTESİ**  
**FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**BADEM VE KESTANE KABUĞU KULLANILARAK SULU**  
**ÇÖZELTİLERDEN BENTAZON VE METALAXYL PESTİSİTLERİNİN**  
**GİDERİMİ: DENEYSEL TASARIM İLE OPTİMİZASYON, ADSORPSİYON**  
**KİNETİĞİ VE İZOTERMINİN İNCELENMESİ**

Barış DİLER tarafından hazırlanan tez çalışması 11.12.2015 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından Yıldız Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı'nda **YÜKSEK LİSANS TEZİ** olarak kabul edilmiştir.

**Tez Danışmanı**

Doç. Dr. Dilek KILIÇ APAR  
Yıldız Teknik Üniversitesi

**Jüri Üyeleri**

Doç. Dr. Dilek KILIÇ APAR  
Yıldız Teknik Üniversitesi

Prof. Dr. Belma KIN ÖZBEK  
Yıldız Teknik Üniversitesi

Yrd. Doç. Dr. Rezan DEMİR ÇAKAN  
Gebze Teknik Üniversitesi

## ÖNSÖZ

---

Bu tez çalışmasında, çevreye bulaştığında insan ve çevre sağlığına tehdit oluşturan Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerinin badem ve kestane kabukları kullanılarak adsorpsiyon yöntemi ile giderimi çalışılmıştır.

Yüksek Lisans tez çalışmam boyunca bilgisi ve tecrübesi ile bana yol gösterip, çalışmalarına katkı sağlayan tez danışmanım Sayın Hocam Doç. Dr. Dilek KILIÇ APAR'a teşekkürlerimi sunarım.

Yüksek Lisans eğitimim boyunca yardımlarını ve desteklerini eksik etmeyen sevgili aileme, sevgili Murat Alper CEDİMAĞAR, Sinem ŞİMŞEK, Şule ÜNAL ve Elif ÖZTÜRK'e teşekkürü bir borç bilirim.

Son olarak her zaman yanımda olup beni yalnız bırakmayan sevgili dostlarıma ve arkadaşlarıma en içten sevgilerimi sunarım.

Aralık, 2015

Barış DİLER

## İÇİNDEKİLER

	Sayfa
SİMGE LİSTESİ.....	vii
KISALTMA LİSTESİ.....	ix
ŞEKİL LİSTESİ.....	x
ÇİZELGE LİSTESİ.....	xvi
ÖZET.....	xxi
ABSTRACT.....	xxiii
BÖLÜM 1	
GİRİŞ.....	1
1.1. Literatür Özeti.....	1
1.2. Tezin Amacı.....	3
1.3. Orijinal Katkı.....	3
BÖLÜM 2	
PESTİSİTLER.....	5
2.1. Pestisitlerin Sınıflandırılması.....	6
2.2.1. Dünyada pestisit kullanımı.....	7
2.2.2. Türkiye’de pestisit kullanımı.....	8
2.3. Pestisit Kullanımının Amaçları.....	9
2.4. Pestisit Kullanımının Dezavantajları.....	9
2.4.1. İnsanlar üzerindeki etkileri.....	9
2.4.2. Gıdalara olan etkileri.....	10
2.4.3. Hedef olmayan organizmalara etkileri.....	11
2.4.4. Organizmalarda pestisitlere karşı dayanıklılık oluşumu.....	12
2.5. Pestisitlerin Çevredeki Durumu.....	13
2.5.1. Pestisitlerin Başlangıç Dağılımı.....	13
2.5.2. Pestisitlerin çevreye bulaşma yolları.....	14
BÖLÜM 3	
BENTAZON VE METALAXYL.....	18
3.1. Bentazon.....	18
3.1.1 Bentazon’un insanlara, diğer canlılara ve doğaya etkileri.....	21
3.2. Metalaxyl.....	23
3.2.1. Metalaxyl’in insanlara, diğer canlılara ve doğaya etkileri.....	26

## BÖLÜM 4

PESTİSİT GİDERİM YÖNTEMLERİ.....	29
4.1. Kimyasal Giderim Yöntemleri.....	29
4.1.1. Ozonizasyon.....	29
4.1.2. Fotokimyasal İndirgenme .....	31
4.2. Fiziksel Giderim Yöntemleri .....	32
4.2.1. Membran filtrasyonu.....	33
4.2.2. Adsorpsiyon .....	34
4.3. Biyolojik Giderim Yöntemleri .....	35

## BÖLÜM 5

ADSORPSİYON.....	38
5.1. Adsorpsiyon Çeşitleri.....	38
5.1.1. Fiziksel adsorpsiyon .....	38
5.1.2. Kimyasal adsorpsiyon.....	39
5.1.3. İyon değişimi adsorpsiyonu .....	39
5.2. Kimyasal ve Fiziksel Adsorpsiyon Arasındaki Farklar .....	39
5.3. Adsorpsiyona Etki Eden Faktörler .....	40
5.3.1. pH.....	40
5.3.2. Sıcaklık .....	41
5.3.3. Adsorban özellikleri.....	41
5.3.4. Adsorbat ve çözücü özellikleri.....	41
5.3.5. Polarite .....	41
5.4. Adsorbanlar .....	42
5.4.1. Aktif karbon.....	43
5.4.2. Killer .....	44
5.4.3. Zeolitler.....	44
5.4.4. Kitosan.....	45
5.4.5. Biyoadsorbentler ve tarımsal atıklar .....	45
5.5. Adsorpsiyon Kinetiği .....	47
5.5.1. Birinci merteye kinetik model .....	48
5.5.2. İkinci merteye kinetik model .....	48
5.5.3. Yalancı birinci merteye kinetik model.....	49
5.5.4. Yalancı ikinci merteye kinetik model .....	50
5.5.5. Elovich kinetik modeli.....	50
5.5.6. Partikül içi difüzyon modeli .....	51
5.6. Adsorpsiyon İzotermi .....	52
5.6.1. Langmuir adsorpsiyon izotermi .....	52
5.6.2. Freundlich adsorpsiyon izotermi .....	54
5.6.3. BET izotermi.....	54
5.6.4. Temkin İzotermi .....	55

## BÖLÜM 6

DENEYSEL TASARIM.....	57
6.1. Deneysel Tasarımın Kullanım Alanları .....	58
6.2. Deneysel Tasarım İlkeleri ve Stratejisi .....	58
6.2.1. Deneysel tasarım ilkeleri .....	59
6.2.1.1. Rassallaştırma .....	59
6.2.1.2. Tekrarlama .....	59

6.2.1.3. Bloklama.....	59
6.2.2 Deneysel tasarım stratejisi .....	60
6.3. Deneysel Tasarımda Kullanılan Yöntemler .....	61
6.3.1. Tam faktöriyel deneysel tasarım yöntemleri.....	61
6.3.2. Kesirli faktöriyel deneysel tasarımı .....	62
6.3.3. Cevap yüzey yöntemleri (RSM) .....	63
6.3.3.1. Merkezi kompozit tasarım .....	66
6.3.3.2. Box-Behnken tasarımı .....	66
<b>BÖLÜM 7</b>	
<b>LİTERATÜR ARAŞTIRMASI .....</b>	<b>69</b>
<b>BÖLÜM 8</b>	
<b>MATERYAL VE YÖNTEM.....</b>	<b>77</b>
8.1. Kullanılan Cihazlar .....	77
8.2. Kullanılan Kimyasal Maddeler .....	80
8.3. Kullanılan Adsorbentler .....	80
8.4. Pestisit Çözeltilerinin Hazırlanması.....	81
8.5. Deneysel Çalışmaların Planlanması.....	81
8.6. Deneylerin Yapılışı .....	84
8.6.1. Deneysel tasarım deneyleri .....	84
8.6.2. Kinetik deneyleri.....	84
8.6.3. Adsorpsiyon izoterm deneyleri .....	84
8.7. Pestisit Analizi .....	85
8.7.1 Kalibrasyon Grafiklerinin Oluşturulması .....	85
8.8. Hesaplamalar.....	88
8.9. Teorik Çalışma.....	89
<b>BÖLÜM 9</b>	
<b>ARAŞTIRMA BULGULARI.....</b>	<b>90</b>
9.1. Deneysel Tasarım Sonuçları .....	91
9.1.1. Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için deneysel tasarım sonuçları.....	91
9.1.2. Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için deneysel tasarım sonuçları.....	99
9.1.3. Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için deneysel tasarım sonuçları.....	107
9.1.4. Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için deneysel tasarım sonuçları.....	115
9.1.5. Box-Behnken Deneysel Tasarımı Optimizasyon Sonuçlarının Karşılaştırılması ve Yorumlanması .....	123
9.2. Adsorpsiyon Kinetiğinin İncelenmesi.....	124
9.2.1. Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için adsorpsiyon kinetiğinin incelenmesi.....	125
9.2.2. Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için adsorpsiyon kinetiğinin incelenmesi.....	131
9.2.3. Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için adsorpsiyon kinetiğinin incelenmesi.....	137
9.2.4. Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonuna ait adsorpsiyon kinetikleri.....	143

9.3. Adsorpsiyon İzoterminin İncelenmesi .....	149
9.3.1. Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için adsorpsiyon izoterminin incelenmesi.....	150
9.3.2. Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için adsorpsiyon izoterminin incelenmesi.....	153
9.3.3. Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için adsorpsiyon izoterminin incelenmesi.....	156
9.3.4. Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için adsorpsiyon izoterminin incelenmesi.....	160
9.4. Elde edilen sonuçların literatürde yer alan verilerle karşılaştırılması.....	163
BÖLÜM 10	
SONUÇ VE ÖNERİLER.....	167
KAYNAKLAR.....	170
EK A	
OPTİMİZASYON VERİLERİ .....	180
EK B	
ADSORPSİYON KİNETİĞİ MODELLERİNE AİT VERİLER.....	189
EK C	
ADSORPSİYON İZOTERMİ DENEYLERİNE AİT KİNETİK MODEL VERİLERİ.....	210

## SİMGE LİSTESİ

---

$q_e$	Dengede birim adsorban tarafından adsorplanmış adsorbat miktarı, mg/g
$q_t$	Birim adsorban tarafından adsorplanmış adso, mg/g
$q_{max}$	Birim adsorban tarafından adsorplanmış maksimum adsorbat miktarı, mg/g
$C_0$	Başlangıçta çözeltideki adsorbat konsantrasyonu, mg/L
$C_t$	Çözeltideki adsorbat konsantrasyonu, mg/L
$C_e$	Adsorbatın denge konsantrasyonu, mg/L
$V$	Çözeltinin hacmi, L
$M$	Kullanılan adsorban miktarı, g
$S$	Standart sapma değeri
$R^2$	Regresyon katsayısı
$k_1$	1. Mertebe kinetik hız sabiti, $dk^{-1}$
$k_2$	2. Mertebe kinetik hız sabiti, $g\ mg^{-1}\ dk^{-1}$
$\alpha$	Elovich kinetik modelinde adsorpsiyon hızını ifade eden sabit, $mg\ g^{-1}\ dk$
$\beta$	Elovich kinetik modelinde yüzey kaplama derecesi ve adsorpsiyon aktivasyon enerjisi ile ilgili sabit, $g\ mg^{-1}$
$k_p$	Partikül içi difüzyon hız sabiti, $mg\ g^{-1}\ dk^{-2}$
$c$	Partikül içi difüzyon modelinde adsorban ile adsorbat arasında oluşan tabakanın kalınlığı hakkında bilgi veren sabit, $mg\ g^{-1}$
$R_L$	Dağılma sabiti
$\alpha_L$	Adsorpsiyon enerjisine bağlı Langmuir izotermi sabiti, L/mg
$K_L$	Adsorbanın adsorptivitesine bağlı Langmuir izotermi sabiti, L/mg
$K_F$	Freundlich sabiti, $(mg^{1-1/n}\ L^{1/n}\ g^{-1})$
$n$	Adsorpsiyon yoğunluğunu veren Freundlich sabiti
$K_B$	BET izotermi sabiti, L/mol



## KISALTMA LİSTESİ

---

ABD	Amerika Birleşik Devletleri
ANOVA	Analysis of Variance
BASF	Badische Anilin and Soda Fabric
BET	Brunaur, Emmett and Teller
DDT	Dichlorodiphenyltrichloroethane
FAO	Food and Agricultural Organization of United Nations
GTÖ	Gıda ve Tarım Örgütü
IUPAC	International Union of Pure and Applied Chemistry
MSE	Hata Karelerinin Oranı
MSM	Model Karelerinin Oranı
PPDB	Pesticide Properties Database
RNA	Ribonükleik Asit
RSM	Response Surface Method
SSE	Hatanın Kareler Toplamı
SSM	Model Kareler Toplamı
SST	Model ve Hatanın Kareler Toplamı
UV	Ultraviolet

## ŞEKİL LİSTESİ

	Sayfa
Şekil 2. 1	Pestisitlerin kullanım amaçlarına göre sınıflandırılması [15]..... 6
Şekil 2. 2	Dünyadaki 5 büyük bölgede pestisit satış tutarları [20]..... 7
Şekil 2. 3	1990-2010 yılları arasında dünya üzerindeki pestisit kullanımı [22] ..... 7
Şekil 2. 4	Türkiye’deki pestisit çeşitlerinin kullanım oranları [20] ..... 8
Şekil 2. 5	Tarım alanına uygulanan pestisitın atmosfere karışma anı [20] ..... 14
Şekil 2. 6	Su bünyelerine pestisit kontaminasyonunun yolları [41]..... 15
Şekil 2. 7	Pestisitlerin su bünyesine kontaminasyonundaki noktasal ve noktasal olmayan kaynaklar [43] ..... 16
Şekil 3. 1	Bentazonun molekül yapısı [44]..... 18
Şekil 3. 2	Bentazon’un üretimindeki sıralı tepkimeler [47]..... 19
Şekil 3. 3	Metalaxyl’in molekül yapısı [63]..... 24
Şekil 3. 4	Metalaxyl’in üretimindeki sıralı tepkimeler [47]..... 24
Şekil 4. 1	Oksijen ve pestisit arasında gerçekleşen ozonizasyon reaksiyonu mekanizması [70]..... 30
Şekil 5. 1	Adsorban gözenek yapısı [96] ..... 42
Şekil 5. 2	Aktif karbonun gözenek yapısı [97] ..... 43
Şekil 5. 3	BET izoterm modelinde adsorpsiyon tabakaları [98] ..... 54
Şekil 8. 1	pH metre ..... 77
Şekil 8. 2	Terazi ..... 78
Şekil 8. 3	Etüv ..... 78
Şekil 8. 4	Orbital çalkalayıcı ..... 79
Şekil 8. 5	Mikrosantrifüj ..... 79
Şekil 8. 6	UV Spektrofotometre ..... 80
Şekil 8. 7	Ön işlem sonrası deneylerde kullanıma hazır hale getirilen kestane (a) ve badem (b) kabukları ..... 81
Şekil 8. 8	Bentazon için oluşturulan kalibrasyon grafiği ..... 87
Şekil 8. 9	Metalaxyl için oluşturulan kalibrasyon grafiği ..... 87
Şekil 9. 1	Bentazon’un badem kabuğu ile adsorpsiyonundan elde edilen deney adsorpsiyon verileri ile Box-Behnken tasarım modelinden elde edilen teorik adsorpsiyon verilerinin karşılaştırılması ..... 93
Şekil 9. 2	Bentazon’un badem kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği ..... 96
Şekil 9. 3	Bentazon’un badem kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve pestisit konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği ..... 96

Şekil 9. 4	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve adsorpsiyon süresi parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	97
Şekil 9. 5	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonunda pestisit konsantrasyonu ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyon etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği.....	97
Şekil 9. 6	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonunda adsorpsiyon süresi ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği.....	98
Şekil 9. 7	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonunda adsorpsiyon süresi ve pestisit konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	98
Şekil 9. 8	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonundan elde edilen deneysel adsorpsiyon verileri ile Box-Behnken tasarım modelinden elde edilen teorik adsorpsiyon verilerinin karşılaştırılması .....	101
Şekil 9. 9	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	104
Şekil 9. 10	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve pestisit konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	104
Şekil 9. 11	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve adsorpsiyon süresi parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	105
Şekil 9. 12	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda pestisit konsantrasyonu ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği.....	105
Şekil 9. 13	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda adsorpsiyon süresi ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği.....	106
Şekil 9. 14	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda adsorpsiyon süresi ve pestisit konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	106
Şekil 9. 15	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonundan elde edilen deneysel adsorpsiyon verileri ile Box-Behnken tasarım modelinden elde edilen teorik adsorpsiyon verilerinin karşılaştırılması .....	109
Şekil 9. 16	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	112
Şekil 9. 17	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve pestisit konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	112
Şekil 9. 18	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve adsorpsiyon süresi parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	113
Şekil 9. 19	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonunda pestisit konsantrasyonu ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği.....	113

Şekil 9. 20	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonunda adsorpsiyon süresi ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği.....	114
Şekil 9. 21	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonunda adsorpsiyon süresi ve pestisit konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	114
Şekil 9. 22	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonundan elde edilen deneysel adsorpsiyon verileri ile Box-Behnken tasarım modelinden elde edilen teorik adsorpsiyon verilerinin karşılaştırılması .....	117
Şekil 9. 23	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	120
Şekil 9. 24	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve pestisit konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	120
Şekil 9. 25	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve adsorpsiyon süresi parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	121
Şekil 9. 26	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda pestisit konsantrasyonu ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği.....	121
Şekil 9. 27	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda adsorpsiyon süresi ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği.....	122
Şekil 9. 28	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda adsorpsiyon süresi ve pestisit konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	122
Şekil 9. 29	Bentazon'un badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 6. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	125
Şekil 9. 30	Bentazon'un badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 8, 18 ve 22. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	126
Şekil 9. 31	Bentazon'un badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 24. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesideğerleri.....	126
Şekil 9. 32	Bentazon'un badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 3, 21 ve 27. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	127
Şekil 9. 33	Bentazon'un badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 16, 4 ve 15. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	127
Şekil 9. 34	Bentazon'un badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 14, 19 ve 23. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	128
Şekil 9. 35	Bentazon'un badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 5. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	128

Şekil 9. 36	Bentazon'un badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 7, 13 ve 20. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	129
Şekil 9. 37	Bentazon'un badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 9. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	129
Şekil 9. 38	Bentazon'un kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 6. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	131
Şekil 9. 39	Bentazon'un kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 2, 8 ve 18. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri.....	132
Şekil 9. 40	Bentazon'un kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 24. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri.....	132
Şekil 9. 41	Bentazon'un kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 10, 21 ve 27. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	133
Şekil 9. 42	Bentazon'un kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 11, 4 ve 15. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	133
Şekil 9. 43	Bentazon'un kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 14, 19 ve 23. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	134
Şekil 9. 44	Bentazon'un kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 5. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri grafiği.....	134
Şekil 9. 45	Bentazon'un kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 7, 13 ve 20. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	135
Şekil 9. 46	Bentazon'un kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 9. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	135
Şekil 9. 47	Metalaxyl'in badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 6. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	137
Şekil 9. 48	Metalaxyl'in badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 8, 18 ve 22. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	138
Şekil 9. 49	Metalaxyl'in badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 24. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri.....	138
Şekil 9. 50	Metalaxyl'in badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 10, 21 ve 27. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	139
Şekil 9. 51	Metalaxyl'in badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 1, 4 ve 11. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri.....	139

Şekil 9. 52 Metalaxyl'in badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 14, 19 ve 23. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	140
Şekil 9. 53 Metalaxyl'in badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 5. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	140
Şekil 9. 54 Metalaxyl'in badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 13, 7 ve 20. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	141
Şekil 9. 55 Metalaxyl'in badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 9. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	141
Şekil 9. 56 Metalaxyl'in kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 6. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	143
Şekil 9. 57 Metalaxyl'in kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 2, 8 ve 18. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri.....	144
Şekil 9. 58 Metalaxyl'in kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 24. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri.....	144
Şekil 9. 59 Metalaxyl'in kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 3, 21 ve 27. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	145
Şekil 9. 60 Metalaxyl'in kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 1, 4 ve 11. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri.....	145
Şekil 9. 61 Metalaxyl'in kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 14, 19 ve 23. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	146
Şekil 9. 62 Metalaxyl'in kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 5. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	146
Şekil 9. 63 Metalaxyl'in kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 7, 13 ve 20. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	147
Şekil 9. 64 Metalaxyl'in kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 9. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	147
Şekil 9. 65 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için farklı adsorbent konsantrasyonlarında zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	150
Şekil 9. 66 Bentazon'un badem kabukları ile adsorpsiyonu için Freundlich izotermi grafiği.....	152
Şekil 9. 67 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için farklı adsorbent konsantrasyonlarında zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	153
Şekil 9. 68 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Freundlich izoterm modeli grafiği.....	156

Şekil 9. 69 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için farklı adsorbent konsantrasyonlarında zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	157
Şekil 9. 70 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Freundlich izoterm modeli grafiği.....	159
Şekil 9. 71 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için farklı adsorbent konsantrasyonlarında zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri .....	160
Şekil 9. 72 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Freundlich izoterm modeli grafiği.....	163

## ÇİZELGE LİSTESİ

	Sayfa
Çizelge 2. 1	2006-2013 yılları arasında Türkiye'deki pestisit kullanımı [23] ..... 8
Çizelge 2. 2	En çok kullanılan pestisitler ve yasal güvenlik konsantrasyonları [98], [118] ..... 17
Çizelge 3. 1	Bentazon'un kimyasal ve fiziksel özellikleri [44]..... 20
Çizelge 3. 2	Bentazon'un farklı hayvanlar üzerindeki testleri ve akut toksisite sonuçları / D: Dişi, E: Erkek [44], [50], [51], [52], [53], [54], [55], [56], [57], [58], [59], [60] ..... 22
Çizelge 3. 3	Metalaxyl'in kimyasal ve fiziksel özellikleri [63] ..... 25
Çizelge 3. 4	Metalaxyl'in farklı hayvanlar üzerindeki testleri ve akut toksisite sonuçları [61], [64]..... 28
Çizelge 5. 1	Kimyasal ve fiziksel adsorpsiyon arasındaki farklar [94]..... 40
Çizelge 5. 2	$R_L$ (dağılma) sabiti değerleri ve izoterm tipleri [93] ..... 53
Çizelge 6. 1	3 faktör ve 2 seviyeli tam faktöriyel deneysel tasarım örneği [105]..... 62
Çizelge 6. 2	ANOVA analizinin istatistiksel değerlendirmesi [106] ..... 65
Çizelge 6. 3	4 parametrelili (A, B, C, D) 3 seviyeli (-1, 0, +1) bir Box-Behnken tasarımı [108] ..... 68
Çizelge 7. 1	Bentazon, Metalaxyl, badem kabuğu ve kestane kabuğu ile ilgili literatürde yer alan bazı adsorpsiyon çalışmaları ..... 74
Çizelge 8. 1	Adsorpsiyon prosesi için deneysel tasarım ile incelenen parametre değerleri..... 82
Çizelge 8. 2	Box-Behnken deneysel tasarımı deney seti..... 83
Çizelge 8. 3	Bentazon için kalibrasyon grafiği verileri..... 86
Çizelge 8. 4	Metalaxyl için kalibrasyon grafiği verileri..... 86
Çizelge 9. 1	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonunun deneysel tasarım sonuçları ..... 91
Çizelge 9. 2	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen deneysel tasarım modelinin ANOVA analizi..... 92
Çizelge 9. 3	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen deneysel verilerin model denklemden elde edilen teorik veriler ile karşılaştırılması ..... 94
Çizelge 9. 4	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonunun Box-Behnken deneysel tasarımından elde edilen optimum koşullar ve bu koşullarda ulaşılabilecek maksimum % teorik ve deneysel adsorpsiyon değeri ..... 95
Çizelge 9. 5	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonunun deneysel tasarım sonuçları ..... 99



Çizelge 9. 6	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen deneysel tasarım modelinin ANOVA analizi.....	100
Çizelge 9. 7	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen deneysel verilerin model denklemden elde edilen teorik veriler ile karşılaştırılması .....	102
Çizelge 9. 8	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonunun Box-Behnken deneysel tasarımından elde edilen optimum koşullar ve bu koşullarda ulaşılabilecek maksimum % teorik ve deneysel adsorpsiyon değeri .....	103
Çizelge 9. 9	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonunun deneysel tasarım sonuçları .....	107
Çizelge 9. 10	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen deneysel tasarım modelinin ANOVA analizi.....	108
Çizelge 9. 11	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen deneysel verilerin model denklemden elde edilen teorik veriler ile karşılaştırılması .....	110
Çizelge 9. 12	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonunun Box-Behnken deneysel tasarımından elde edilen optimum koşullar ve bu koşullarda ulaşılabilecek maksimum % teorik ve deneysel adsorpsiyon değeri .....	111
Çizelge 9. 13	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonunun deneysel tasarım sonuçları .....	115
Çizelge 9. 14	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen deneysel tasarım modelinin ANOVA analizi.....	116
Çizelge 9. 15	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen deneysel verilerin model denklemden elde edilen teorik veriler ile karşılaştırılması .....	118
Çizelge 9. 16	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonunun Box-Behnken deneysel tasarımından elde edilen optimum koşullar ve bu koşullarda ulaşılabilecek maksimum % teorik ve deneysel adsorpsiyon değeri .....	119
Çizelge 9. 17	Box-Behnken deneysel tasarımı optimizasyon sonuçları .....	123
Çizelge 9. 18	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Yalancı 2. Mertebe kinetik model sabitleri ve istatistiksel veriler.....	130
Çizelge 9. 19	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Yalancı 2. Mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	136
Çizelge 9. 20	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Yalancı 2. Mertebe kinetik model sabitleri ve istatistiksel veriler.....	142
Çizelge 9. 21	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Yalancı 2. Mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	148
Çizelge 9. 22	Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerinin badem ve kestane kabukları ile adsorpsiyonu için maksimum denge adsorpsiyon kapasiteleri ve bu değerlerin elde edildiği deneysel koşullar.....	149
Çizelge 9. 23	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen denge verileri .....	150
Çizelge 9. 24	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Langmuir izoterm modeli sonuçları .....	151
Çizelge 9. 25	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Freundlich izoterm modeli sonuçları .....	151
Çizelge 9. 26	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için BET izoterm modeli sonuçları .....	151
Çizelge 9. 27	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Temkin izoterm modeli sonuçları .....	152

Çizelge 9. 28	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen denge verileri .....	154
Çizelge 9. 29	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Langmuir izoterm modeli sonuçları .....	154
Çizelge 9. 30	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Freundlich izoterm modeli sonuçları .....	154
Çizelge 9. 31	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için BET izoterm modeli sonuçları .....	155
Çizelge 9. 32	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Temkin izoterm modeli sonuçları .....	155
Çizelge 9. 33	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen denge verileri .....	157
Çizelge 9. 34	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Langmuir izoterm modeli sonuçları .....	158
Çizelge 9. 35	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Freundlich izoterm modeli sonuçları .....	158
Çizelge 9. 36	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için BET izoterm modeli sonuçları .....	158
Çizelge 9. 37	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Temkin izoterm modeli sonuçları .....	159
Çizelge 9. 38	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu sonucu elde edilen denge verileri .....	161
Çizelge 9. 39	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Langmuir izoterm modeli sonuçları .....	161
Çizelge 9. 40	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Freundlich izoterm modeli sonuçları .....	161
Çizelge 9. 41	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için BET izoterm modeli sonuçları .....	162
Çizelge 9. 42	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Temkin izoterm modeli sonuçları .....	162
Çizelge 9. 43	Elde edilen sonuçların literatürde yer alan verilerle karşılaştırılması...	164
Çizelge EK-A. 1	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 programı tarafından ekonomik bazda önerilen diğer optimum proses koşulları .....	181
Çizelge EK-A. 2	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 programı tarafından önerilen optimum proses koşulları.....	182
Çizelge EK-A. 3	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 programı tarafından ekonomik bazda önerilen diğer optimum proses koşulları .....	183
Çizelge EK-A. 4	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 programı tarafından önerilen optimum proses koşulları.....	184
Çizelge EK-A. 5	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 programı tarafından ekonomik bazda önerilen diğer optimum proses koşulları .....	185
Çizelge EK-A. 6	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 programı tarafından önerilen optimum proses koşulları.....	186
Çizelge EK-A. 7	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 programı tarafından ekonomik bazda önerilen diğer optimum proses koşulları .....	187

Çizelge EK-A. 8	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 programı tarafından önerilen optimum proses koşulları.....	188
Çizelge EK-B. 1	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için 1. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	190
Çizelge EK-B. 2	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için 2. mertebe inetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	191
Çizelge EK-B. 3	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için yalancı 1. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	192
Çizelge EK-B. 4	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Elovich kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	193
Çizelge EK-B. 5	Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için partikül içi difüzyon kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	194
Çizelge EK-B. 6	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için 1. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	195
Çizelge EK-B. 7	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için 2. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	196
Çizelge EK-B. 8	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için yalancı 1. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	197
Çizelge EK-B. 9	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Elovich kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	198
Çizelge EK-B. 10	Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için partikül içi difüzyon kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	199
Çizelge EK-B. 11	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için 1. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	200
Çizelge EK-B. 12	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için 2. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	201
Çizelge EK-B. 13	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için yalancı 1. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	202
Çizelge EK-B. 14	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Elovich kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	203
Çizelge EK-B. 15	Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için partikül içi difüzyon kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	204
Çizelge EK-B. 16	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için 1. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	205
Çizelge EK-B. 17	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için 2. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	206
Çizelge EK-B. 18	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için yalancı 1. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	207
Çizelge EK-B. 19	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Elovich kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	208
Çizelge EK-B. 20	Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için partikül içi difüzyonu kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler .....	209
Çizelge EK-C. 1	Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için 1. mertebe kinetik modeli sonuçları .....	211
Çizelge EK-C. 2	Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için 2. mertebe kinetik modeli sonuçları .....	211
Çizelge EK-C. 3	Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için yalancı 1. mertebe kinetik modeli sonuçları...	212
Çizelge EK-C. 4	Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için yalancı 2. mertebe kinetik modeli sonuçları...	212

Çizelge EK-C. 5	Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için Elovich kinetik modeli sonuçları.....	213
Çizelge EK-C. 6	Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için partikül içi difüzyon kinetik modeli sonuçları	213
Çizelge EK-C. 7	Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için 1. mertebe kinetik modeli sonuçları .....	214
Çizelge EK-C. 8	Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için 2. mertebe kinetik modeli sonuçları .....	214
Çizelge EK-C. 9	Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için yalancı 1. mertebe kinetik modeli sonuçları...	215
Çizelge EK-C. 10	Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için yalancı 2. mertebe kinetik modeli sonuçları...	215
Çizelge EK-C. 11	Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için Elovich kinetik modeli sonuçları.....	216
Çizelge EK-C. 12	Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için partikül içi difüzyon kinetik modeli sonuçları	216
Çizelge EK-C. 13	Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için 1. mertebe kinetik modeli sonuçları .....	217
Çizelge EK-C. 14	Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için 2. mertebe kinetik modeli sonuçları .....	217
Çizelge EK-C. 15	Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için yalancı 1. mertebe kinetik modeli sonuçları...	218
Çizelge EK-C. 16	Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için yalancı 2. mertebe kinetik modeli sonuçları...	218
Çizelge EK-C. 17	Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için Elovich kinetik modeli sonuçları.....	219
Çizelge EK-C. 18	Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için partikül içi difüzyon kinetik modeli sonuçları	219
Çizelge EK-C. 19	Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için 1. mertebe kinetik modeli sonuçları .....	220
Çizelge EK-C. 20	Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için 2. mertebe kinetik modeli sonuçları .....	220
Çizelge EK-C. 21	Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için yalancı 1. mertebe kinetik modeli sonuçları...	221
Çizelge EK-C. 22	Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için yalancı 2. mertebe kinetik modeli sonuçları...	221
Çizelge EK-C. 23	Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için Elovich kinetik modeli sonuçları.....	222
Çizelge EK-C. 24	Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için partikül içi difüzyon kinetik modeli sonuçları	222

## ÖZET

---

### **BADEM VE KESTANE KABUĞU KULLANILARAK SULU ÇÖZELTİLERDEN BENTAZON VE METALAXYL PESTİSİTLERİNİN GİDERİMİ: DENEYSEL TASARIM İLE OPTİMİZASYON, ADSORPSİYON KİNETİĞİ VE İZOTERMINİN İNCELENMESİ**

Barış DİLER

Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı

Yüksek Lisans Tezi

Tez Danışmanı: Doç. Dr. Dilek KILIÇ APAR

Pestisitler, tarımcılıkta karşılaşılan problemlerden birkaçı olan yabancı otlar, böcekler ve mantarlar gibi zararlılara karşı, tarımsal ürünlerin kalitesini arttırmak ve tarımsal ürün kaybını minimum seviyede tutmak amacıyla 1940'lerden beri kullanılan kimyasallardır. Pestisitlerin kullanımı, dünya üzerindeki nüfus ve beslenme ihtiyacının artmasıyla, doğru orantılı olarak artmaktadır. Pestisitlerin bilinçsizce ve yoğun şekilde kullanılması nedeniyle tarım alanlarında oluşan pestisit süzülmesi ve sızması, ayrıca pestisit üretimi yapan endüstrilerin atık sularının dikkatsiz ve bilinçsiz şekilde çevreye salınımı sonucunda, su kaynaklarında pestisit kontaminasyonu oluşmaktadır. İlgili endüstrilerin atık sularında pestisit konsantrasyon seviyeleri zaman zaman 500 mg/L gibi yüksek ve tehlikeli değerlere ulaşabilmektedir.

Sulu çözeltilerden atık giderimi için kullanılan birçok yöntem mevcuttur. Bu yöntemler arasında, adsorpsiyon yüksek verim ve kolay uygulanabilirlik avantajlarından dolayı en çok kullanılan prosestir. Adsorpsiyon proseslerinde adsorbentin ucuz ve etkili olması istenir. Adsorpsiyon proseslerinde aktif karbon en çok kullanılan adsorbenttir. Çok geniş yüzey alanına ve birçok organik kirletici için çok yüksek adsorpsiyon kapasitesine sahip olmalarına karşın ticari olarak üretilen aktif karbonlar oldukça pahalıdır. Bu

nedenle gelecek vadeden ucuz alternatif adsorbentlerin bulunması arařtırmacıların ilgisini çeken bir konudur.

Bu çalıřmada, Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerinin sulu çözeltilerden adsorpsiyon yöntemi ile giderimi amaçlanmıřtır. Pestisitlerin giderimi için alternatif adsorbentler olarak tarımsal atık olan kestane ve badem kabukları kullanılmıřtır. Box-Behnken Deneysel Tasarım yöntemi uygulanarak, her bir pestisit ve adsorbent için, pH (2.0, 3.5 ve 5.0), adsorbent konsantrasyonu (1.0, 2.0 ve 3.0 g/50 ml), pestisit konsantrasyonu (25, 50 ve 75 mg/L) ve adsorpsiyon süresi (40, 80 ve 120 dakika) parametrelerinin adsorpsiyon üzerindeki etkileri incelenenmiř ve prosesin optimizasyonu gerçekteřtirilmiřtir. Ayrıca modelleme çalıřmaları gerçekteřtirilmiř ve her bir adsorbent ve pestisit için en uygun adsorpsiyon kinetięi modeli ve izoterm modeli belirlenmiřtir.

**Anahtar Kelimeler:** Bentazon, Metalaxyl, Badem Kabuęu, Kestane Kabuęu, Adsorpsiyon, Box-Behnken Deneysel Tasarımı, Optimizasyon

## ABSTRACT

---

# REMOVAL OF BENTAZON AND METALAXYL PESTICIDES FROM AQUEOUS SOLUTIONS BY ADSORPTION USING ALMOND AND CHESTNUT SHELLS: OPTIMIZATION BY EXPERIMENTAL DESIGN, RESEARCH OF ADSORPTION KINETICS AND ISOTHERMS

Bariş DİLER

Department of Chemical Engineering

MSc. Thesis

Advisor: Assoc. Prof. Dilek KILIÇ APAR

Pesticides are chemicals that have been used since 1940s for raising the food quality and minimize the loss of agricultural products against some of the problems in the agricultural industry such as weeds, insects and funguses. Due to its easy application and effectiveness in a short period of time, the usage of pesticides has been increased with the increase of world population which leads to nutritional requirements. Because of intensive and insensible usage of pesticides, they contaminate to the water resources in the consequences of run-off and percolation from agriculture field and also that careless and insensible disposal of wastewaters to environment by pesticide producers. Pesticide concentrations of wastewaters from those industries can sometimes reach up to high and dangerous levels such as almost 500 mg/L.

There are a lot of methods for removal of pollutant wastes from aqueous solutions. Among those methods, adsorption is the most used process due to its high efficiency and ease of application. The adsorbent in the adsorption processes are required to be cheap and effective. Activated carbon is the most used adsorbent in the adsorption processes. Although activated carbon has very high surface area and high adsorption capacity for many organic pollutants, commercial activated carbon is very expensive. Therefore, finding out promising and cheap alternative adsorbents is an important subject that attracts researchers' intention.

In the present study, removal of Bentazon and Metalaxyl pesticides from aqueous solutions by adsorption method is aimed. Agricultural wastes almond and chestnut shells are used as alternative adsorbent for removal of the pesticides from aqueous solutions. By using Box-Behnken Experimental Design, effects of pH (2.0, 3.5 and 5.0), adsorbent concentration (1.0, 2.0 and 3.0 g/50 ml), pesticide concentration (25, 50 and 75 mg/L) and adsorption time (40, 80 and 120 minutes) on adsorption were investigated and optimizations of the adsorption processes were performed. Also, modelling studies were performed and the most suitable adsorption kinetic models and adsorption isotherm models were determined for each pesticide and adsorbent used.

**Key Words:** Bentazon, Metalaxyl, Almond Shell, Chestnut Shell, Adsorption, Box-Behnken Experimental Design, Optimization



#### 1.1. Literatür Özeti

Son yıllarda, insan nüfusunun hızlı bir biçimde artması, teknoloji ve sanayi alanındaki gelişmelerin hızlanması ve insanların bilinçsizliği gibi faktörler sonucunda oluşan çevre kirliliği dünya çapında bir problem haline gelmiştir. Çevre kirliliğini oluşturan temel unsurlar evsel ve endüstriyel atıklardır.

Artan çevre kirliliği nedeniyle, ekolojik sistem ve insan ırkı için yaşamın temel yapı taşlarından biri olan suyun önemi gün geçtikçe artmaktadır. Ağır metaller, boyalar, pestisitler gibi organik ve inorganik maddeler su kaynaklarına bulaşan, hayvanlar, bitkiler ve insanlar için yüksek derecede zehirli olan bileşiklerdir.

Dünya üzerinde artan gıda ihtiyacına paralel olarak üretimi ve kullanımı gittikçe artan organik zehirli bileşikler içinde en tehlikelilerinden biri olan pestisitlerin, doğal ve içme su kaynaklarına bulaşması canlılar için büyük bir tehdit oluşturmaktadır. Pestisitler, insanlar üzerinde uzun vadede hormon bozuklukları, tekrar eden anormallikler, mutajenik, kanserojenik ve teratojenik hastalıklara neden olurken; kısa vadede, bulantı, kusma, titreme, nefes darlığı, iştahsızlık ve alerjik reaksiyonlar gibi rahatsızlıklara neden olmaktadır. Pestisitlerin su bünyelerine bulaşmasının birçok yolu vardır. Ancak bunlardan en önemlileri: bilinçsiz şekilde tarım alanlarına uygulanan pestisitlerin ve pestisit üreten firmaların atık sularının, yeraltı ve yerüstü sularına karışmasıdır [1], [2], [3], [4], [5].

Dünya üzerinde kullanılan birçok pestisit bulunmaktadır. DDT, Lindan, Heptaklor, Simazin, 2,4-D, Atrazin, Trifularin, Benomyl ve Propiconazole, son yıllarda dünya

genelinde en çok kullanılan pestisitlerdir. Türkiye’de ise Trifularin, 2,4-D, Lindan, Propanil, Paration-metil, Endosülfan, Diklorvos, Bentazon ve Metalaxyl pestisitleri son yıllarda en çok kullanılan pestisitler arasında yer almaktadır [6], [7], [8].

Günümüzde en çok kullanılan pestisit giderim yöntemleri arasında ozonizasyon, fotokimyasal indirgenme, aerobik ve anaerobik biyolojik bozundurma, membran filtrasyonu ve adsorpsiyon prosesleri bulunmaktadır. Bu yöntemler arasında, adsorpsiyon, yüksek verim ve kolay uygulanabilirlik avantajlarından dolayı en çok kullanılan proseslerdir. Adsorpsiyon proseslerinde en çok kullanılan adsorbent aktif karbondur. Ancak, geniş yüzey alanına ve çok yüksek adsorpsiyon kapasitesine sahip olmasına rağmen, aktif karbonun üretim maliyeti yüksektir. Bu nedenle, aktif karbona alternatif olarak, etkin, kolay ulaşılabilen ve düşük maliyetli olan; kil, zeolit, kitosan, selüloz gibi doğal adsorbentlerin, talaş, lignin, yüksek fırın cürufu, atık çamur, kül gibi endüstriyel atıkların ve pirinç kabuğu, kayısı çekirdeği, narenciye kabuğu ve Hindistan cevizi kabuğu gibi tarımsal atıkların adsorpsiyon proseslerinde kullanılabilirliğinin araştırılması gündeme gelmiştir [9].

Badem ve kestane sırasıyla yılda 82850 ve 60019 tonluk üretimleriyle ülkemizde en fazla üretilen sert kabuklu yemişler arasında yer almaktadır [10], [11], [12]. Bu nedenle, bu çalışmada, Türkiye’de en çok kullanılan pestisitler arasında yer alan Bentazon ve Metalaxyl’in sulu çözeltilerden adsorpsiyon ile giderimi için alternatif adsorbent olarak badem ve kestane kabuklarının kullanılabilirliklerinin incelenmesi hedeflenmiştir.

Adsorpsiyon prosesinde, prosesin veriminin artırılması ve yüksek kapasitede adsorpsiyon gerçekleşmesi için adsorpsiyon prosesinin optimizasyonu gerçekleştirilmelidir. Genel olarak klasik optimizasyon yöntemi ile fazla sayıda deney yapılmakta ve incelenen proses hakkında daha az bilgi elde edilmektedir. Deneysel tasarım, ekonomik ve zamansal kısıtlamalar göz önünde bulundurulduğunda klasik optimizasyona göre daha az sayıda deney gerektiren, daha kapsamlı ve daha kısa sürede sonuç veren bir optimizasyon yöntemidir. Deneysel tasarım kullanılarak elde edilen matematiksel model ile en uygun değişken değerleri ayrıca değişkenlerin ve bu değişkenlerin birbirleriyle etkileşimlerinin proses üzerindeki etkileri belirlenebilmektedir [13], [14].

Bu çalışmada, Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerinin badem ve kestane kabukları kullanılarak adsorpsiyon yöntemi ile gideriminde, pH, adsorbent konsantrasyonu,

pestisit konsantrasyonu ve adsorpsiyon süresi parametrelerinin adsorpsiyona etkileri Box-Behnken deneysel tasarım yöntemi kullanılarak incelenmiş ve adsorpsiyon proseslerinin optimizasyonları gerçekleştirilmiştir. Ayrıca, adsorpsiyon kinetikleri ve izotermi incelenerek adsorpsiyon prosesleri için en uygun kinetik ve izoterm modelleri belirlenmiştir.

## **1.2. Tezin Amacı**

Bu çalışmada:

- Atık sulardan adsorpsiyon yöntemi ile Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerinin gideriminde, tarımsal atık olan badem ve kestane kabuklarının adsorbent olarak kullanılabilirliğinin incelenmesi,
- Gerçekleştirilecek olan adsorpsiyon proseslerinin Box-Behnken deneysel tasarım yöntemi kullanılarak optimizasyonu,
- Modelleme çalışmalarıyla adsorpsiyon prosesleri için uygun kinetik ve izoterm modellerinin belirlenmesi,

hedeflenmiştir.

## **1.3. Orijinal Katkı**

Bu çalışmada, daha önce Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerinin adsorpsiyonu için kullanılmamış olan ve ülkemizde bol miktarda açığa çıkan badem ve kestane kabuklarının adsorbent olarak kullanılabilirliği incelenmiştir. Adsorpsiyon parametrelerinin adsorpsiyon verimine olan etkisi ve birbirleriyle olan ilişkisi deneysel tasarım yöntemi kullanılarak araştırılmıştır. Box-Behnken deneysel tasarımı ile minimum sayıda deney yapılmış, dolayısı ile minimum enerji ve iş gücü harcanmış, kısa sürede sonuca ulaşılmış ve hammadde kaybı önlenmiştir. Gerçekleştirilmiş olan deneysel çalışmalar sonucunda, badem ve kestane kabuklarının Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerin gideriminde etkili oldukları tespit edilmiş ve her bir adsorpsiyon prosesi için optimum proses parametreleri belirlenmiştir. Ayrıca, edilen deneysel verilerden yararlanılarak matematiksel modelleme çalışmaları gerçekleştirilmiştir.

Sonuç olarak, Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerinin adsorpsiyonunda alternatif adsorbent olarak badem ve kestane kabuklarının kullanılması ve proses parametrelerinin

optimizasyonu ile ekonomiye ve endüstriye katkı, elde edilen deneysel verilerin yayımlanması ile bilime katkı sağlanmıştır.

## BÖLÜM 2

---

### PESTİSİTLER

Dünyadaki nüfus artışının hızlanmasıyla birlikte günümüzde en büyük problemler beslenme ve tarımcılık alanında yaşanmaktadır. Bilim insanları tarafından, tarımsal ürünlerin kalitesini arttırmak ve tarımsal ürün kaybını minimum seviyede tutmak adına çok çeşitli uygulamalar ve çalışmalar sürdürülmektedir. Bitkileri koruma, tarımsal ürün kaybının minimum seviyede tutulması ve ürün kalitesinin artırılması için uygulanan yöntem pestisit kullanımınıdır. Dünya üzerinde pestisit kullanımı 1940'lerden bu yana devam eden tarımsal ürünleri yabancı zararlı otlardan, mantarlardan ve böceklerden koruma yöntemleri arasında % 95 kullanılma oranı ile en çok geçerliliğe sahip, en etkili ve en kısa sürede sonuç veren yöntemdir.

Dünyadaki tarımsal ürünlerin üretimi, tüketimi, ticareti ve depolanması, tabii kaynakların geliştirilmesi ve ağaçlandırma gibi konularda çalışmalar yürüten Gıda ve Tarım Örgütü (GTÖ)'nün araştırmalarına göre: dünya nüfusunun sadece % 40'ı yeterli seviyede beslenmekte, geriye kalan insanlar besin yetersizliğinden dolayı ölmektedir. Ayrıca, tarımcılıkta pestisit kullanılmadığı takdirde, üründe yaklaşık % 60-65'lere varan kalite ve verim kaybı gözlenmektedir. Pestisit kullanılmadığı durumda yaşanacak yaklaşık % 60'luk bir ürün kaybının, pestisit kullanım maliyetinden çok daha yüksek olması pestisitlerin kullanılmasının kaçınılmaz kılmaktadır [15], [16].

Dünya üzerindeki beslenme ihtiyacının artmasıyla doğru orantılı olarak artan pestisit kullanımı, insan ve çevre sağlığı problemlerini de beraberinde getirmiştir. Tavsiye edilen dozun üzerinde kullanım, gereğinden fazla ilaçlama, gerekmediği halde birden fazla pestisiti karıştırıp ilaçlama yapma ve belirtilmiş son ilaçlama ve hasat dönemi arasındaki zamana dikkat edilmemesi gibi bilinçsiz ve hatalı kullanımlar sonucunda

hem tarım ürünleri, hem insanlar ve doğa bundan olumsuz şekilde etkilenmektedir. Pestisitlerin insan ve çevreye verdiği zararlar, insanoğlunu her geçen gün endişelendirmekte ve bu endişeler ile birlikte yapılan çalışmalar da her geçen gün artmaktadır [15], [17].

## 2.1. Pestisitlerin Sınıflandırılması

Pestisitler, görünüş, fiziksel yapı ve formülasyon şekillerine göre, etkiledikleri zararlı ve hastalık gruplarına göre, bu hastalıkların biyolojik dönemine göre, içerdikleri aktif maddenin cins ve grubuna göre, zehirlilik derecesine ve kullanım tekniğine göre çok değişik şekillerde sınıflandırılırlar. Bunlar arasında en çok kullanılan sınıflandırma şekilleri ise kullanıldıkları zararlı gruplarına ve yapısındaki aktif madde grubuna göre yapılan sınıflandırmalardır. Kullanıldıkları zararlı gruplarına ya da hedef alınan organizmaya göre yapılan sınıflandırmada; en önemli üç büyük pestisit grubu, insektisit, fungusit ve herbisitlerdir [18], [19]. Tüm pestisit grupları ve hangi organizmalara karşı kullanıldıkları Şekil 2.1’de gösterilmiştir.

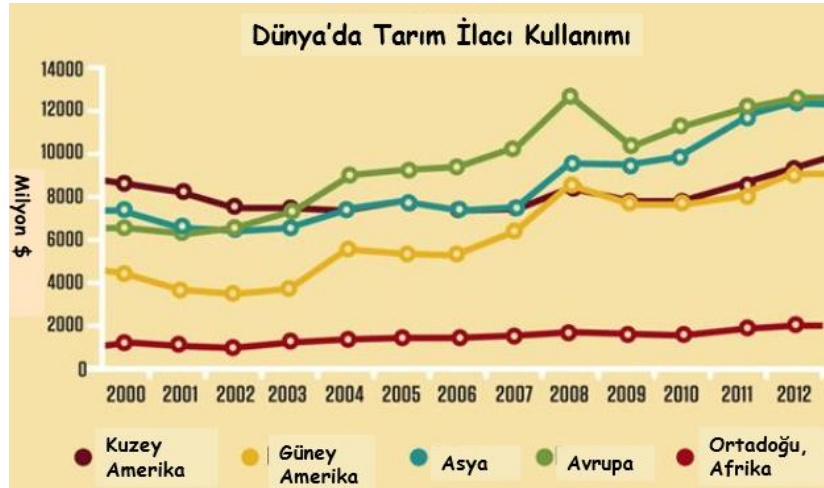
<b>Pestisitler</b>	İnsektisit	(Böceklere karşı)
	Herbisit	(Yabancı otlara karşı)
	Fungusit	(Funguslara karşı)
	Akarisit	(Akarlara karşı)
	Rodentisit	(Kemirgenlere karşı)
	Nematisit	(Nematodlara karşı)
	Molluskisit	(Yumuşakçalara karşı)
	Bakterisit	(Bakterelere karşı)
	Virisit	(Virüslere karşı)

Şekil 2. 1 Pestisitlerin kullanım amaçlarına göre sınıflandırılması [15]

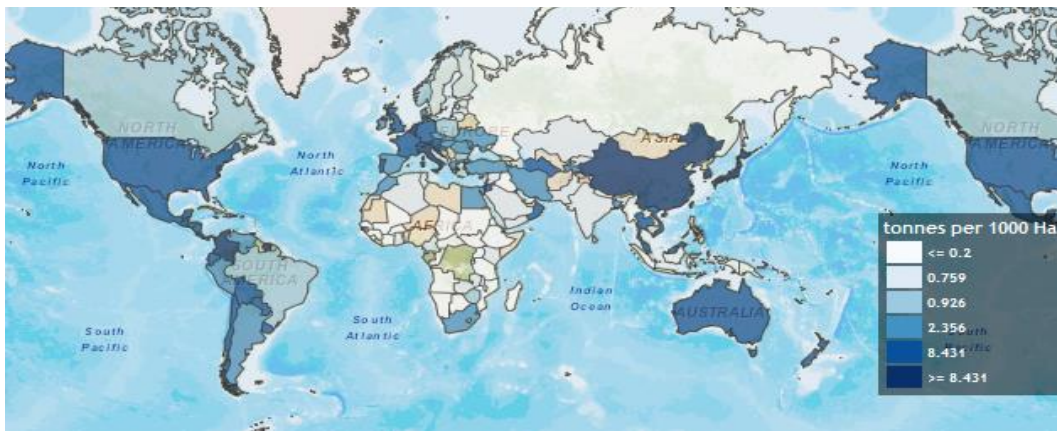
## 2.2. Pestisit Kullanımı

### 2.2.1. Dünyada pestisit kullanımı

Dünyada tarım ilacı üretimi gün geçtikçe artmakla beraber, geçtiğimiz 2-3 yılda yapılan istatistiksel hesaplara göre yıllık ortalama tarım ilacı üretimi 3.2 milyon ton, yıllık satış fiyatı ise 44 milyar dolar civarındadır (Şekil 2.2). ABD, Çin, Fransa, Hindistan, Japonya ve Almanya en çok pestisit üreten ülkelerin başında gelmekte ve bu ülkeleri İsviçre, Avustralya ve İsrail takip etmektedir [22]. 1990-2010 yılları arasında dünya üzerinde kullanılan pestisit miktarları Şekil 2.3'de gösterilmiştir [19], [20]. Şekil 2.3'de görüldüğü üzere Avrupa ülkelerinin tamamı, Çin, ABD, Avustralya, Japonya gibi üretici ülkelerde pestisit kullanımı yoğundur. Japonya, Çin, Almanya, ABD ve Hindistan gibi ülkeler pestisit ihracatında birinci sıradadırlar [22].



Şekil 2. 2 Dünyadaki 5 büyük bölgede pestisit satış tutarları [20]



Şekil 2. 3 1990-2010 yılları arasında dünya üzerindeki pestisit kullanımı [22]

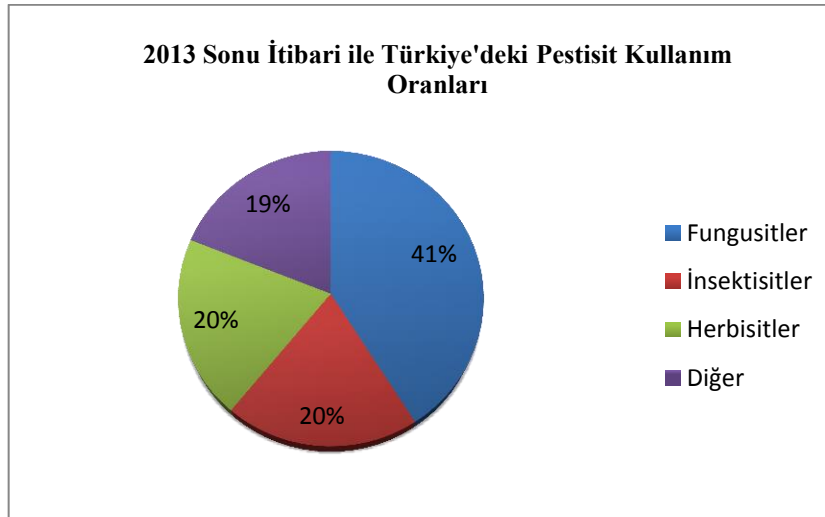
## 2.2.2. Türkiye’de pestisit kullanımı

Türkiye’de 2013 sonu itibari ile tarım ilacı tüketimi ortalama 40000 tondur (Çizelge 2.1) [21], [22]. Bu miktarın % 41’ini fungusitler, % 20’sini insektisitler, % 20’sini herbisitler ve % 19’unu da diğer gruplar oluşturmaktadır (Şekil 2.4).

Çizelge 2. 1 2006-2013 yılları arasında Türkiye’deki pestisit kullanımı [23]

Tarımsal ilaç kullanımı (Ton)							
	İnsektisit	Fungusit	Herbisit	Akarisit	Rodentisit	Diğer	Toplam
2006	7628	19900	6956	902	3	9987	45376
2007	21046	16707	6669	966	51	3277	48716
2008	9251	17863	6177	737	351	5613	39992
2009	9914	17396	5961	1533	78	2302	37184
2010	7176	17546	7452	1040	147	5344	38705
2011	6120	18124	7407	1062	421	6978	40112
2012	7264	15525	7351	859	247	8766	40012
2013	7741	16248	7336	858	129	7128	39439

Bu pestisitlerin yıllık satış tutarı ise yaklaşık 500 milyon dolardır. Türkiye’de 334 adet ruhsatlı etkili madde ve 2012 yılı sonu itibariyle 5628 adet ruhsatlı bitki koruma ürünü bulunmaktadır. Bunların 4996 tanesi pestisit, 35 tanesi biyolojik mücadele ajanı, 30 tanesi biyopreparat, 182 tanesi bitki gelişim düzenleyici (BGD), 3 tanesi bitki ekstraktı ve 75 tanesi ise tuzak ve feromanlardır [20].



Şekil 2. 4 Türkiye’deki pestisit çeşitlerinin kullanım oranları [20]



### **2.3. Pestisit Kullanımının Amaçları**

Tarımsal mücadelede birçok yöntem olmasına rağmen, kimyasal mücadele (pestisit kullanımı) en çok kullanılan yöntemdir. Çünkü kimyasal mücadele yüksek etkinliğinin yanında, bilinçli ve kontrollü kullanıldığında ekonomiktir, hızlı sonuç verir ve ürünü toksin salgılayan mikroorganizmalardan korur [23].

Pestisit kullanılmadan yapılan tarımsal üretimde % 60, hatta bazı durumlarda % 100 ürün kaybı gerçekleşebilmektedir. Yüksek ve yeterli kalitede tarımsal ürün üretebilmek için pestisitlerin kullanılması mecburidir [24]. Geçmiş yıllarda Avrupa'da yüz binlerce ölüme sebep olmuş olan ve çeşitli tahıllarda (özellikle fındık) görülen çavdarmahmuzu gibi ölümcül fungal hastalıklar ve aflatoksin gibi fungal toksinlerin sebebiyet verdiği kanserler; fungusitler kullanılarak önlenmektedir [25].

Tarımsal ürünlerin yanı sıra, insanlara ve çiftlik hayvanlarına zarar veren bazı zararlı böceklerle karşı da pestisitler kullanılmaktadır. Son yıllarda, Kızılırmak havzasındaki Nevşehir, Niğde ve Kayseri illerinde, Simulium cinsi sinekler, insanları rahatsız ederek bölge turizmini tehdit eder hale gelmiştir. Sorun biyolojik kökenli pestisitler kullanılarak çözülmüştür [26]. Aynı zamanda, ülkemizde Ege bölgesinde turizm faaliyetlerinin en yoğun şekilde yaşandığı şehir olan Balıkesir ve Burhaniye'de de sivrisinek ve karasinekler ile pestisit kullanılarak mücadele edilmektedir [27], [28].

### **2.4. Pestisit Kullanımının Dezavantajları**

#### **2.4.1. İnsanlar üzerindeki etkileri**

Pestisitlerin, tarımsal üretimi arttırması ve tarım ürünlerini zararlılardan koruması gibi ekonomik potansiyelinin yanı sıra, insanlara ve çevreye direkt veya dolaylı olarak zararları da vardır [1]. Günümüzde, çevreye salınan bu kimyasalların insan sağlığına, diğer yaşam formlarına karşı potansiyel risk ve çevreye istenmeyen yan etkiler oluşturduğu kanıtlanmıştır [2], [4]. Pestisit sorunu gelişmiş ve gelişmekte olan ülkelerde çözülmeye çalışılsa da; dünya üzerinde hiçbir insan topluluğu pestisite ve ciddi etkilerine maruz kalmaktan tamamen korunamamaktadır [5] ve yılda yaklaşık 1 milyon insan pestisit zehirlenmesinden hayatını kaybetmekte ve/veya kronik hastalıklara yakalanmaktadır [29].

Pestisitlere maruz kalan yüksek risk guruplarının başında üretim çalışanları, formülasyoncular, spreyciler, karıştırıcılar, dolumcular ve tarım çiftçileri gelmektedir. Pestisitlerin üretiminde ve formülasyonunda çalışan insanların zarar görme ihtimali çok daha yüksektir. Çünkü bu kişiler üretim ve formülasyon sırasında, son ürün olan pestisitler, hammaddeler, zehirli solventler ve çeşitli zehirli kimyasallar ile birebir olarak etkileşimdedirler [30]. Mesleki zehirlenmelerin yanı sıra insanların pestisitlere direkt olarak maruz kalması kazalar ile de meydana gelmektedir. Her iki tür zehirlenmenin ana nedenleri:

- i. Halkın bu konuda yetersiz eğitime sahip olması ve pestisitlerin toksisite potansiyellerinin bilinmemesi,
- ii. Uygun olmayan koşullarda depolama,
- iii. Kaza ile saçılma sonucu gıdalara bulaşma,
- iv. Dikkatsiz yükleme ve taşıma,
- v. Yıkılmamış pestisit kaplarının kullanımı,
- vi. Genel bakım ve atık değerlendirme işlemleri olarak sıralabilir [31].

Pestisitler önerilen şekilde kullanılmadığı zaman atmosfere dağılmaları, gıdalarda kalıntı olarak kalmaları ve su kaynaklarına bulaşmaları ile insan sağlığına tehlike oluşturmaktadır. Pestisitlerin insanlar üzerinde mutajenik, teratojenik ve kanserojenik etkilerinin olduğu saptanmıştır. Ayrıca, pestisitler insan vücuduna nüfus ettiklerinde kısa vadede bulantı, kusma, titreme, nefes darlığı, iştahsızlık ve alerjik reaksiyonlar gibi hastalıklara neden olurken; uzun vadede ise bağışıklık sisteminde zayıflık, hormon bozuklukları, zeka geriliği, tekrar eden anormallikler ve kanser gibi hastalıklara neden olmaktadır [15], [23].

#### **2.4.2. Gıdalara olan etkileri**

Pestisitler, uygulanması gereken dozların üzerinde uygulanması, gereğinden fazla sayıda ilaçlama yapılması, birden fazla ilacın karıştırılarak kullanılması veya son ilaçlama ile hasat dönemi arası zaman farkının dikkate alınmaması gibi bilgisizlik ve eğitimsizlikten kaynaklanan sebeplerden dolayı gıda maddelerinde fazla miktarda kalıntı bırakabilirler. Gıda maddelerindeki kalıntılar yüzünden insanlarda, hayvanlarda ve bitkilerde akut veya kronik zehirlenmeler görülmekte ve gıdanın aroma ve kalitesinde de değişimler meydana gelmektedir [17].

Uygulama sonrasında gıdalarda kalan pestisit kalıntılarının insan, hayvan ve çevre sađlıđına zarar vermeyecek düzeyde olması gerekmektedir. Gıda maddelerindeki pestisit kalıntı miktarlarının önceden tespit edilip, tolerans sınırlarının bilinmesi hem insan ve çevre açısından hem de ihraç gıda ürünlerinin yurtdışından geri dönmemesi için oldukça önem arz etmektedir. Bu nedenle üretilmiş olan her pestisit, piyasaya sürülmeden önce farmakolojik ve toksikolojik analizler ve denemeler sonucunda tolerans sınır değerleri hesaplanır ve bu değerlere göre ilaçlama dozajı belirlenir. Ayrıca, pestisitler gıdalardan hayvanlara, hayvanlardan da hayvanların ürünlerine bulaşır. Örneđin: 0.1 ppm DDT pestisiti içeren yemlerle beslenen ineklerden elde edilen sütlerin 1.2 ppm düzeyinde DDT içerdiği tespit edilmiştir [16].

### **2.4.3. Hedef olmayan organizmalara etkileri**

Gıdalara uygulanan pestisitlerin % 0.015-6.0'sı hedef alınan canlılar ve organizmalara ulaşmakta, geriye kalan % 94-99.9'luk kısım ise agro-ekosistemdeki hedef olmayan organizmalara ve toprađa ulaşmaktadır. Aynı zamanda, çevredeki doğal ekosistemlere sürüklenme ve akıntı sebebiyle kimyasal kirleticiler olarak su kaynaklarına ulaşmaktadırlar [8]. Amacı doğrutusunda canlılara ve organizmalara ulaşan pestisitten geriye kalan kısım agroekosisteme bulaştığı anda yararlı toprak mikroorganizmaları ve böcekler de dahil olmak üzere, hedef olmayan bitkiler, kuşlar, arılar, balıklar ve diğer yabani hayattaki canlılara da zarar verebilmektedir. Örneđin: kentsel bölgelerde yoğun şekilde kullanılan bir insektisit olan Chlorpyrifos pestisitinin, uygulandığı bölgelere yakın sulak alanlarda balık ölümlerine yol açtığı görülmüştür [32], [33]. Herbisitler de balıklara zehirli etki yapmaktadırlar. ABD Çevre Koruma Ajansının çalışmalarına göre, güçlü bir herbisit olan Trifluralin'in hem sođuk hem de sıcak su balıkları için yüksek oranda zehirli olduđu görülmüştür [34]. Aynı zamanda, farklı testler sonucunda Trifluralin'in balıklarda omurga bozukluklarına yol açtığı görülmüştür [35]. Bunun haricinde, dünya çapında yunusların pestisit zehirlenmesi yaşadığı rapor edilmiştir. Yunus gibi etçil deniz memelileri besin zincirinde yüksek trofik seviyede bulunmaktadır ve toksik maddeleri metabolize eden enzimleri düşük aktivitededir. Dolayısıyla, vücutlarındaki pestisit birikim oranı diğer su canlılarına göre çok daha yüksek olmaktadır. Bundan dolayı, yunuslar ve köpekbalıkları gibi etçil deniz hayvanları pestisit gibi zehirli kimyasallara karşı daha duyarlıdırlar [36]. Ayrıca, herbisitler yabani otları etkisiz hale getirmek için kullanıldığından herbisitlerin su bölgelerine bulaşmasıyla su canlılarının bundan zarar görmesi de muhtemel olacaktır. Yapılan bir

çalışmada, Oksadiazon herbisitinin alglerin üremesini durdurduğu görülmüştür. Aynı zamanda, Atrazin ve Alaklor herbisitlerinin de alg hücrelerine zarar verdiği, fotosentezi ve büyümeyi durdurduğu görülmüştür [37], [38]. Yapılan çalışmalarda böcekler, örümcekler ve kuşların yaşadıkları habitatların doğaya kontamine olan herbisitler tarafından zarar gördüğü ve dolaylı olarak hayvanları etkilediği görülmüştür. 2,4-D pestisiti uygulanan bölgelerde örümcek ve karabid böceklerinin popülasyonunda düşme görülmüş ve Glyphosate uygulanan bölgelerde yaşayan kuşların sayısında da ciddi düşüşler olduğu belirlenmiştir [39], [40]. Pestisitlere maruz kalan balık, kuş ve böcek gibi hayvanların ölüm sayılarında artış ve üreme potansiyellerinde azalış meydana gelmesinin yanı sıra, pestisitlere maruz kalan hedef olmayan organizmalarda pestisitlere karşı dayanıklılık oluşmaktadır. Oluşan bu dayanıklılık sonucunda insanlara hastalık bulaştıran böcek ve parazitler kontrolden çıkmakta ve ekosistemin yapısı ve türlerin sayısında uzun dönemli değişimler görülmektedir [15].

#### **2.4.4. Organizmalarda pestisitlere karşı dayanıklılık oluşumu**

Organizmaların pestisitlere karşı duyarlılık kazanmasının iki yolu vardır. Bunlar: adaptasyon ve dayanıklılıktır. Adaptasyon ve dayanıklılık yakın anlamlı olarak görünseler de birbirlerinden farklıdır. Adaptasyon, bir organizmanın genetik yapısı değişiklik göstermeden bir kimyasal maddeye uyum göstermesi sonucu duyarlılığın azalmasıdır. Dayanıklılıkta ise organizmanın pestisite duyarlılığı genetik yapısındaki bir değişiklik sonucu azalmaktadır. Bu bilgilerin ışığında, dayanıklılık bir mutasyondur ve geri dönüşümü yoktur. Adaptasyonda ise, söz konusu pestisit kullanımını kesilerek organizma yavaş yavaş eski duyarlılık haline getirilebilir. Pestisitlerin kullanımında dayanıklılık kadar adaptasyon da ekonomik açıdan büyük önem taşımaktadır [8].

Organizmalarda pestisitlere karşı oluşan dayanıklılık, pestisitlerin insanlara ve çevreye karşı olan etkinliklerini ve piyasa ömürlerini etkilemektedir. Bir pestisite duyarlılık azaldıkça, o pestisit o organizmaya olan etkinliği de azalmaktadır. Pestisit uygulayıcısı ise genellikle, gerçekleşen bu etkinlik düşüşünü kapatıp eski etkinliği elde edebilmek adına doz yükseltmesine gitmektedir. Böylece, çevrede pestisit kalıntılarının birikimi ve yoğunluğu artmaya başlamaktadır. Aynı zamanda, organizmalarda oluşan çeşitli tipteki dayanıklılıklar sonucunda yüksek dozdaki pestisit uygulaması hem maliyetin artmasına hem de bitkilerde fitotoksiteye neden olmakta, alınan ürün veriminde düşüslere yol açmakta ve hem üründe hem de çevrede kalıntı ve kirlilik miktarının artmasına neden olmaktadır [15].

## **2.5. Pestisitlerin Çevredeki Durumu**

Pestisitler çevreye salındığında birçok durum gerçekleşebilir. Bazen, herbisitlerin bitkilerin kök kısımlarına süzülerek ulaşması daha iyi hasır ve yabancıotu kontrolü sağlarken, bazen de çevreye salınan pestisit çok zararlı olabilir. Çevreye bulaşan pestisit doğadaki akıbeti ise pestisit karakteristiğine (sudaki çözünürlük, toprağa adsorplanma eğilimi ve pestisit kararlılığı) ve toprak karakteristiğine (kum, kil ve organik madde) bağlıdır. Çevreciler, bilim adamları ve tarımcılar pestisitlerin avantajlarının yanı sıra, bu kimyasalların çevreye ve su kaynaklarına bulaşmasının uzun vadedeli zararlı etkilerinin farkındadırlar ve bu konu hakkında çalışmalarını sürdürmektedirler. Pestisitlerin uygulama alanının dışındaki hedef olmayan bölgelere taşınımı 3 probleme sebep olmaktadır. Çiftçilere ekonomik açıdan kayıp getirmekte, bitki zararlılarının kontrolünde zorlaşma ve verimsizlik doğurmakta ve çevre kirliliği oluşturmaktadır [41].

Pestisitler genellikle noktasal kaynaklı kirlenme ve noktasal kaynaklı olmayan kirlenme olmak üzere iki şekilde atmosfere, su bünyelerine ve toprağa karışmaktadır. Noktasal kaynaklı kirlenme genellikle pestisit endüstrisi atık suları, atık arıtım tesisleri, depolama alanları gibi spesifik ve teşhis edilebilir bölgelerden bulaşmakta iken; noktasal kaynaklı olmayan kirlenme ise hava yolu ile sürüklenme, yerüstü ve yeraltı su yollarına pestisit akışı gibi daha geniş alanlardan bulaşmaktadır [41].

### **2.5.1. Pestisitlerin Başlangıç Dağılımı**

Pestisitlerin başlangıç dağılımı, pestisit havadaki, topraktaki, sudaki, bitkilerdeki ve hayvanlardaki dağılım oranını tanımlamaktadır. Bu oran, topografi, bitki örtüsü, hava koşulları, pestisit uygulanma formülasyonu, uygulanma metodu ve uygulanma hızına bağlıdır. Pestisit, ardışık uygulama zamanları arasında dağılıma uğrayabilir veya uygulama alanı ve bitki kökü sınırlarının dışına çıkabilir. Uygulama alanının dışına çıkan pestisitler hem ekonomik bir kayıptırlar, hem de yeraltı ve yerüstü sularını kirletir [41].

### **Dayanıklılık (Yarılanma Ömrü)**

Bir pestisit yarı miktarının bozunması için gereken zamana o pestisit persistansı denir. Örneğin: bir pestisit yarılanma ömrü 15 gün ise, uygulanma zamanından 15 gün sonra pestisit % 50'si; 30 gün sonra toplam uygulanan miktarının % 25'i uygulama ortamında bulunacaktır. Genellikle, yarılanma ömrü uzadıkça, pestisit uygulanma

bölgesinden başka bölgelere taşınma ve hareket olasılığı artmaktadır. Yarılanma ömürlerine göre pestisitler 3 kategoriye ayrılmaktadır: yarılanma ömrü 30 günden az olan *dayanaksız pestisitler*, yarılanma ömrü 30-100 gün arasında olan *kısmen dayanıklı pestisitler* ve yarılanma ömrü 100 günden fazla olan *dayanıklı pestisitler* [41].

Pestisit dayanıklılığı, foto-bozunma, kimyasal bozunma ve mikrobiyal bozunma proseslerinden etkilenir. Bozunmanın hızı, pestisin kimyasal yapısı ve özellikleri ile ilgili olduğu kadar çevre şartlarıyla da alakalıdır. Aynı zamanda, bitki ile toprak arasındaki pestisit dağılımı, sıcaklık, su ve toprak pH'ı, mikrobiyal aktivite ve toprağın diğer karakteristik özellikleri de pestisit dayanıklılığını etkiler [41].

### 2.5.2. Pestisitlerin çevreye bulaşma yolları

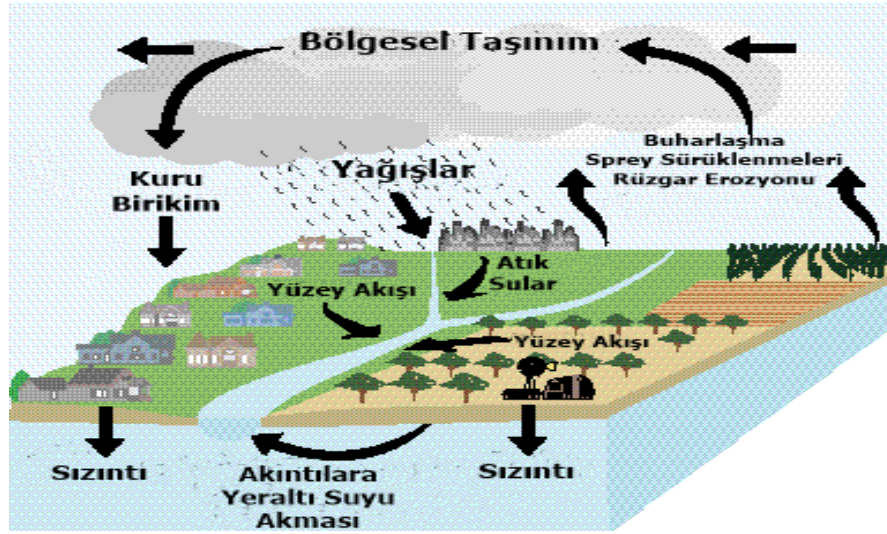
Önceden de bahsedildiği gibi, pestisitler çevreye noktasal ve noktasal olmayan kaynaklardan bulaşmaktadır. Noktasal kaynaklar, daha spesifik ve teşhis edilebilir kaynaklar iken; noktasal olmayan kaynaklar ise pestisitinin çevreye sürüklenmesi ve süzülmesi ile havaya, su bünyelerine ve toprağa bulaşan daha geniş alanda etki eden kaynaklardır.

Pestisitler atmosfere, uygulama sonrası sürüklenme, uygulama sonrası buharlaşma veya pestisit uygulanmış bölgeden rüzgar erozyonu gibi doğa olayları sonucunda karışmaktadır (Şekil 2.5). Pestisitlerin atmosfere karışması, canlıların solunum yolu ile pestisite maruz kalmasına ve kuru birikim ve yağışlar ile pestisitlerin su kaynaklarına karışmasına sebep olmaktadır. Atmosfer ile taşınım pestisitinin, uygulama bölgesinden hassas bölgelere taşınımına ve çevrede birikimine sebep olmaktadır [41].



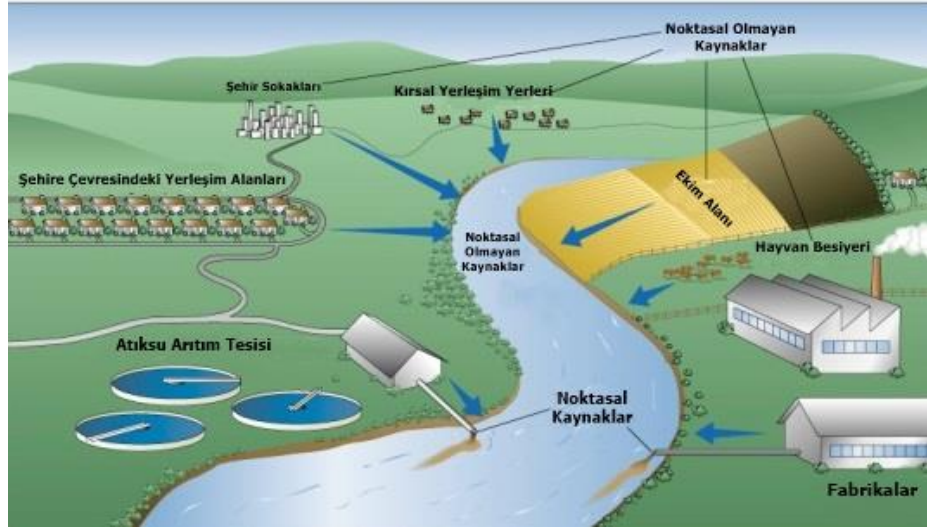
Şekil 2. 5 Tarım alanına uygulanan pestisitinin atmosfere karışma anı [20]

Pestisitlerin su bünyelerine bulaşması ekosisteme ve içme su kaynaklarına büyük bir tehdit oluşturmaktadır. Pestisitlerin su bünyelerine bulaşımı difüzyon kaynaklı veya noktasal kaynaklı olabilmektedir. Su bünyelerine difüzyon kaynaklı pestisit kontaminasyonu tarımsal alanlara pestisit uygulamasının bir sonucudur. Difüzyon kaynaklı kontaminasyonlar genellikle tarımsal alanlardaki tahliye bölgelerinden, daimi akışlı yüzeysel sızıntılardan, pestisit uygulanan bölgedeki toprak erozyonundan, sprey uygulaması sürüklenmelerinden meydana gelmektedir. Onun aksine, noktasal kaynaklı kontaminasyonlar, bölgesel alanlardan gelmekte ve spesifik veya sınırlı sayıda bölgelerden su bünyelerine karışmaktadır (Şekil 2.6-2.7). Su bünyelerine noktasal kaynaklı kontaminasyonlar genellikle endüstriyel alanlardan gelen atık suların, kanalizasyon sularından ve kaza sonucu oluşan dökülmelerden meydana gelmektedir. Aynı zamanda, tarımsal veya endüstriyel olmayan pestisit kullanımları sonucunda da pestisit kontaminasyonu gerçekleşmektedir. Bunlar: karayollarına, demiryollarına veya otopark alanları gibi kentsel yerleşim yerlerine yapılan pestisit uygulamalarıdır [41].



Şekil 2. 6 Su bünyelerine pestisit kontaminasyonunun yolları [41]

Pestisit ve pestisit ile alakalı diğer endüstrilerden gelen atıksuların yönetimi konusunda çalışmalar yapılmaktadır. Bir atığın zararlı atık olarak kabul edilebilmesi için tutuşabilirlik, koroziflik, reaktiflik ve zehirlilik kriterlerinden birisini göstermesi gerekmektedir. Pestisit endüstrisi atıksuları ABD Çevre Koruma Ajansı ve Tehlikeli Atıkları Kontrolü Yönetmeliği (1995)'ne göre zehirlilik ve tutuşabilirlik kriterleri sebebiyle zararlı atık olarak kabul edilmektedirler. Tarımsal ve endüstriyel alanlardan gelen atıksuların pestisit konsantrasyonları zaman zaman 500 mg/L'e ulaşmakta ve bazen de bu konsantrasyon seviyesini geçmektedir [42].



Şekil 2. 7 Pestisitlerin su bünyesine kontaminasyonundaki noktasal ve noktasal olmayan kaynaklar [43]

Pestisitlerin çevredeki güvenlik konsantrasyonları son derece önemlidir. Güvenlik konsantrasyonları, pestisitler üretilmeden önce veya üretildikten sonra yapılan çeşitli testler sonucunda belirlenir. Güvenlik konsantrasyon seviyeleri ışığında, tarımsal bölgeye yapılacak pestisit uygulaması sonrasında ve pestisit üretimi sonrasında pestisitlerin çevreyi kirlenmemesi açısından uygun önlemlerin alınması gerekmektedir. Dünya üzerinde en çok kullanılan pestisitler ve bu pestisitleri yasal güvenlik konsantrasyonları Çizelge 2.2’de gösterilmiştir.



Çizelge 2. 2 En çok kullanılan pestisitler ve yasal güvenlik konsantrasyonları [98], [118]

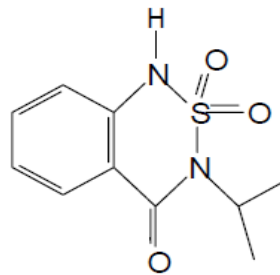
<b>Pestisit Türü</b>	<b>Ticari Adı</b>	<b>Kimyasal Grubu</b>	<b>Yasal İçme Suyu Güvenlik Konsantrasyonu (µg/L)</b>
<b>İnsektisitler</b>	DDT <sup>a</sup>	Klorlanmış Hidrokarbon	2
	Lindan <sup>b</sup>	Klorlanmış Hidrokarbon	0.2
	Heptaklor <sup>a</sup>	Organofosfat (fosfor esteri)	0.03
<b>Herbisitler</b>	Diquat <sup>a</sup>	Bipiridin Tuzu	10
	Paraquat <sup>c</sup>	Bipiridin Tuzu	1
	2,4-D <sup>a</sup>	Fenoksinsetik Asit	30
	Simazin <sup>a</sup>	S-triazin	2
	Atrazin <sup>a</sup>	S-triazin	2
	Trifularin <sup>a</sup>	Nitroanilin	20
<b>Fungusitler</b>	Benomyl <sup>c</sup>	Karbamat (purin)	100
	Propiconazole <sup>c</sup>	Triazol	300

a: Dünya Sağlık Örgütü Yönetmeliği, b: Amerika Birleşik Devletleri Çevre Koruma Ajansı Yönetmeliği, c: Avustralya Su Yönetmeliği

### BENTAZON VE METALAXYL

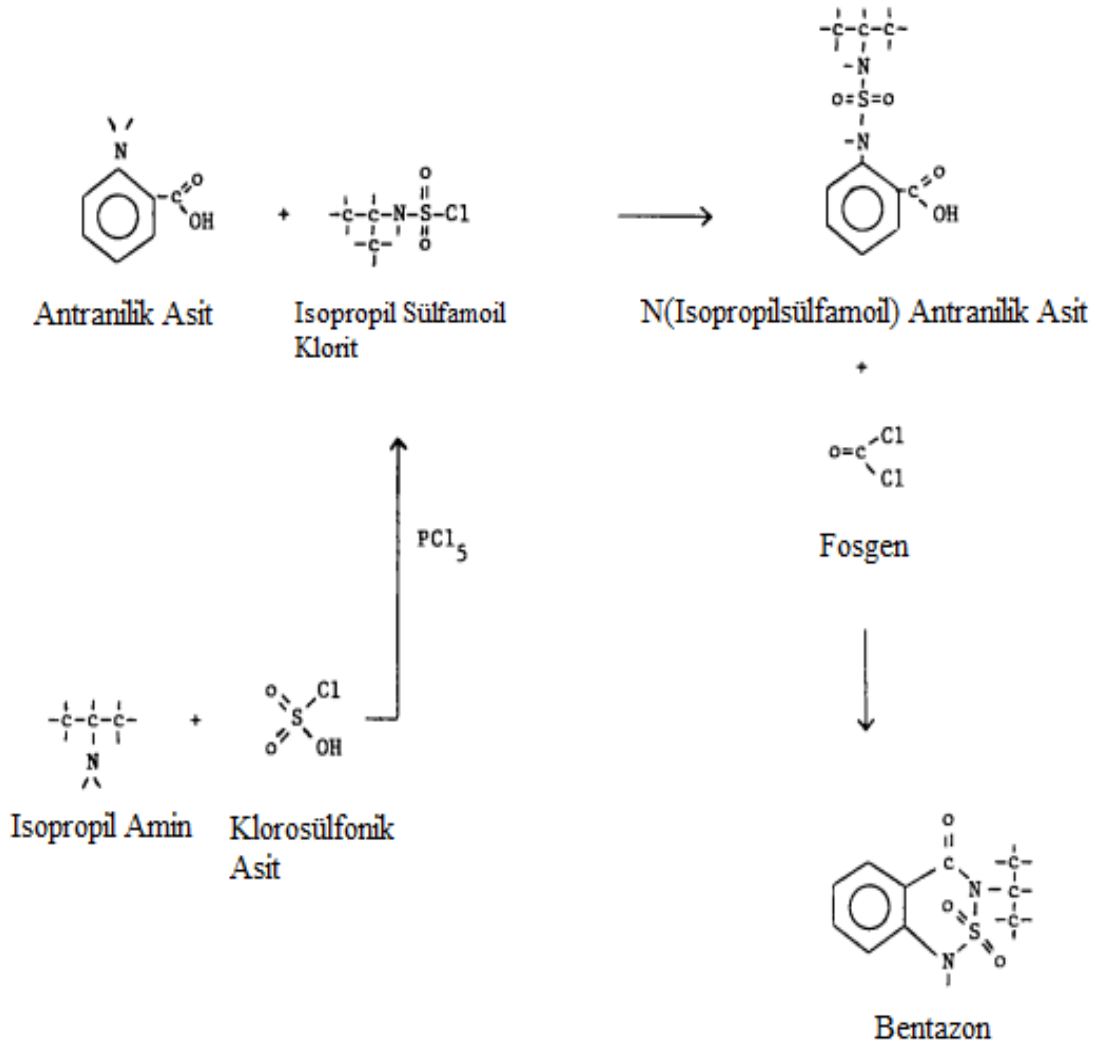
#### 3.1. Bentazon

Kimyasal yapısı Şekil 3.1’de görülen Bentazon, yapısında nitrojen ve sülfür atomlarını aynı anda bulunduran heterosiklik bileşik olan thiazol grubundandır. Bentazon’un yapısında thiazol grubunun yanında bir benzen halkası bulunmaktadır. Bununla birlikte, Bentazon, thiazol grubunun bir alt grubu olan thiadizin grubuna da girmektedir. Nitrojen ve sülfür atomlarını içeren bir tane aromatik ve bir tane heterosiklik olmak üzere çift halkalı bir yapıya sahiptir [39]. Molekül formülü  $C_{10}H_{12}N_2O_3S$  olan Bentazon, IUPAC adlandırma sisteminde ise 3-isopropil-(1H)-2,1,3-benzothiadiazin-4(3H)-1,2,2-dioksit olarak adlandırılmaktadır. Analitik Bentazon yaklaşık olarak % 92-99 arasında saftır. Dünya Sağlık Örgütü ve Gıda ve Tarım Örgütü’nün 1991 yılında yaptığı açıklamaya göre teknik bentazonun ana safsızlıkları genellikle % 2.4 oranında Nisopropilsülfamoil antranilik asit, % 1.0 oranında sodyum klorür, % 0.6 oranında antranilik asit olmaktadır [45].



Şekil 3. 1 Bentazonun molekül yapısı [44]

Bentazon, Şekil 3.2’de de görüldüğü gibi antranilik asit ile isopropil sülfamoil kloridin reaksiyonu sonucu oluşan N(isopropilsülfamoil) antranilik asitin, karbonil diklorit (fosgen (CCl<sub>2</sub>O)) ile siklize edilmesi prosesiyle üretilmektedir [44]. Ticari ismiyle Basagran (ayrıca Herbetox, Leader, Laddock) olarak bilinen Bentazon, ekim yapılmış alanlardaki gıdaların ve yem bitkilerinin aralarında yetişen geniş yapraklıların, yaban otlarının ve hasır otlarının kontrolünde kullanılan bir herbisittir. Bentazon, yonca, fasülye, mısır, yerfıstığı, bezelye, biber, tıbbi nane, pirinç, süpürge darısı, soya fasülyesi ve yeşil nane bitkilerinin geniş yapraklılar, yabanotları ve hasırotu kontrolünde kullanılmasının yanı sıra, süs bitkisi ve çimenlerin de kontrolünde kullanılmaktadır [46].



Şekil 3. 2 Bentazon’un üretimindeki sıralı tepkimeler [47]

Bentazonun önemli kimyasal ve fiziksel özellikleri Çizelge 3.1’de verilmiştir.

Çizelge 3. 1 Bentazon’un kimyasal ve fiziksel özellikleri [44]

<b>Özellikler</b>	<b>Değerler</b>
<b>Molekül Ağırlık</b>	240.30 g/mol
<b>Renk</b>	Renksiz (beyaz)
<b>Fiziksel Hal</b>	Kristal
<b>Koku</b>	Kokusuz
<b>Erime Noktası</b>	~138 °C
<b>Parlama Noktası</b>	> 100 °C
<b>Buhar Basıncı</b>	$1.7 \cdot 10^{-6}$ mm Hg (20 °C)
<b>Koroziflik</b>	Korozif değil
<b>Yoğunluk</b>	1.47 g/cm <sup>3</sup>
<b>Çözünme Katsayısı</b>	pKa = 3.3 (24 °C)
<b>Çözünürlük (Analitik Bentazon)</b>	(w/w) 20 °C
<b>Su</b>	570 mg/L
<b>Ortalama K<sub>D</sub> değeri</b>	0.6 cm <sup>3</sup> /g (0.18 – 3.06)
<b>Ortalama K<sub>OC</sub> değeri</b>	42 cm <sup>3</sup> /g (13.3 – 175.6)
<b>Aseton</b>	% 150.7
<b>Benzen</b>	% 3.3
<b>Kloroform</b>	% 18
<b>Etanol</b>	% 86.1
<b>Log (K<sub>ow</sub>) değeri</b>	-0.456 (pH 7, 22 °C)

Bentazon, fotosentetik elektron transferi inhibitörü olarak görev yapan benzotiadiazion bağlı bir herbisittir. Bentazon’un seçiciliği, ekili bitkilerin Bentazon’u hızlı bir şekilde

6-OH ve 8-OH Bentazon'a (Hidroksi Bentazon) metabolize edip, bunları şeker ile birleştirmesi kabiliyeti ile açıklanır. Çoğu zararlı ot, bu metabolik kabiliyete sahip olmadığı için fotosentez işlemleri durur ve bu nedenle ölür [44].

### **3.1.1 Bentazon'un insanlara, diğer canlılara ve doğaya etkileri**

Dünyada piyasaya dağıtılan ve satılan bütün pestisitlerin, bilimsel çalışmalar sonucunda çevreye veya insanlara aşırı yüksek riskler oluşturmayacak şekilde kullanımı tescillenmekte ve kullanımında belirli standartlar oluşturulmaktadır. Amerika Birleşik Devletleri Çevre Koruma Ajansı ve Kaliforniya Toplum Sağlığı Hedefi kuruluşlarının Bentazon pestisiti için hazırladığı raporlarda Bentazon'un insanlara ve çevreye olan riskleri kayıt altına alınmıştır [44], [46]. İçme sularında bulunması gereken maksimum Bentazon konsantrasyonu Dünya Sağlık Örgütü tarafından 30 µg/L olarak belirlenirken, ABD Çevre Koruma Ajansı tarafından bu değer 300 µg/L olarak belirlenmiştir [48].

Topraktaki Bentazon bozunması genel olarak huminler, humik asitler ve fulvik asitler gibi toprak organik maddelerinin mikrobiyal proseslerinden sonra oluşan çökelti ile Bentazon'un birleşimiyle, bileşiğin karbondioksit (CO<sub>2</sub>) oksidatif mineralizasyonu sonucunda gerçekleşir. Bentazon'un toprak ile bağlanma afinitesi düşüktür ( $K_d = 0.176-3.056$ ). Bundan dolayı, toprak altından veya üzerinden süzülerek su kaynaklarına bulaşması beklenmektedir [44].

Sulu ortamdaki Bentazon bozunmasının fotoliz prosesine bağlı olduğu düşünülmektedir. Bu tez sulu ortamda güneş ışığı benzeri ışıktaki ve ortamda titanyum dioksit varlığında yapılan çalışmalarla desteklenmiş ve kanıtlanmıştır. OH-radikallerinin oluşumu sırasında, fotomineralizasyon sonucu CO<sub>2</sub>, inorganik sülfat ve NH<sub>3</sub> ve N<sub>2</sub> gibi nitrojen bileşikleri açığa çıkmaktadır. Bentazon'un pH 5, 7 ve 9 tampon çözeltilerinde hidrolize olmaya dirençli olduğu görülmüştür [44].

Tarımda kullanılması sonucu, Bentazon ve Bentazon'un 6-OH ve 8-OH metabolitleri gıdaların üzerinde bulunabilir [44]. Bentazon oral yol ile alındığında zehirli, deriden absorpsiyon ile alındığında ise az oranda zehirlidir. Oral yol ile Bentazon'a maruz kalan insanlarda kusma, ishal, titreme, zayıflık ve nefes darlığı veya nefes almada zorlanma görülmüştür. Aynı zamanda, gözlerde, deride ve solunum yollarında tahriş edici etkisi vardır. Test hayvanlarında ise hissizlik, uyuşukluk, koordinasyon bozukluğu, bitkinlik, sarsıntı, iştahsızlık, kusma ve ishal semptomları görülmüştür [49].

Bentazonun toksikolojik etkileri, laboratuvar hayvanları üzerinde yapılan testler ile değerlendirilmiştir. Yapılan testlerden elde edilen LD<sub>50</sub> (% 50 öldürücü doz), LC<sub>50</sub> (% 50 öldürücü konsantrasyon) değerleri, test edilen popülasyonun yarısını öldüren doz miktarlarıdır. Yapılan bu testlerin sonuçları Çizelge 3.2’de verilmiştir.

Çizelge 3. 2 Bentazon’un farklı hayvanlar üzerindeki testleri ve akut toksisite sonuçları / D: Dişi, E: Erkek [44],[50], [51], [52], [53], [54], [55], [56], [57], [58], [59], [60]

<b>Hayvan</b>	<b>Test</b>	<b>Test sonucu</b>	<b>Kaynak</b>
Fare ( D, E )	Oral LD <sub>50</sub>	1220 mg/kg	Hofman, 1973
Fare ( D ,E )	Oral LD <sub>50</sub>	1100 mg/kg	Hartley ve Kidd, 1987
Fare ( E )	Oral LD <sub>50</sub>	1780 mg/kg	Hildebrand ve Kirsch, 1982
Fare ( D )	Oral LD <sub>50</sub>	1470 mg/kg	Hildebrand ve Kirsch, 1982
Fare ( E )	Oral LD <sub>50</sub>	2340 mg/kg	Toyoshima ve ark., 1987b
Fare ( D )	Oral LD <sub>50</sub>	2470 mg/kg	Toyoshima ve ark., 1987b
Fare ( D, E )	Oral LD <sub>50</sub>	400 mg/kg	Hartley ve Kidd, 1987
Tavşan ( D, E )	Oral LD <sub>50</sub>	750 mg/kg	Zeller ve Bernstiel, 1969
Kedi ( D, E )	Oral LD <sub>50</sub>	500 mg/kg	Zeller ve Magoley, 1970
Köpek ( D, E )	Oral LD <sub>50</sub>	> 100 mg/kg	Zeller ve Magoley, 1970
Fare	Dermal LD <sub>50</sub>	> 2500 mg/kg	Spencer, 1982
Tavşan ( D, E )	Dermal LD <sub>50</sub>	4000 mg/kg	Spencer, 1982
Fare ( E )	Subkütan LD <sub>50</sub>	970 mg/kg	Toyoshima ve ark., 1987b
Fare ( D )	Subkütan LD <sub>50</sub>	975 mg/kg	Toyoshima ve ark., 1987b
Fare ( E )	Subkütan LD <sub>50</sub>	655 mg/kg	Toyoshima ve ark., 1987a
Fare ( D )	Subkütan LD <sub>50</sub>	580 mg/kg	Toyoshima ve ark., 1987a
Fare ( E )	Intraperitoneal LD <sub>50</sub>	403 mg/kg	Toyoshima ve ark., 1987b
Fare ( D )	Intraperitoneal LD <sub>50</sub>	407 mg/kg	Toyoshima ve ark., 1987b
Fare ( E )	Intraperitoneal LD <sub>50</sub>	383 mg/kg	Kirsch ve Hildebrand, 1983
Fare ( E )	Intraperitoneal LD <sub>50</sub>	> 316 < 383 mg/kg	Kirsch ve Hildebrand, 1983
Fare ( E )	Intraperitoneal LD <sub>50</sub>	494 mg/kg	Tyoshima ve ark., 1987a
Fare ( D )	Intraperitoneal LD <sub>50</sub>	505 mg/kg	Tyoshima ve ark., 1987a
Tavşan	Göz İritasyon LD <sub>50</sub>	Hafif Kaşınma	ABD Çevre Sağlık Örgütü, 1996
Kobay Fare (Gine Domuzu)	Dermal Hassaslaştırma LD <sub>50</sub>	Deri Hassaslaşması	BASF, 1986

Akut toksisite çalışmasında oral yol ile Bentazon dozajlama uygulanması sonucunda farelerde nefes darlığı, ilgisizlik ve duyarsızlık, sendeleyerek yürüme ve bitkinlik;

kedilerde ve köpeklerde ise kusma gibi zehirlenme etkileri görülmüştür. Aynı zamanda, kedilerde kasılma (konvülsiyon) belirtileri görülmüştür. Bentazon, 0.5 gram dozunda ve % 50 w/w formülasyonunda 3 dişi ve 3 erkek tavşanın traşlanmış ve zarar görmemiş cildine 24 saat boyunca uygulanmış ve uygulama deneklerde birinci dereceden tarhiş ve kaşınma ile sonuçlanmıştır [44].

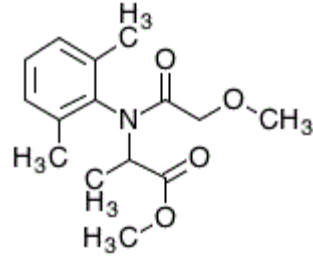
Toksisite testi için yapılan oral dozajlama çalışmalarında 5 tane hamile fareye test edilen en düşük doz olan 400 mg/kg\*gün Bentazon verilmiş ve testler sonucunda 1 veya 2 gün içerisinde anne karnındaki embriyoların öldüğü belirlenmiştir [44].

Bentazon'un aynı zamanda birincil göz tarhişine yol açtığı görülmüştür. 3 erkek ve 3 dişi Beyaz Viyana tavşanının kullanıldığı bir çalışmada, yaklaşık 33 mg Bentazon içeren 0.1 ml Bentazon solüsyonu tavşanların konjunktival göz kesesine uygulanmış ve tavşanların gözleri hiç yıkanmamıştır. 15 günlük uygulama sonucunda korneal bulanma, konjunktival kızarma ve kemosis ve göz akıntısı görülmüştür. Bu deneyler sonucunda Bentazon'un kısmen tarhiş edici ve kaşındırıcı olduğu saptanmıştır. Aynı zamanda, Bentazon'un, deri hassazlaştırması özelliğinin de olduğu kobay Gine domuzları (kobay hamster) üzerinde gerçekleştirilen deneyler sonucunda belirlenmiştir [44].

### 3.2. Metalaxyl

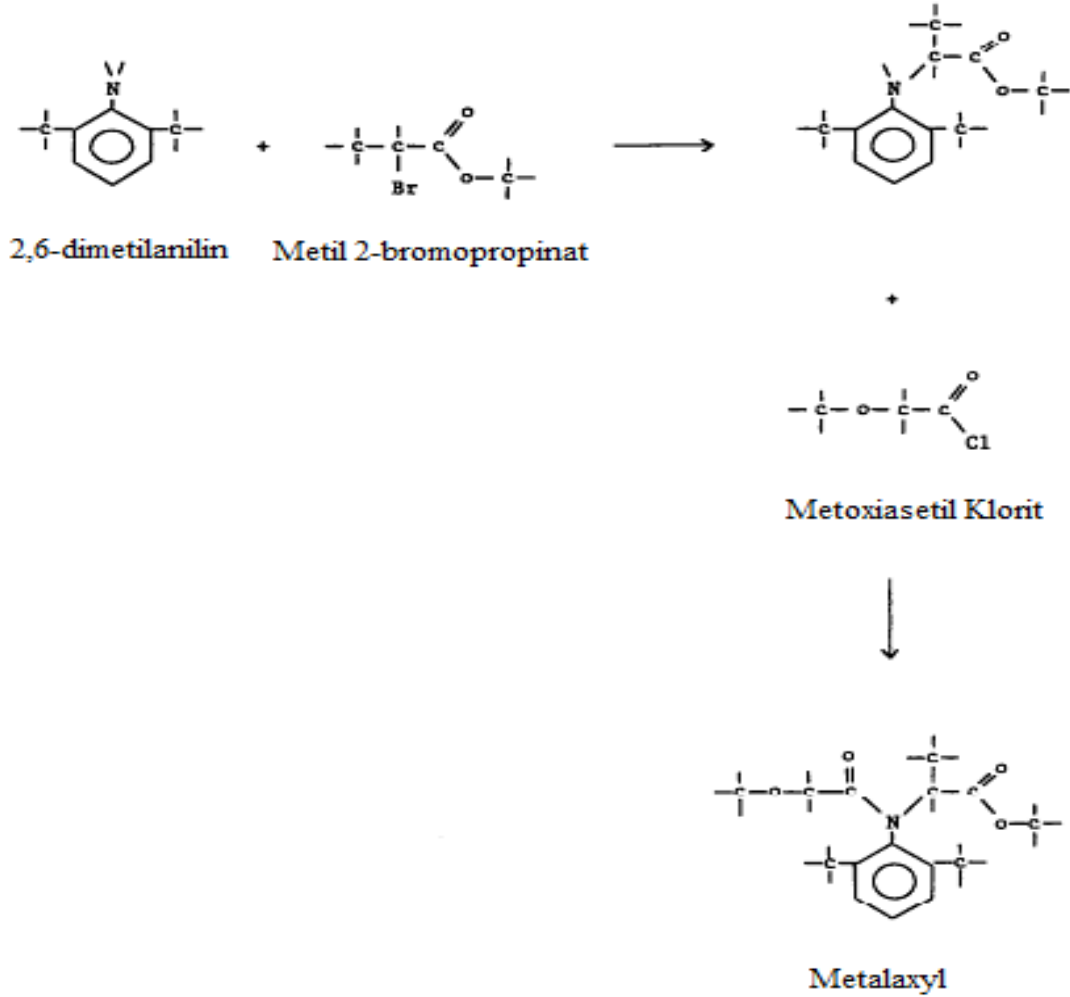
Kimyasal yapısı Şekil 3.3'de görülen Metalaxyl, sistematik bir fonksiyona sahip olan fenilamid grubunda yer alan bir fungusittir. Molekül formülü  $C_{15}H_{21}NO_4$  olan Metalaxyl, IUPAC adlandırma sisteminde methyl N-(metoksiaetil)-N-(2,6-ksilil)-DL-alaninat olarak adlandırılır [61]. Metalaxyl'in yapısında R-enantiomeri ((R)-2-[(2,6-dimetilfenil) metoksiasetilamino] propiyonik asit metil ester) ve S-enantiomeri ((S)-2-[(2,6-dimetilfenil) metoksiasetilamino] propiyonik asit metil ester) eşit miktarlarda bulunmaktadır ve bu iki grubunda tarımcılıkta ayrı görevleri vardır [62].

Metalaxyl, Şekil 3.4'de de görüldüğü gibi sodyum bikarbonat'ın varlığında 2,6-dimetilanilin ile aşırı metil 2-bromopropinat'ın tepkimesinin ardından oluşan ürünün metoksiasetil klorit ile asetilazyon prosesinin sonucunda elde edilir [63]. Metalaxyl, fungusumsu ökaryot grubunda yer alan mantarların (Oomycete) veya su mantarlarının sebep olduğu bitki hastalıklarını kontrol etmek için kullanılan sistematik bir fungusittir. Metalaxyl, aynı zamanda hem patetes ve domates gibi birçok gıdanın ve yem bitkisinin hem de tütün, süs bitkileri, ağaçlar, çalılar, bağlar, çimenler gibi gıda olmayan, yerleşim bölgesindeki bitkilerin ve sera bitkilerinin kontrolünde kullanılır [64].



Şekil 3. 3 Metalaxyl'in molekül yapısı [63]

Apron, Delta-Coat AD, Ridomil ve Subdue ticari isimlerine sahip olan Metalaxyl'in 30'dan fazla tohum ve 100'den fazla tarımsal alanda kullanıldığı kayıt altına alınmıştır. Genellikle soya fasulyesi, patates, turunçgiller, pamuk, soğan, su kabağı, domates, tütün gibi gıdaların kontrolünde kullanılmaktadır [64].



Şekil 3. 4 Metalaxyl'in üretimindeki sıralı tepkimeler [47]



Metalaxyl'in önemli kimyasal ve fiziksel özellikleri Çizelge 3.3'de verilmiştir.

Çizelge 3. 3 Metalaxyl'in kimyasal ve fiziksel özellikleri [63]

<b>Özellikler</b>	<b>Değerler</b>
<b>Molekül Ağırlık</b>	279.33 g/mol
<b>Renk</b>	Renksiz (beyaz)
<b>Fiziksel Hal</b>	Kristal
<b>Koku</b>	Kokusuz
<b>Erime Noktası</b>	71-72 °C
<b>Parlama Noktası</b>	100 °C
<b>Buhar Basıncı</b>	$5.62 \cdot 10^{-6}$ mm Hg (20 °C)
<b>Koroziflik</b>	Korozif değil
<b>Yoğunluk</b>	1.20 g/cm <sup>3</sup> (20 °C)
<b>Çözünme Katsayısı</b>	Çok güçlü asit
<b>Çözünürlük (Analitik Metalaxyl)</b>	
<b>Su</b>	8400 mg/L (20 °C)
<b>Aseton</b>	450 g/L (25 °C)
<b>Benzen</b>	550 g/L (20 °C)
<b>Metanol</b>	650 g/L (20 °C)
<b>Etanol</b>	400 g/L (25 °C)
<b>Toluen</b>	340 g/L (25 °C)
<b>n-Hegzan</b>	11 g/L (25 °C)
<b>n-Oktanöl</b>	68 g/L (25 °C)
<b>Log (K<sub>ow</sub>) değeri</b>	1.65 (pH 7, 20 °C)

Metalaxyl, toz, granül, ıslatılabilir pudra, emülsiyon konsantresi, akıcı konsantresi, kristal ve kullanıma hazır solüsyon formülasyonlarında üretilmektedir [64]. İyileştirici ve koruyucu faaliyeti olan Metalaxyl, mantarların spor üretmesini, gövde büyümesini ve bitkilere karşı yeni hastalıklar üretmesini engellemektedir. Metalaxyl, mantarın fungal nükleik asit sentezini gerçekleştiren RNA Polimeraz-1 enzimini etkisiz hale getirerek etkili olur [65].

### **3.2.1. Metalaxyl'in insanlara, diğer canlılara ve doğaya etkileri**

Dünyada piyasaya dağıtılan ve satılan bütün pestisitlerin, bilimsel çalışmalar sonucunda çevreye veya insanlara aşırı yüksek riskler oluşturmayacak şekilde kullanımı tescillenmekte ve kullanımında belirli standartlar oluşturulmaktadır. Amerika Birleşik Devletleri Çevre Koruma Ajansı kuruluşunun Metalaxyl pestisiti için hazırladığı raporda Metalaxyl'in insanlara ve çevreye olan riskleri kayıt altına alınmıştır [64]. İçme sularında bulunması gereken maksimum Metalaxyl konsantrasyonu ABD Çevre Koruma Ajansı tarafından 420 µg/L olarak belirlenmiştir [66].

Metalaxyl'in üretimi sonucunda ortaya çıkan atık suların çevreye salınması ve fungusit olarak kullanımının sonucunda pestisitinin çevreye kontaminasyonu gerçekleşmektedir. Metalaxyl,  $5.62 \cdot 10^{-6}$  mm Hg (25 °C)'lik buhar basıncına sahiptir. Çevreye atmosfer yolu ile bulaşırsa; atmosferde hem buhar fazında hem de katı parçacık fazında bulunacaktır. Metalaxyl'in buhar fazı, fotokimyasal olarak oluşan hidroksil radikalleriyle tepkimeye girerek atmosferde bozunacaktır. Bu reaksiyon için geçen yarılanma süresi yaklaşık olarak 14 saat olarak tahmin edilmektedir. Metalaxyl'in katı parçacık fazı ise yağış birikimi ve kuru birikim ile atmosferden uzaklaştırılacaktır [63], [67].

Toprak Organik Karbon-Su Dağılım Katsayısı olan  $K_{oc}$  değeri 30 ile 284 arasında olan Metalaxyl, toprak içerisinde yüksek derecede hareketliliğe sahiptir. Toprak üstünden veya toprak altından süzülerek su kaynaklarına bulaşması beklenmektedir. Ayrıca, Metalaxyl'in Henry Kanunu Sabiti yaklaşık olarak  $3.0 \cdot 10^{-9}$  atm\*cm/mol olduğundan nemli toprak yüzeylerinden buharlaşması beklenmemektedir. Ancak, Metalaxyl aeorobik şekilde inkübe edilmiş toprak içerisinde 40 günlük bir yarılanma süresi ile hızlı şekilde bozunmaktadır [63], [67].

Metalaxyl'in sulu ortamda bulunma olasılığı toprak ortamında bulunma olasılığından daha yüksektir. Çünkü metalaxyl doğaya salındığında toprağa ve katı bir yüzeye

adsorbe olmayacağından dolayı su bünyelerine bulaşma olasılığı daha yüksek olmaktadır. Henry Kanunu Sabiti'nin düşük olmasından dolayı su bünyelerinden buharlaşması beklenmemektedir. Ayrıca, Metalaxyl çevre koşulları altında kimyasal hidrolize direnç göstermektedir. Ancak, Metalaxyl, sulu çözeltisinde dalga boyu 290 nm'den yüksek UV ışığı altında 3 saat içerisinde % 10'luk bir bozunmaya uğramaktadır. Metalaxyl, humik asitlerin varlığında yapay güneş ışığına uzun süre (65 saat) maruz kaldığında % 65'lik bozunmaya uğramaktadır [63], [67].

Metalaxyl'in üretildiği veya kullanıldığı çalışma ve iş yerlerinde, direkt soluma ve deri teması ile Metalaxyl'e maruz kalmalar yaşanabilir. Üretimde veya tarımsal bölgelerde çalışanların dışında kalan diğer insanlar ise Metalaxyl kalıntılarını taşıyan gıdalar ile bu pestisite maruz kalabilirler [63], [67]. Metalaxyl, genel olarak düşük akut toksisiteye sahiptir ancak göz tahriş edici özelliğinden dolayı en yüksek 2. Akut toksisite sınıf olan 2. Toksikite Sınıfında yer almaktadır. Test hayvanları üzerinde yapılan uzun süreli kronik çalışmalar sonucunda hayvanların karaciğerlerinde yaralanmalar ve karaciğer ağırlıklarının vücut ağırlıklarına ilişkili olarak arttığı görülmüştür. Tavşanlar için yapılan deri ve göz tahriş testlerinde ise orta dereceli göz ve deri tahriş gözlenmiştir. Aynı zamanda, av köpekleri üzerinde en yüksek dozajda yapılan kronik toksite çalışmasında köpeklerde kan serumu enzimi değerlerinde değişiklikler ve karaciğer ağırlıklarında artışlar gözlenmiştir [64].

Metalaxyl'in toksikolojik etkileri, laboratuvar hayvanları üzerinde yapılan testler ile değerlendirilmiştir. Yapılan testlerden elde edilen LD<sub>50</sub> (% 50 öldürücü doz), ve LC<sub>50</sub> (% 50 öldürücü konsantrasyon) değerleri Çizelge 3.4'de verilmiştir.

Çizelge 3. 4 Metalaxyl'in farklı hayvanlar üzerindeki testleri ve akut toksisite sonuçları [61], [64]

<b>Hayvan</b>	<b>Test</b>	<b>Test sonucu</b>	<b>Kaynak</b>
Fare	Oral LD <sub>50</sub>	669 mg/kg	ABD Çevre Sağlık Örgütü, 1994
Fare	Oral LD <sub>50</sub>	788 mg/kg	ABD Çevre Sağlık Örgütü, 1994
Hamster	Oral LD <sub>50</sub>	7120 mg/kg	ABD Çevre Sağlık Örgütü, 1994
Tavşan	Dermal LD <sub>50</sub>	> 6000 mg/kg	ABD Çevre Sağlık Örgütü, 1994
Tavşan	Göz Tarhişi	Orta Dereceli Tarhiş	ABD Çevre Sağlık Örgütü, 1994
Tavşan	Deri Tarhişi	Orta Dereceli Tarhiş	ABD Çevre Sağlık Örgütü, 1994
Kobay Fare (Gine Domuzu)	Deri Tarhişi	Tarhiş Görülmemiştir	ABD Çevre Sağlık Örgütü, 1994
Kuş (Japon Bildircini)	Oral LD <sub>50</sub>	923 mg/kg	PPDB – University of Herfordshire
Balık (Gökkuşığı Alabalığı)	Oral LC <sub>50</sub>	100 mg/L	PPDB – University of Herfordshire
Bal Arısı	Dermal LD <sub>50</sub>	200 µg/bal arısı	PPDB – University of Herfordshire
Kabuklular (Yengeç, karides vb.)	LC <sub>50</sub>	0.64 mg/L	PPDB – University of Herfordshire

### PESTİSİT GİDERİM YÖNTEMLERİ

Ağır metaller ve diğer kirletici maddelerden farklı olarak, pestisitler mikro düzey konsantrasyonlarda bile çevreye ve doğaya karşı ölümcül etkileri olan zararlı maddelerdir.

Pestisitlerin arıtımında uygulanan güncel su arıtma teknolojileri kimyasal, fiziksel ve biyolojik teknolojiler olarak 3 ana kategoriye ayrılmıştır. İleri oksidasyon prosesleri kullanılarak yapılan kimyasal arıtım yöntemleri, organik bileşenleri imha etme avantajından dolayı son günlerde araştırmacıların dikkatini çekmektedir. Biyolojik arıtma, gelişiminin ilk aşamalarında ve bu konuda hala daha üstesinden gelinmesi gereken birçok zorluk vardır. Diğer yandan, adsorpsiyon ve membran filtrasyonu gibi fiziksel uygulamalar tatmin edici sonuçlar vermesinden ve uygulamalarının kolay olmasından dolayı araştırmacıların dikkatini çekmektedir [68].

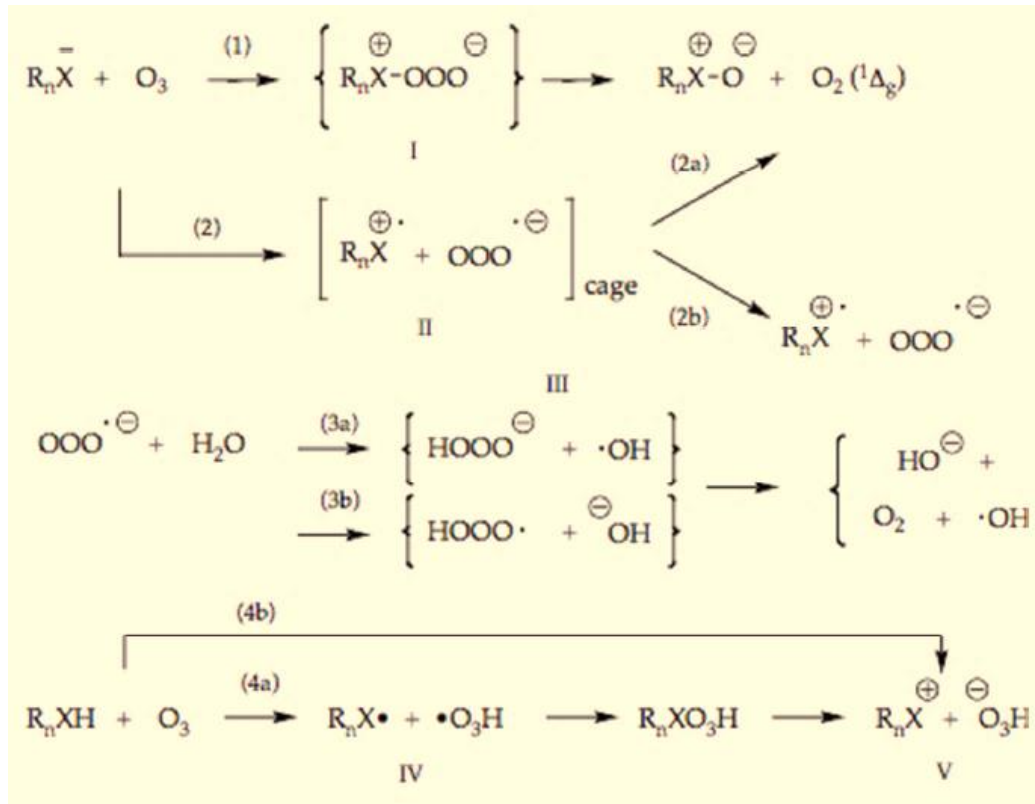
#### 4.1. Kimyasal Giderim Yöntemleri

##### 4.1.1. Ozonizasyon

1800'lerde keşfedilen ve hala aktif şekilde kullanılan popüler bir su arıtım tekniği olan ozonizasyon, günümüzde yaygın şekilde kullanılmaktadır. Ozonizasyon, kontaminasyona uğramış bir sıvıya oksijenli gazın basılması ve bulaşan maddelerin oksijen ile indirgenmesi ilkesine dayanan güçlü bir oksidasyon tekniğidir. Ozonizasyon prosesi ile O<sub>3</sub> (ozon) bileşiği demir, sülfür ve diğer çeşitli metalleri ve kirleticileri oksidize edebilmektedir. Yöntemde, tepkime sonucunda ortaya çıkan yan ürünler, ozon ve oksijen gazlarıyla birlikte sistemi gaz olarak terk ederler. Oksidasyon prosesinden

sonra, çözültide bir miktar da olsa artık ozon kalmaktadır. Ozon'un su içerisindeki yarılanma ömrü yaklaşık 30 dakikadır. Ozon sudan, çözültiyi manyetik karıştırıcı ile karıştırma ve sonikasyon banyosuna koyma gibi çeşitli yöntemlerle ekstrakte edilebilir. Daha geniş ölçekli atık su giderimi yapan fabrikalar karıştırma yöntemini kullanmaktadır [69].

Ozonizasyon prosesini başlatmak için öncelikle bir oksijen kaynağı olan havadan ozon üretilmelidir. Bu proses, havaya doğru elektrik akımı verilmesi ile diatomik oksijenin ( $O_2$ ) ozona ( $O_3$ ) dönüştürülmesi ile gerçekleştirilir. Daha sonra ozon kontamine olmuş suya beslenir. Ozonun kararsızlığından dolayı, ozon molekülü diatomik oksijen ( $O_2$ ) ve bir serbest radikal gruba ( $O^{-2}$ ) indirgenir. Serbest radikal gruplar yüksek derecede kararsızlardır ve bağlanabilecekleri molekül ile bağ kurmadan önce nanosaniyelerdeki bir zaman mertebesinde doğada bulunabilirler. Çözelti içerisindeki oksijen radikal grupları bağlanabilecekleri en yakın bileşiği ararlar ve bağ kurarlar ve bağ kurulması sonucunda ozon ile birlikte sistem dışına çıkacak bileşik oluşturulmuş olur. Oksijen (O) ve pestisit/kirletici (R) arasındaki reaksiyonun mekanizması Şekil 4.1'de gösterilmiştir [70].



Şekil 4. 1 Oksijen ve pestisit arasında gerçekleşen ozonizasyon reaksiyonu mekanizması [70]

Aynı zamanda, ozonizasyon prosesi sırasında sisteme hidrojen peroksit ( $H_2O_2$ ) eklenebilmektedir. Bu işleme, *perozon oksidasyon prosesi* denmektedir. Perozon oksidasyon prosesinin mekanizması klasik ozonizasyon ile aynıdır ancak sisteme hidrojen peroksit eklenmesi ozon molekülünün bozunmasını hızlandırır ve çözültideki hidroksil radikallerinin miktarını artırır. Perozon oksidasyon prosesindeki bu artışın sebebi oksidasyon potansiyeli ile direkt olarak alakalıdır ve oksidasyon potansiyeli ne kadar artarsa, çözülti daha reaktif hale gelmekte ve kirleticiler daha hızlı şekilde arıtılmaktadır. Ancak, standart ozonizasyon prosesinin yerine perozon prosesinin kullanılmasının en büyük dezavantajı hidrojen peroksit maliyetinin yüksek olmasıdır. Bu yüzden endüstride genellikle standart ozonizasyon prosesi tercih edilmektedir [71].

#### 4.1.2. Fotokimyasal İndirgenme

Geleneksel arıtım proseslerine alternatif olarak fotokimyasal indirgenme prosesleri çoğunlukla ışık ışımasının enerji kaynağı olarak kullanılmasıyla gerçekleştirilmektedir. Foton kaynağı olarak doğal güneş ışığının yanında harici bir kaynaktan (Xenon veya Civa buharı lambası) elde edilen UV ışığı da kullanılmaktadır [72]. Atıksular ve su arıtımında kullanılan UV ışığı 100-400 nm dalga boyu arasındaki elektromanyetik ışın formundadır. UV ışınları, 400-315 nm arası UV-A, 315-280 nm arası UV-B, 280-200 nm arası UV-C ve 200-100 nm arası vakum-UV olarak 4'e ayrılmıştır [73].

Kirleticilerin UV ışınlar kullanılarak daha basit bileşiklere parçalanması işlemine fotoliz denir. Fotoliz işlemi, sadece UV kullanılarak yapıldığında çok yavaş gerçekleştiği için genellikle, aktif hidroksik radikalleri sağlamak ve bu radikallerin kirliliklerle bağ oluşturup, oksidize ederek eş zamanlı fotoliz reaksiyonu gerçekleştirmesi için sisteme hidrojen peroksit eklenmektedir. Bunun yanı sıra, yarı iletken katalistler de sisteme eklenebilmektedir. Eklenen yarı iletken katalistler, aktif hidroksil radikallerinin oluşumunu hızlandırarak aynı zamanda diğer radikallerin pestisitlere yönelmesini sağlayarak pestisit parçalanmasını gerçekleştirir. Bu işleme de fotokatalizleme denir [74]. Fotoliz, hidrojen peroksit ile fotolizleme ve fotokatalizleme proseslerinin yanı sıra, foto-fenton, fotosantize endükleme, foto-elektrokatalizleme prosesleri de fotokimyasal yöntemler arasında bulunmaktadır [72]. Bu proseslerin arasında, yarı iletken olarak  $TiO_2$  kullanılarak yapılan fotokatalizleme işleminin, kontamine olmuş hava ve su arıtımında ve saflaştırılmasında gelecek vaad eden bir proses olduğu kanıtlanmıştır [75], [76], [77]. Fotokatalist olarak  $TiO_2$  yerine  $ZnO$ ,  $Fe_2O_3$ ,  $CdS$ ,  $ZnS$  gibi bileşikler de

kullanılabilmektedir. Ancak, TiO<sub>2</sub>'nin yüksek reaktiviteye sahip olması, toksisiteyi düşürmesi, kimyasal açıdan kararlı olması ve fiyatının düşük olması daha çok tercih edilmesine neden olmaktadır [77].

UV/TiO<sub>2</sub> kullanılarak gerçekleştirilen heterojen fotokatalizleme en çok kullanılan fotokatalitik prosestir. Bu proses, yüklerin ayrılmasına neden olan başlangıç uyarılması ile sonuçlanan, 3.2 eV'dan (~390 nm dalga boyundan düşük) daha yüksek enerjili fotonların pestisit üzerine adsorpsiyonuna dayalıdır. Elektron ve elektron-delik çiftlerinin yüksek enerji seviyelerinin oluşması, geniş enerji bant aralığında bulunan yarı iletkenlerin daha yüksek enerji bantlarına saçılmasıyla gerçekleşmektedir. Bu olay sonucunda iletken bantta (e<sub>CB</sub><sup>-</sup>) bir elektron çıkışı ve valans bandında (h<sub>VB</sub><sup>+</sup>) ise pozitif-delik oluşumu gerçekleşmektedir (Eşitlik 4.4). Sırasıyla, (e<sub>CB</sub><sup>-</sup>) ve (h<sub>VB</sub><sup>+</sup>) güçlü oksidize etme ve indirgenme ajanlarıdır. (h<sub>VB</sub><sup>+</sup>), organik bileşiklerle (R) tepkimeye girer ve ortaya çıkan ürünlerin oksidasyonu sonucunda da CO<sub>2</sub> ve H<sub>2</sub>O son ürünleri oluşur (Eşitlik 4.5). Bunun yanı sıra, (h<sub>VB</sub><sup>+</sup>) su ile tepkimeye girerek hidroksil radikal grubunu (OH<sup>-</sup>) oluşturur (Eşitlik 4.6). Böylece, toplam sistemde ikinci en yüksek oksidasyon potansiyeline (2.80 V) sahip radikal grup üretilmiş olur. Açığa çıkan hidroksil radikal grubu da, elektrofilik doğasından ötürü, çözelti içerisindeki elektron zengini olan organik molekülleri oksidize eder ve onları H<sub>2</sub>O ve CO<sub>2</sub>'ye çevirir (Eşitlik 4.7) [77].



## 4.2. Fiziksel Giderim Yöntemleri

Fiziksel giderim yöntemleri, atık su içerisindeki kirlilik yaratan pestisitlerin sulardan elimine edilmesi için kullanılan, eleme, çökertme, filtrasyon, yüzdürme ve adsorpsiyon gibi proseslerdir. Bu proseslerden en çok araştırılanları ve en çok çalışılanları membran filtrasyonu ve adsorpsiyondur.



#### 4.2.1. Membran filtrasyonu

Membran, iki fazı birbirinden ayıran ve bir faz içerisindeki çeşitli kimyasal türlerin taşınımını engelleyen bir bariyerdir. Nanofiltrasyon, mikrofiltrasyon, ultrafiltrasyon ve ters osmoz yöntemleri bilinen ve kullanımı sabitleşmiş membran ayırma proseslerindedir. Ultrafiltrasyon ve mikrofiltrasyon prosesleri ayırma yöntemleri açısından benzerdir. Bu proseslerde moleküller membran porlarının boyutlarına göre elenerek birbirlerinden ayrılır.

Buna karşılık, ters osmoz prosesinde membran porları o kadar küçüktür ki; çözünen kirlenici maddeler, sisteme basınç uygulanması sonrasında membrandan süzülürler ve bir konsantrasyon gradiyenti ile sisteme geri difüzenirler. Böylece, su (çözücü madde) arıtılmış olarak membranın diğer tarafına geçer. Bu süreçte ayırma, maddelerin membran içerisindeki çözünürlüklerindeki farklılıklar ve çözücü maddelerin membran içerisindeki hareketliliklerindeki farklılıklar sayesinde gerçekleşmektedir [68].

Nanofiltrasyon ise geliştirilmiş en son basınçlı membran ayırma prosesidir [68]. Membran prosesleri ve nanofiltrasyon teknikleri, pestisit gideriminde bir potansiyel olarak görülmektedir. Buna ek olarak, nanofiltrasyon prosesi su sertliğini azaltmakta ve nitrat, pestisit ve mikroorganizmaları herhangi bir kimyasal eklemesi olmaksızın su bünyesinden temizlemektedir. Membran ile ayırma prosesinin seçimi membranın karakteristik özelliklerine bağlıdır. Nanofiltrasyonda kullanılan membranlar nanometreye yakın por çapına sahip mikroporlara sahip ve genellikle elektrik yüküdür [90].

1970'lerin başında daha küçük gözenek büyüklüğüne sahip membranların geliştirilmesi ve kontemine olmuş farklı su kaynaklarının filtrasyonunda kullanımının artması ile birlikte, su bünyelerinden pestisitlerin filtrasyonunda kullanılan membranların özelliklerini değiştirme ve daha düşük gözenek büyüklüklerinde membran üretme girişimlerinde bulunulmuştur. Temelde, membran bazlı pestisit filtrasyonu 3 parametreye dayanmaktadır:

1-) Kirlenici ve membran gözenekleri arasındaki boyut dağılımı: Bir membranın kirlenici bir molekülü alıkoyma kapasitesi, membran üzerindeki gözeneklerin molekülden daha küçük olması ile ölçülür.

2-) Membranın yüzey yükü ile kirlenici madde arasındaki dipol moment: Dipol momente sahip moleküller kolaylıkla yüklenerek, birbirleri üzerilerine doğru

yönlenirler. Buna bağı olarak, bir membranın alıkoyma kapasitesi, su bünyesinde polar bir kirleticinin bulunmasıyla ciddi şekilde azalmaktadır [91].

3-) Membranın yüzey adsorpsiyon kapasitesi: Organik bir maddenin membran yüzeyine adsorpsiyon karakteristiğini etkileyen birkaç faktör bulunmaktadır. Bunlar: organik madde konsantrasyonu, organik madde cinsi ve organik madde kütle dağılımı, kalsiyum iyonu konsantrasyonu ve membranın kimyasal ve fiziksel özellikleridir.

Genel olarak, membran filtrasyonu yönteminin geniş spektrumda organik ve inorganik kirleticileri giderme yeteneğine sahip olması, aynı anda birden fazla kirleticiyi tutması gibi avantajlarının yanı sıra; farklı kirleticiler için farklı membran türlerinin kullanılması, genellikle membranın gözeneklerindeki geçişlerin (porların) tıkanması ve membran yüzeyine adsorbe olan kirliliklerden kaynaklı sebepler sonucunda meydana gelen nüfus etme akısındaki bozuntuları gibi dezavantajları da vardır. Yöntemin en büyük dezavantajı ise membranların maliyetlerinin çok yüksek olmasıdır [91].

#### **4.2.2. Adsorpsiyon**

İstenilen belirli bileşenlerin iki faz arasındaki yüzeyde veya ara yüzeyde tutunması işlemine adsorpsiyon denir. Bu ikili fazlar, sıvı-katı, sıvı-sıvı, gaz-sıvı veya gaz-katı fazları olabilir. Adsorplanan faz adsorbat olarak adlandırılırken, adsorplayıcı faz ise adsorban olarak adlandırılmaktadır. Kirletici maddelerin gideriminde, adsorplayıcı fazın katı olduğu prosesler, adsorplayıcı fazın sıvı ve gaz olduğu adsorpsiyon proseslerinden çok daha iyi sonuçlar verdiği için büyük bir çevresel öneme sahiptir [92].

Adsorpsiyon, adsorbat ile adsorbent arasındaki çekim kuvvetlerine göre fiziksel, kimyasal ve iyon değişimi adsorpsiyonu olarak üç farklı kategoride sınıflandırılmaktadır. Fiziksel adsorpsiyonunda adsorbat ile adsorbent arasında Van der Walls etkileşimleri bulunurken, kimyasal adsorpsiyonda adsorbat ile adsorbent arasında kimyasal bağ oluşmaktadır. İyon değişim adsorpsiyonunda ise adsorbat ile adsorbent arasında elektrostatik çekim meydana gelmektedir.

Adsorpsiyon prosesinde proses verimine etki eden parametreler genel olarak pH, sıcaklık, adsorbanın özellikleri, adsorbat özellikleri, çözücü özellikleri, polarite gibi parametrelerdir. Adsorpsiyonun yüksek verimde gerçekleşmesi için bu parametrelerin optimize edilmesi gerekmektedir. Bunun yanı sıra, adsorpsiyon prosesinin ve proses karakteristiğinin anlaşılması için adsorpsiyon kinetiği ve adsorpsiyon izotermi

çalışmalarının da yapılması gerekmektedir. Adsorpsiyon kinetiği, adsorbat ile adsorban arasındaki zaman ilişkisi ve adsorpsiyon hızına etki eden adsorpsiyon basamakları hakkında bilgi verirken; adsorpsiyon izotermi sabit sıcaklıkta farklı konsantrasyonlardaki adsorbat ile adsorban arasındaki adsorpsiyon ve adsorpsiyon denge ilişkisi hakkında bilgi vermektedir.

Önceden de belirtildiği gibi, pestisit gideriminde kullanılan fotokatalitik bozunma ve ozonizasyon yöntemleri ile ileri oksidasyon prosesleri, aerobik ve aneoribik biyolojik bozundurma prosesleri, membran filtrasyonu gibi yöntemlerin arasında adsorpsiyon, en çok çalışılan ve zararlı madde arıtımında en geniş uygulama kapasitesine sahip arıtım yöntemidir [93]. Fotokatalitik bozunma, ozonizasyon, membran filtrasyonu ve biyolojik bozundurma prosesleri, adsorpsiyon prosesine göre yüksek maliyete, düşük giderim kapasitesine sahiptir ve bu prosesler sonucunda ikincil kirlilik üretimi gerçekleştirebilmektedir. Adsorpsiyonda ise bu sorunlar ucuz ve yüksek adsorpsiyon kapasiteli adsorbentlerin kullanılmasıyla çözülmektedir ve adsorplanan madde ikincil kirliliklere sebep olmadan sistemden uzaklaştırılmaktadır [8]. Adsorpsiyon prosesi daha kapsamlı olarak Bölüm 5’de ele alınmıştır.

### **4.3. Biyolojik Giderim Yöntemleri**

Pestisit giderimindeki alternatif proseslerden bir tanesi de biyoremediasyondur. Biyoremediasyon, pestisit kimyasallarının biyolojik bozunması prosesine verilen isimdir. Bu teknikte, zararlı organik bileşenler mikroorganizmalar tarafından daha sade ve zararsız bileşiklere dönüştürülerek çevreye zarar vermeleri engellenir. Biyoremediasyon prosesi, zararlı bileşiklerinin geleneksel arıtım yöntemleriyle giderilmesinde karşılaşılan sınırlamaların üstesinden gelmektedir ve içlerinde pestisitlerin de olduğu birçok organik kirleticinin ucuz bir maliyete imha edilmesine seçenek sunmaktadır [78], [79], [80], [81], [82]. Geleneksel atık giderimi yöntemlerine alternatif bir yöntem olmasıyla beraber, verimli, ekonomik ve çevre dostu bir teknik olmasına rağmen, birçok pestisit biyolojik bozunması tamamen araştırılmamıştır ve bu yöntem gelişiminin ilk aşamalarında [83].

Biyolojik bozundurma prosesleri aerobik ve anaerobik olmak üzere ikiye ayrılmaktadır. Oksijenli ortamda gerçekleştirilen bozundurmaya aerobik proses, havasız ortamda gerçekleştirilen bozundurmaya ise anaerobik proses denmektedir. Su ve toprak kaynaklarına karışmış organik kirleticilerin çeşitliliği çok fazladır. Ancak, su ve toprak

kaynaklarında, organik kimyasalları bozunduracak ve sentezleyecek mikroorganizma çeşitliliği sayısı, organik kirleticilerin sayısından çok daha fazladır. Su ve toprak kaynaklarında bulunan mikrobiyal popülasyonlar, tek bir soy oluşturan organizmalardan çok, genellikle çok çeşitli, eş etkin ve antagonistik (zıt) etkilere sahip organizmalardır. [84]. Mikroorganizmalar maddeler ile kimyasal ve fiziksel olarak etkileşime geçerek, hedef molekülde yapısal değişikliklere veya tamamen indirgenmeye yol açmaktadırlar. Mikrobiyal topluluklar arasında bakteriler, mantarlar (fungi) ve aktinomisetler (bakteriler ile mantarlar arasındaki bir geçiş formu) ana pestisit indirgeyicilerdir [85]. Mantarlar, genellikle pestisitlerde ve diğer ksenobiyotiklerde yapısal değişiklikler yaratarak bu bileşikleri biyotransformasyona uğratarak, toksik kimyasal maddeleri toksik olmayan hale getirir ve bu toksik olmayan maddeler, mantarlar tarafından tekrar çevreye salınır. Biyotransformasyona uğramış bu maddeler tekrar çevreye salındığında, bakteriler tarafından ileri bozunmaya uğramaya uygun hale gelmiş olurlar [86]. Mantarlar ve bakteriler, ekstraselüler (hücre dışı) enzim üretici mikroorganizmalardır [87]. Enzimler, çoğu pestisit biyolojisinin tam merkezinde bulunmaktadır. Pestisitleri enzimlerle bozunmaya uğratarak kirlenmiş kaynakları arıtmak, yenilikçi bir arıtma tekniğidir. Enzim ile katalizlenmiş biyolojik bozunma yöntemi, kullanılan geleneksel kimyasal metotlardan daha verimli olabilmektedir [88]. Biyolojik bozundurma prosesi mikroorganizmanın metabolik potansiyali olan; erişebilirlik ve biyoyararlılık özelliklerine bağlı olarak kirletici molekülün detoksifiye edilmesidir. Pestisit bozunmasında 3 temel enzim sistemi mevcuttur. Bunlar: karışık fonksiyonlu oksidazlar, hidrolazlar ve esterazlardır. Enzimler, hidroliz, oksidasyon, çift bağlı bir yapıya oksijen eklenmesi, bir amino grubunun ( $\text{NH}_2$ ) nitro grubuna ( $\text{NO}_2$ ) oksidasyonu, bir hidroksil grubunun benzen halkasına eklenmesi, dehalojenasyon, bir nitro grubunun amino grubuna indirgenmesi, sülfür atomu ile oksijen atomunun yer değiştirmesi, moleküldeki yan zincirleri parçalama ve halka yapıların parçalanması gibi metabolik reaksiyonları katalizlerler [89].

Biyolojik bozundurma proseslerinin aksine, diğer pestisit giderim yöntemlerinde kullanılan fotokatalizörler, ozon, membran gibi hammaddeler pahalıdır. Biyolojik bozundurmada ise bu pahalı hammaddeler yerine ucuz ve üreme potansiyeline sahip canlı mikroorganizmalar kullanılmaktadır. Ayrıca, biyolojik bozundurma proseslerinde bozunmaya uğrayan zararlı bileşikler genellikle basit ve zararsız bileşiklere dönüştürülmektedir. Ancak, biyolojik bozundurma proseslerinin proses kontrolünün

zorluđu, her farklı pestisit için farklı mikroorganizmaya ihtiyaç duyulması ve seçicilik gibi dezavantajları vardır [83], [89].

### ADSORPSİYON

Gaz, sıvı ve ya çözülmüş katı bir maddenin atom, iyon ya da moleküllerinin bir katının ya da bir sıvının sınır yüzeyinde tutunarak birikmesi işlemine adsorpsiyon denir. Adsorpsiyon olayı maddenin sınır yüzeyinde moleküller arasındaki kuvvetlerin denkleşmemiş olmasından ileri gelmektedir. Adsorpsiyon, ara yüzeylerde iki faz arasında gerçekleşir. Bu iki faz, sıvı-katı, sıvı-sıvı, gaz-sıvı veya gaz-katı fazları olabilir. Adsorpsiyon prosesinde adsorplanan faz adsorbat olarak adlandırılırken, adsorplayıcı faz ise adsorban (adsorbent) olarak adlandırılmaktadır [95], [98].

#### 5.1. Adsorpsiyon Çeşitleri

Adsorbat ile adsorbent arasındaki doğal çekim kuvvetlerine dayanarak, adsorpsiyon 3 farklı şekilde gerçekleşmektedir. Bunlar: Van der Waals etkileşimlerinin olduğu fiziksel adsorpsiyon (fizisoprpsiyon), adsorban ile adsorbat arasında bileşim meydana gelmesi sonucu kompleks oluşumunun olduğu kimyasal adsorpsiyon ve elektrostatik etkileşimlerin rol oynadığı iyon değişimi adsorpsiyonudur [94], [95].

##### 5.1.1. Fiziksel adsorpsiyon

Fiziksel adsorpsiyonda, adsorban ile adsorbat arasında zayıf Van der Waals etkileşimleri bulunmaktadır. Etkileşim kuvvetleri zayıf olduğu için fiziksel adsorpsiyon, sistemin ısıtılması veya basıncının düşürülmesiyle kolaylıkla tersinir özellik gösterebilmektedir. Fiziksel adsorpsiyon genellikle çok katmanlı gerçekleşmektedir. Adsorplanan molekül, adsorbent yüzeyinde belirli bir bölgeye difüze olur ve ara yüzey içerisinde serbest ve geçişsel şekilde hareket eder.

Fiziksel adsorpsiyon, düşük sıcaklıklarda gerçekleşmektedir ve ideal adsorpsiyon olarak da bilinmektedir. 20-40 kJ/mol arasında düşük aktivasyon enerjisine sahiptir. Fiziksel adsorpsiyonda, entalpide yaşanan düşük değişiklik moleküller arasındaki bağı parçalamak için yetersizdir ve molekül kendisini korumaktadır.

Fiziksel adsorpsiyon, adsorpsiyon sistemindeki serbest enerji ve entropi düşüşü ile birlikte gerçekleşmektedir. Bu yüzden, bu proses ekzotermiktir [94], [95].

### **5.1.2. Kimyasal adsorpsiyon**

Kimyasal adsorpsiyonda adsorbe olan moleküller yüzeye kimyasal bağ (çoğunlukla kovalent bağlar) ile bağlanırlar ve yüzeyde hareketsiz kalırlar. Bundan dolayı adsorbat ile adsorbent arasındaki kuvvetler çok güçlüdür. Fiziksel adsorpsiyonda bağlanma çok tabakalı iken, kimyasal adsorpsiyonda bağlanma tek tabakalıdır. Yani yüzeyde moleküllerin bağlanacağı yer bitince adsorpsiyon durmaktadır. Fiziksel adsorpsiyonun aksine, kimyasal adsorpsiyon yüksek sıcaklıklarda oluşmaktadır. Bunun nedeni ise adsorbanın aktif adsorbent merkezlerine kuvvetli bağlarla bağlanmasıdır.

Kimyasal adsorpsiyon 200-400 kJ/mol arasında yüksek aktivasyon enerjisine sahiptir. Kimyasal adsorpsiyonda adsorbat ile adsorbent arasındaki bağlar çok kuvvetli olduğundan dolayı bağların kopması zordur ve buna bağlı olarak proses tersinir değildir. Ancak, yüksek sıcaklıklarda ısıtma yapılarak moleküller birbirinden ayrılabilir [94,95].

### **5.1.3. İyon değişimi adsorpsiyonu**

Adsorbat ile adsorbent arasında meydana gelen elektrostatik çekimler sonucunda meydana gelen adsorpsiyondur. İyonlar kendi yüklerine ters yüzey yükleri ile çekilirler ve yüzeyde birikirler. Adsorbat ile adsorbent arasındaki yük farkı arttıkça adsorpsiyon artar [94], [95].

## **5.2. Kimyasal ve Fiziksel Adsorpsiyon Arasındaki Farklar**

Kimyasal adsorpsiyon ile fiziksel adsorpsiyon arasındaki ana farklar Çizelge 5.1'de özetlenmiştir [94].

Çizelge 5. 1 Kimyasal ve fiziksel adsorpsiyon arasındaki farklar [94]

Özellik	Fiziksel Adsorpsiyon	Kimyasal Adsorpsiyon
<b>Bağlar Arasındaki Etkileşim</b>	Van der Walls Bağları	Kimyasal Bağlar
<b>Adsorpsiyon Entalpisi</b>	Düşük Adsorpsiyon Entalpisi (20-40 kJ/mol)	Yüksek Adsorpsiyon Entalpisi (200-400 kJ/mol)
<b>Adsorpsiyon Sıcaklığı</b>	Düşük Sıcaklıklarda	Yüksek Sıcaklıklarda
<b>Spesifiklik</b>	Adsorpsiyon Spesifik Değil	Adsorpsiyon Spesifiktir
<b>Adsorpsiyon Katmanı</b>	Çok Katmanlı Adsorpsiyon	Tek Katmanlı Adsorpsiyon
<b>Tersinirlik</b>	Tersinirdir	Tersinir Değildir

### 5.3. Adsorpsiyona Etki Eden Faktörler

Adsorpsiyon prosesinde, prosesin veriminin artırılması ve yüksek kapasitede adsorpsiyon gerçekleşmesi için ortam koşulları ve kullanılan materyallerin uygunluğu son derece önemlidir. Adsorpsiyon prosesine etki eden faktörler, polarite, çözeltinin pH'ı ve sıcaklığı, adsorbanın yüzey alanı, gözenek büyüklüğü, adsorbanın hidrofilik ve ya hidrofobik özellikleri, adsorbatın çözünürlüğü, molekül büyüklüğü, iyon yükü, adsorban ve adsorbatın temas süresi gibi parametrelerdir. Bu parametrelerden bazıları aşağıda açıklanmıştır [93].

#### 5.3.1. pH

Ortamın pH'ı adsorpsiyonu etkileyen en önemli etmenlerden biridir. Çünkü ortamın pH'ı adsorbent yapısını ve adsorbatın iyonlaşmasını etkiler. Örneğin, yüksek pH ortamında adsorbent yüzeyi daha negatif olur ve bu yüzeyde pozitif yüklü bir adsorbatın adsorpsiyonu daha fazla gerçekleşmektedir. Aynı zamanda, düşük pH ortamında ise adsorban yüzeyi daha pozitif olur ve negatif yüklü bir adsorbatın adsorpsiyonu daha fazla meydana gelir. Ayrıca ortamın pH'ı pozitif ve negatif adsorbat moleküllerinin iyonlaşarak çözünmesini de etkiler. Bazı maddeler düşük pH'da daha çok iyonlaşırken, bazıları da yüksek pH'da iyonlaşarak daha fazla adsorpsiyona neden olurlar. Buna bağlı



olarak, sulu çözeltilerdeki organik bileşiklerin adsorpsiyonu pH azaldıkça artmaktadır [93].

### **5.3.2. Sıcaklık**

Sıcaklık, adsorpsiyon prosesinin karakteristiğini belirleyen bir parametredir. Adsorpsiyon prosesi genellikle ekzotermiktir ve buna bağlı olarak azalan sıcaklık ile adsorpsiyon kapasitesi artmaktadır. Fiziksel adsorpsiyonda açığa çıkan ısı miktarları yoğunlaşma veya kristallenme enerjisi mertebesindeyken, kimyasal adsorpsiyonda kimyasal reaksiyon enerjisi mertebesinde [93].

### **5.3.3. Adsorban özellikleri**

Adsorpsiyon kapasitesi ile toplam yüzey alanının adsorpsiyon için uygun kısmı olan özgül yüzey alanı doğru orantılıdır. Adsorban yüzeyinin gözenekli ve parçacıklı bir yapıda olmasının ve buna bağlı olarak adsorban yüzey alanının geniş olmasının adsorpsiyon kapasitesini arttırdığı görülmüştür. Bu yüzden, adsorpsiyon proseslerinde aktif karbon, bazı polimerler ve bazı tarımsal atıklar gibi yüksek yüzey alanına sahip adsorbanlar seçilmektedir [93].

### **5.3.4. Adsorbat ve çözücü özellikleri**

Adsorpsiyon prosesinde, hidrofobik (suda az çözünen) yapıdaki adsorbanlar kullanıldığında, su içerisinde çözünen adsorbatın çözünürlüğü arttıkça, adsorpsiyonun olumsuz etkilendiği ve adsorpsiyon derecesinin azaldığı görülmüştür. Bunun nedeni ise, çözünürlük arttıkça çözücü-çözünen arasındaki bağların kuvvetlenmesidir. İnorganik bileşikler hidrofilik yapıda olduklarından dolayı daha az adsorplanmaktadır. Bu yüzden, adsorpsiyon prosesinde hidrofobik maddeler tercih edilmektedir [93].

### **5.3.5. Polarite**

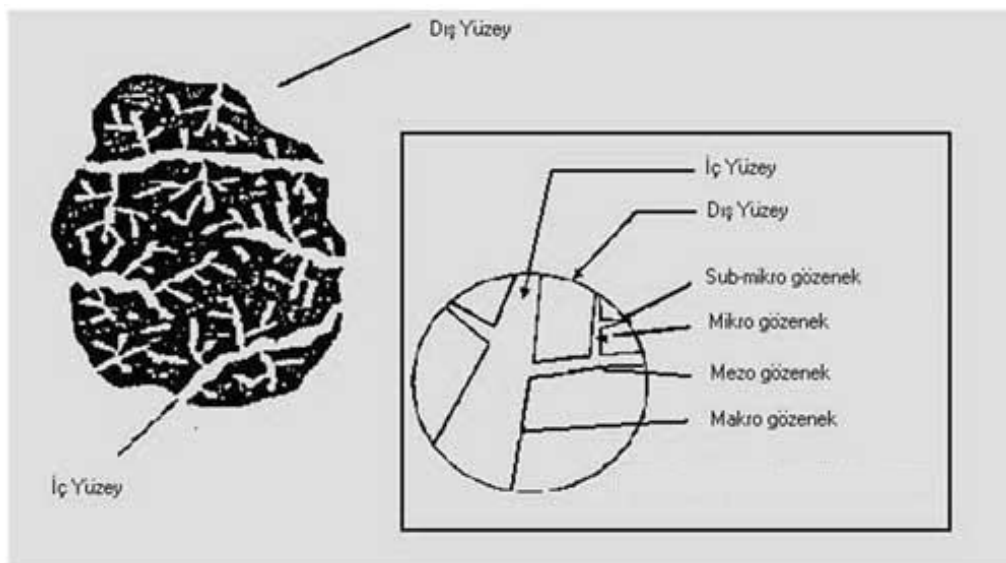
Polarite teorisinde genel kural olarak polar maddelerin polar maddeler ile, apolar maddelerin ise apolar maddeler ile etkileşiminin daha kuvvetli olması yatmaktadır. Buna bağlı olarak, polar bir çözünen, daha polar olan bir adsorbantı tercih edecek ve polar maddeler polar olmayan maddelerden daha çok adsorplanacaktır [93].

#### 5.4. Adsorbanlar

Adsorpsiyon prosesinin verimini arttırabilmek için uygun adsorbanın seçilmesi büyük bir önem taşımaktadır. Bir adsorbanın endüstri ve laboratuvar ölçekli projelerde kullanılabilmesi için istenilen özellikler genellikle çok miktarda bulunabilmesi ve nispeten maliyetinin düşük olması, yüksek verimde giderim yapabilmesi için adsorpsiyon kapasitesinin yüksek olması, geniş yüzey alanına sahip olması, adsorblanacak maddelere karşı seçicilik göstermesi ve rejenere edilerek yeniden kullanılabilmesidir.

Adsorban maddeler gözenekli yapıya sahiptir. Katıların içerisinde ve yüzeyinde bulunan oyuklar, boşluklar, kanallar ve çatlaklar genellikle gözenek olarak adlandırılmaktadır. Bir gram katıdaki gözeneklerin toplam hacmine özgül gözenek hacmi denirken, bu gözeneklerdeki duvarların toplam yüzeyine ise özgül yüzey alanı denmektedir.

Katı bir adsorbanın adsorplama gücü, özgül yüzey alanı, özgül gözenek hacmi ve gözenek boyutu dağılımına bağlı olarak değişmektedir. Adsorbanın gözenekleri küçüldükçe, duvar sayısı arttığından dolayı özgül yüzey alanı da artmaktadır. Adsorbanın büyüklük dağılımına, adsorbanın gözenek boyut dağılımı da denmektedir. Adsorbanın gözenek yapısı Şekil 5.1'de gösterilmiştir. Adsorban gözenek çapları 3 sınıfa ayrılmaktadır. Bunlar: Çapları 50 nm'den büyük olan makrogözenekler, çapları 2-50 nm arasında değişen mezogözenekler ve 2 nm'den küçük olan mikrogözeneklerdir [96].



Şekil 5. 1 Adsorban gözenek yapısı [96]

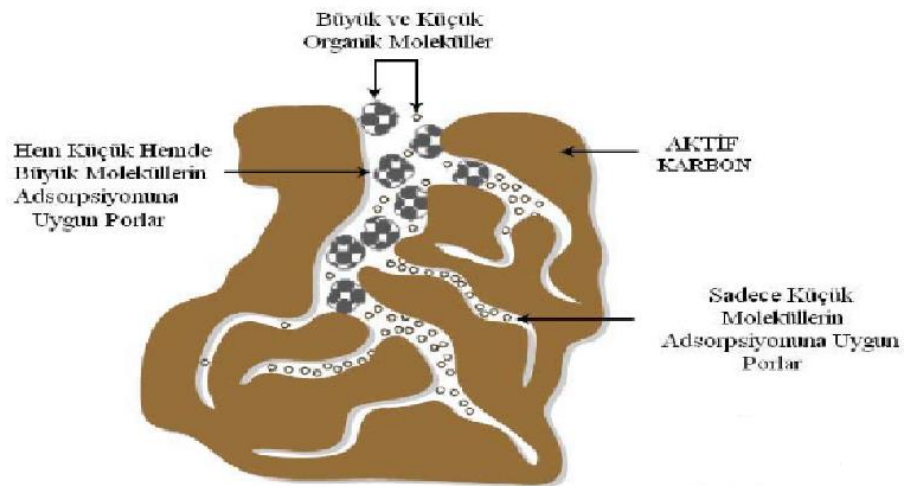
Adsorpsiyon prosesinde mezogözenekler ve mikrogözenekler, adsorbanın iç yüzeyini oluşturduğundan önemlidir. Makrogözenekler adsorpsiyon için göreceli olarak önemli değildir. Ancak, mezogözeneklere ve mikrogözeneklere doğru hızlı bir difüzyonu sağlama görevini görmektedirler [96].

Adsorpsiyon ile su arıtımında en çok kullanılan adsorbanlar: Aktif karbonlar, killer, metal oksitler, kitosan ve bunlara ek olarak bazı endüstriyel atıklar ve tarımsal atıklar gibi biyoadsorbentlerdir.

#### 5.4.1. Aktif karbon

Yoğun gözenekli yapısı (Şekil 5.2) ile birlikte yüzey alanı son derece genişletilmiş olan karbon zincirlere aktif karbon denmektedir. 1 gram karbonun yüzey alanı 300-2000 m<sup>2</sup> arasında veya üstünde olabilmektedir.

Aktif karbonlar hem fiziksel hem de kimyasal yollar ile elde edilebilmektedir. Fiziksel yol ile aktif karbon, hammaddenin buhar, CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> veya havanın oksidasyonu ile gazlaştırılması ile elde edilirken; kimyasal yol ile aktif karbon ise hammaddenin belirli bazı kimyasallar ile muamele edildikten sonra belirli bir sıcaklığa ısıtılması ile elde edilmektedir. Fiziksel ve kimyasal yollar ile üretilen aktif karbonlar, renk, tat, koku giderici olarak kullanılmalarının yanı sıra su arıtımı, havanın temizlenmesi, altın ve değerli metallerin geri kazanımı, gıda ve ilaç endüstrisi ve benzeri alanlardaki adsorpsiyon işlemlerinde kullanılmaktadır [96] ,[97].



Şekil 5. 2 Aktif karbonun gözenek yapısı [97]

Fiziksel veya kimyasal aktivasyon ile farklı hammaddelerden üretilen aktif karbonlar 3 türde hazırlanmaktadır. Bunlar: tanecik boyutu 0.18 mm'den küçük olan, öğütülmüş, uygulama alanı daha çok gaz ve sıvı ortamlar olan *toz aktif karbonlar*; tanecik boyutu 0.2-5 mm arasında düzensiz şekilde olan ve gaz ve sıvı adsorpsiyon uygulamalarında kullanılan *granül aktif karbonlar* ve tanecik boyutu 0.8-5 mm arasında olan, basınç uygulanarak silindirik yapıya getirilen *pellet aktif karbonlardır* [96], [97].

#### 5.4.2. Killer

Killer, tane boyutları 2 µm'den küçük olan, su ile karıştığında plastiklikleri artan ve plastik şekil alan, kurutulduğunda ise dayanıklılık ve mukavemet oluşturan, doğal, yeterli kristal ve toprağımsı bünyeye sahip maddelerdir. Kil mineralleri genellikle alüminyum hidrosilikatlardır. Bazı minerallerde alüminyumun yerini tamamen veya kısmen Fe veya Mg almaktadır. Kil mineralleri, adsorpsiyon ve iyon değişimi prosesleri ile anyon veya katyonların tutunmasını sağlayarak çevre kirliliğinin giderilmesinde önemli rol oynarlar.

Killer yüzeylerinde,  $Ca^{+2}$ ,  $Mg^{+2}$ ,  $H^+$ ,  $K^+$ ,  $Na^+$  ve  $SO_4^{-2}$ ,  $Cl^-$ ,  $PO_4^{-3}$ ,  $NO_3^-$  gibi değiştirilebilir katyon ve anyon iyonlara sahiptirler. Mineralin yapısındaki bu anyon ve katyonlar diğer iyonlar ile yer değiştirebilir. Büyük yüzey alanı, kimyasal ve mekaniksel stabilite, tabakalı yapı ve yüksek katyon değişim kapasitesi ile killer mükemmel adsorbanlardır ve kontemine olmuş suları arıtmada çok rahat şekilde kullanılabilirler [98].

Killer, tabakalı yada lifli olmalarına ve kristal yapılarına göre sınıflandırılırlar. Smektit, illit, koalın, holoyisit ve paligorsit önemli kil mineralleridir. Killer çoğu zaman bu killerin karışımları halinde bulunurken; bazı killer tek bir mineralden oluşur [96], [98].

#### 5.4.3. Zeolitler

Zeolitler üç boyutlu kristal yapıya sahip silikatlar olan tetro silikatlar grubuna dahil; yapılarında Na, K vb. alkali ve Mg, Ca, Ba, St vb. toprak alkali elementler bulunan kristal yapıda sulu alümina silikatlarıdır. Zeolitlerin yapısının temel birimi, birincil yapı ünitesi adı verilen  $TO_4$  (T: Silisyum veya Alüminyum, O: Oksijen) tetrahedraldir. Bu  $AlO_4$  ve  $SiO_4$  tetrahedralleri her bir oksijenlerini karşılıklı paylaşarak farklı sayıda  $TO_4$  içeren tek, çift ve kompleks halkalı ikincil yapı birimlerini ve kesik küp, hegzagonal prizma ve oktahedral vb. polihedralleri oluştururlar. Bu polihedraller ve ikinci yapı

birimleri farklı şekillerde birleşip farklı çap ve boyutlarda, değişebilir katyonların ve su moleküllerinin bulunduğu kanallar ve oyuklar meydana getirirler. Bu katyonların zeolit yapısına zayıf bağlarla bağlı olması, zeolit maddesinin yüksek iyon değişimi kapasitesini ortaya koymaktadır [99].

#### **5.4.4. Kitosan**

Kitosanın hammaddesi olan kitin, doğada kabuklu deniz ürünlerinde, böceklerde ve ağaç hücre duvarlarında bulunmaktadır. Doğal bir polimer olan kitosan, doğada selülozdan sonra en çok bulunan hammadde olan kitinin alkali N-deasetilasyonu ile üretilir.

Kitosan, çapraz bağlı yapısından dolayı iyi bir adsorbenttir. Medikal ve membran teknolojileri gibi alanlarda kullanılmasının yanı sıra su bünyelerinden ağır metalleri arıtmada ve pestisit gibi çevreye zarar veren organik bileşiklerin gideriminde de kullanılmaktadır [100].

#### **5.4.5. Biyoadsorbentler ve tarımsal atıklar**

Biyosorpsiyon kirletici maddelerin biyolojik maddeler kullanılarak sulu çözeltilerden arıtılması anlamına gelen fiziko-kimyasal bir prosestir. Biyosorpsiyon prosesi, ağır metaller, boyalar, fenolik bileşikler, ilaçlar ve pestisitler gibi endüstriyel atık bünyelerinden gelen kirletici maddelerin arıtılmasında biyoteknolojik bir potansiyel olarak görülmektedir [101].

Adsorpsiyonun, organik kirleticilerin sulu çözeltilerden arıtılması işleminde en uygun ve en gelecek vaat eden proses olarak kabul edilmesiyle birlikte; yüksek kapasiteye, verimliliğe ve karbon oranına sahip olan aktif karbon da bu proses için en çok kullanılan adsorbent olmuştur. Ancak, hem ticari aktif karbon hem de endüstriyel atık ve tarımsal atıkların karbonizasyonu sonucu elde edilen aktif karbonların proses maliyetlerinin çok yüksek olması prosesi dezavantajlı hale getirmiş ve araştırmacıları ucuz ve aynı zamanda etkili adsorbentler bulmaya sevk etmiştir. Bu noktada, kitin, bazı bakteriler, funguslar, fermentasyon atıkları ve benzeri mikroorganizmalar, gıda, alkol vb. endüstrilerden elde meyve ve sebzelerin kabukları gibi biyoadsorbentler, tarımsal ve endüstriyel canlı veya cansız biyokütlelerin biyoadsorbent olarak kullanımına başlanmış ve çalışmalar ilerledikçe ve genişledikçe verimli sonuçlar elde edilmiştir [102].

Bahsedildiği üzere, biyoadsorbentler canlı ve cansız olmak üzere 2'ye ayrılmaktadır. Algler ve bakteriler gibi canlı biyoadsorbentlerin özellikleri ve bu biyoadsorbentler için uygun proses şartları geniş bir şekilde araştırılmıştır. Araştırmalar devam ettikçe canlı biyoadsorbentlerin kullanıldığı proseslerin dezavantajlarının arttığı görülmüştür. Örneğin; endüstriyel atık sularındaki toksik metaller ve diğer inorganik ve organik bileşenler aktif mikrobiyal popülasyonun üremesini olumsuz etkilemektedir. Ayrıca, üreme ve mikrobiyal yaşamın devamı için gerekli olan karbon, azot ve fosfor gibi bazı esansiyel elementlere endüstriyel çevrelerde pek rastlanmamaktadır. Bunun gibi olumsuz faktörlerden dolayı biyoadsorbent olarak cansız biyokütle kullanımına yönelik araştırmalara yönelim olmuştur [103].

Cansız biyoadsorbentlerin kullanımının da avantajları ve dezavantajları vardır. Cansız biyoadsorbent kullanımının avantajları:

- Biyokütlenin üreme ve büyüme gibi problemleri olmadığından dolayı üreme ve büyüme için gerekli ortamın hazırlanmasında etkili olan pH, sıcaklık ve basınç gibi hassas proses parametrelerinin ayarlanmasına ihtiyaç duyulmamaktadır.
- Cansız biyoadsorbentler ile yapılan adsorpsiyon çalışmaları genellikle kısa sürmektedir.
- Cansız biyoadsorbentler ile yapılan işlemler genellikle fiziksel biyoadsorpsiyon prosesi olduğu için kirletici maddelerin geri kazanımını (desorpsiyon) gerçekleştirilebilmektedir [103].

Cansız biyoadsorbentlerin kullanımının çeşitli dezavantajları ise şu şekilde sıralanabilir:

- Aktif karbon ve iyon-değişim reçineleri ile karşılaştırıldıklarında cansız biyoadsorbentler düşük adsorpsiyon kapasitesine sahiptir.
- Cansız biyoadsorbentlerin genetik modifikasyon potansiyeli yoktur ve modern genetik mühendisliğinde kullanılan mikrobiyolojik ve genetik işlemler ile geliştirilmeleri mümkün değildir.
- Cansız biyoadsorbentlere adsorbe olan maddeler çoğunlukla bozunmaya uğramazlar. Sadece ortamdan uzaklaştırılırlar [103].

Kaynaklarına göre cansız biyoadsorbentler ölü alg, fungus ve bakteri gibi cansız mikroorganizmalar ve yer fıstığı kabuğu, badem kabuğu, pirinç çeltiği gibi tarımsal atıklar olmak üzere iki gruba ayrılmaktadır. Tarımsal atıkların yan ürün olarak oluşmaları, düşük maliyete sahip olmaları ve çevrede herhangi bir atık problemi

yaratmamaları gibi avantajları bulunmaktadır. Bu avantajlarından dolayı arařtırmacılar tarımsal atıkların adsorbent olarak kullanılmaları için uygun metotlar bulmaya çalışmaktadır.

Tarımsal atıklar, endüstride kullanılan ticari aktif karbon ve ticari reçinelere göre bazı ek avantajlara sahiptir:

- Tarımsal atıkları oluřturan kaynakların sayısı fazladır. Dünya üzerinde tüm tarımsal atıkların yılda yaklaşık olarak 320 milyon tona ulařtığı bilinmektedir.
- Atıklar tarımsal işlemlerin, tarımsal ürünlerin ve çoğunlukla gıda endüstrisinin yan ürünleridir ve mikroorganizmaların aksine özel olarak üretilmelerine gerek yoktur.
- Tarımsal atıklardan elde edilen biyoadsorbentler genellikle düşük maliyete sahiptir [103].

Bu avantajlarından dolayı, tarımsal atık biyoadsorbentler, adsorpsiyon prosesinde geniş uygulama alanlarında kullanılmakta ve kirleticilerin gideriminde yeni ve alternatif adsorbentler olarak tercih edilmektedirler [103].

### **5.5. Adsorpsiyon Kinetiđi**

Adsorpsiyon kinetiđi, adsorbat ile adsorban arasındaki zaman ilişkisini inceler ve adsorpsiyon işleminin hızına etki eden adsorpsiyon basamaklarının anlaşılmasında önemli bir rol oynar. Bir çözeltilerde bulunan adsorbatın adsorban tarafından adsorplanması işleminde dört ana basamak vardır:

1. Adsorbat, adsorbanı kaplayan film tabakası sınırına doğru difüze olur. Bu basamak, adsorpsiyon düzeneğinde bir hareketlilik (karıştırma) olduđu için çoğunlukla ihmal edilmektedir.
2. Film tabakasına gelen adsorbat, durgun kısımdan geçerek adsorban yapısının porlarına doğru ilerleyerek difüze olur. Bu işleme *sınır tabakası difüzyonu* denmektedir.
3. Adsorbanın gözeneklerine giriş yapan adsorbat, adsorpsiyonun meydana geleceđi yüzeylerin içlerine doğru difüze olur. Bu işleme *parçacık içi difüzyon* denmektedir.
4. Adsorbat adsorban yüzeylerine tutunur ve adsorpsiyon gerçekteşmiş olur. Bu basamađa *adsorpsiyon* denmektedir [93].

Adsorpsiyon işleminde, birim adsorbanın adsorpladığı adsorbat miktarı belirli bir noktaya kadar artmaktadır. Bu noktaya kadar olan süreçte, adsorban belirli bazı parametreler etkisinde adsorplayabileceği maddeyi adsorplamıştır ve adsorpsiyon, denge konsantrasyonu olarak tanımlanan noktaya gelmiştir. Bu noktanın tespiti ile adsorpsiyonun alıkonma süresi ve hız parametreleri hesaplanır. Adsorpsiyon kinetiğinin modellenmesindeki temel amaç ne tür bir mekanizmanın rol oynadığını anlamaktır ve bu konuda birçok eşitlik ortaya konmuştur. Yaygın olarak kullanılan eşitlikler aşağıda verilmiştir.

### 5.5.1. Birinci merteye kinetik model

Birinci merteye kinetik model, birinci merteye hız eşitliğinin (Eşitlik 5.1)  $t=0$ 'dan  $t=t$ 'ye ve  $C_t=C_{t_0}$ 'dan  $C_t=C_t$ 'ye sınır koşullarında integre edilmesiyle elde edilmektedir:

$$\frac{dC_t}{dt} = -k_1 C_t \quad (5.1)$$

Eşitlik (5.1)'in integre edilmesiyle Eşitlik (5.2) elde edilir.

$$C_t = C_0 \exp(-k_1 * t) \quad (5.2)$$

Eşitlik (5.2)'de;

$k_1$  : birinci derece hız sabitini ( $\text{dak}^{-1}$ )

$C_0$  : başlangıçtaki adsorbat konsantrasyonunu ( $\text{mg/l}$ )

$C_t$  :  $t$  anındaki adsorbat konsantrasyonunu ( $\text{mg/l}$ )

ifade etmektedir.

Eşitlik (5.2)'nin lineerleştirilmiş formu Eşitlik (5.3)'de gösterilmiştir.

$$\ln\left(\frac{C_t}{C_0}\right) = -k_1 * t \quad (5.3)$$

Eşitlik (5.3) için  $\ln(C_t/C_0)$ 'e karşılık  $t$  grafiği çizildiğinde, eğimi birinci derece hız sabiti  $k_1$  ( $\text{dak}^{-1}$ )'i veren bir doğru elde edilecektir [102].

### 5.5.2. İkinci merteye kinetik model

İkinci merteye kinetik model, ikinci merteye hız eşitliğinin (Eşitlik 5.4)  $t=0$ 'dan  $t=t$ 'ye ve  $C_t=0$ 'dan  $C_t=C_t$ 'ye sınır koşullarında integre edilmesiyle elde edilmektedir:



$$\frac{dC_t}{dt} = -k_2 C_t^2 \quad (5.4)$$

Eşitlik (5.4)'ün integre edilmesi sonucunda:

$$\frac{1}{C_t} = \frac{1}{C_0} + k_2 * t \quad (5.5)$$

Eşitlik (5.5)'de;

$k_2$ : ikinci derece hız sabitini (dak-1)

$C_0$ : başlangıçtaki adsorbat konsantrasyonunu (mg/l)

$C_t$ : t anındaki adsorbat konsantrasyonunu (mg/l)

ifade etmektedir.

Eşitlik (5.5) için  $1/C_t$ 'ye karşılık t grafiği çizildiğinde, eğimi  $k_2$ 'yi veren, kesim noktası ise  $1/C_0$  olan bir doğru elde edilecektir [102].

### 5.5.3. Yalancı birinci mertebe kinetik model

Lagergren tarafından ortaya konan bu kinetik modelde adsorpsiyon hızının birinci mertebe olduğu ön görülmüş ve adsorpsiyon hızı adsorpsiyon kapasitesinin zamana bağlı olarak değişimine ve denge anında adsorbanın birim ağırlık başına adsorpladığı madde miktarına bağlanmıştır [102].

Yalancı birinci mertebe kinetik modelin ana hız denklemi Eşitlik (5.6)'de verilmiştir:

$$\frac{dq_t}{dt} = -k_1 * (q_e - q_t) \quad (5.6)$$

Eşitlik (5.6)'da;

$q_e$ : denge anındaki adsorpsiyon kapasitesini (mg/g)

$q_t$ : t anındaki adsorsiyon kapasitesini (mg/g)

$k_1$ : yalancı birinci mertebe adsorpsiyon sabitini (dak<sup>-1</sup>)

ifade etmektedir.

Bu denklem  $t=0$ 'dan  $t=t$ 'ye ve  $q_t=0$ 'dan  $q_t=q_t$ 'ye sınır değerleri için integre edildiğinde Eşitlik (5.7) veya lineer formda Eşitlik (5.8) elde edilmektedir:

$$q_t = q_e * (1 - e^{-kt}) \quad (5.7)$$

$$\log(q_e - q_t) = \log(q_e) - \left(\frac{k}{2.303}\right) * t \quad (5.8)$$

Eşitlik (5.8) için  $\log(q_e - q_t)$ 'ye karşı t grafiği çizildiğinde, eğimi  $k/2.303$  olan ve kesim noktası  $\log(q_e)$  olan doğru elde edilir [102].

#### 5.5.4. Yalancı ikinci mertebe kinetik model

Yuh-Shan Ho tarafından geliştirilen modelde adsorpsiyon hızının ikinci mertebe olduğu ön görülmüş ve adsorpsiyon hızı adsorpsiyon kapasitesinin zamana bağlı olarak değişimine ve denge anında adsorbanın birim ağırlık başına adsorpladığı madde miktarına bağlanmıştır [104].

Yalancı ikinci mertebeden kinetik modelin ana hız denklemini Eşitlik (5.9)'da verilmiştir:

$$\frac{dq_t}{dt} = -k_2 * (q_e - q_t)^2 \quad (5.9)$$

Eşitlik (5.9)'da;

$q_e$  : denge anındaki adsorpsiyon kapasitesini (mg/g)

$q_t$  : t anındaki adsorsiyon kapasitesini (mg/g)

$k_2$  : yalancı ikinci mertebe adsorpsiyon sabitini ( $\text{dak}^{-1}$ )

ifade etmektedir.

Bu denklem  $t=0$ 'dan  $t=t$ 'ye ve  $q_t=0$ 'dan  $q_t=q_t$ 'ye sınır değerleri için integre edilip, lineerleştirildiğinde Eşitlik (5.10) elde edilmektedir:

$$\frac{t}{q_t} = \left(\frac{1}{k_2 * q_e^2}\right) + \left(\frac{1}{q_e}\right) * t \quad (5.10)$$

Eşitlik (5.10) için t'ye karşılık  $t/q_t$  grafiği çizildiğinde, elde edilen doğrunun eğimi  $1/q_e$ , kesim noktası  $(1/k_2 * q_e^2)$  değerini verir [102].

#### 5.5.5. Elovich kinetik modeli

Elovich eşitliği katı yüzeyin enerjik olarak heterojen olduğunu ve düşük enerjili yüzey kapsamında ne desorpsiyonun ne de adsorbatların birbirleri arasındaki etkileşimlerinin

adsorpsiyon kinetiğini etkileyeceğini varsayar [100]. Model denklemi Eşitlik (5.11)'de verilmiştir:

$$\frac{dq_t}{dt} = a * e^{-\beta q_t} \quad (5.11)$$

Eşitlik (5.11),  $t=0$ 'dan  $t=t$ 'ye ve  $q_t=0$ 'dan  $q_t=q_t$ 'ye sınır değerleri için integre edildiğinde Eşitlik (5.12) elde edilmektedir.

$$q_t = \frac{1}{\beta} * \ln(\alpha\beta) + \frac{1}{\beta} * \ln(t) \quad (5.12)$$

Eşitlik (5.12)'de;

$q_t$  : t anındaki adsorpsiyon kapasitesi (mg/g)

$\alpha$  : başlangıçtaki adsorpsiyon hızını (mg/g\*dak)

$\beta$  : yüzey kaplama derecesi ve adsorpsiyon aktivasyon enerjisi ile ilgili sabiti (g/mg)

ifade etmektedir.

Eşitlik (5.12) için  $q_t$ 'ye karşı  $\ln(t)$  grafiği çizildiğinde elde edilen doğrunun eğimi  $(1/\beta)*\ln(\alpha\beta)$  ve kesim noktası  $1/\beta$  değerini verir [104].

### 5.5.6. Partikül içi difüzyon modeli

Parçacık içi difüzyon modeli, adsorpsiyon prosesinde adsorbatın yığın fazdan gözenekli adsorban üzerine difüzyonunu modellemek amacıyla ortaya konmuştur. Bu modelde genel olarak sıvı fazdaki adsorbat konsantrasyonunun artmasıyla parçacık içi difüzyon artmaktadır [100]. Model denklemi Eşitlik (5.13)'de verilmiştir:

$$q_t = k_p * t^{0.5} + c \quad (5.13)$$

Eşitlik (5.13)'de;

$q_t$  : herhangi bir t anında birim adsorban tarafından adsorbe edilmiş adsorbat miktarını (mg/g)

$k_p$  : partikül içi difüzyon hız sabitini (mg\*g<sup>-1</sup>\*dak<sup>-2</sup>)

$c$  : adsorban ile adsorbat arasında oluşan tabakanın kalınlığı hakkında bilgi veren sabiti (mg/g)

ifade etmektedir.

Eşitlik (5.13) için  $q_t$ 'ye karşı  $t^{0.5}$  grafiği çizildiğinde elde edilen doğrunun eğim ve kesim noktaları sırasıyla  $k_p$  ve  $c$  değerlerini verir [104].

## 5.6. Adsorpsiyon İzotermi

Adsorpsiyon prosesinin maliyetinin azaltılması ve veriminin artırılması için adsorpsiyon doğasının anlaşılması gerekmektedir. Adsorpsiyon izotermi, sabit sıcaklıkta belirli miktardaki adsorbent ile farklı konsantrasyonlardaki adsorbatları veya belirli miktardaki adsorbat ile farklı konsantrasyonlardaki adsorbentleri dengeye ulaştırarak elde edilmektedir. En çok kullanılan ve tercih edilen izoterm modelleri Langmuir, Freundlich, BET ve Temkin izoterm modelleridir [97].

### 5.6.1. Langmuir adsorpsiyon izotermi

Langmuir izotermi, adsorban üzerinde adsorbatın tutunacağı aktif merkezlerin mevcut olduğunu ve her bir adsorbat molekülünün sadece bir aktif noktaya adsorbe olacağını kabul etmektedir. Bu durumda, adsorbanın yüzeyinde adsorbat moleküllerinin oluşturduğu tabaka tek bir molekül kalınlığında olmaktadır [97]. Langmuir izotermi açıklanırken bazı kabuller yapılmıştır. Bu kabuller:

- Adsorban yüzeyi homojendir ve adsorban yüzeyindeki tüm aktif noktalar aynı adsorpsiyon aktivitesine sahiptir.
- Adsorban yüzeyine adsorplanmış moleküller arasında herhangi bir etkileşim bulunmamaktadır ve buna bağlı olarak birim yüzeye adsorbe olmuş adsorbat miktarının adsorpsiyon hızına etkisi yoktur.
- Baştan sona bütün adsorpsiyon işlemi aynı mekanizmada gerçekleşir ve adsorplanan maddelerin aynı yapıya sahip olduğu kabul edilir.
- Adsorpsiyon tabakası, tek tabaka halinde oluşur ve adsorban yüzeyine adsorplanan moleküllerin doygun bir tabaka oluşturduğu andaki adsorpsiyona, maksimum adsorpsiyon denir [93].

Yapılan bu kabuller dikkate alınarak Langmuir izotermi için aşağıdaki Eşitlik (5.14) ortaya konmuştur.

$$C_e/q_e = 1/K_L + \alpha_L/K_L * C_e \quad (5.14)$$

Eşitlik (5.14)'de;

$C_e$  : Adsorpsiyon çözeltilisinin denge konsantrasyonu (mg/L)

$q_e$  : Denge de birim ağırlıkta adsorban başına adsorplanan madde miktarı (mg/g)

$\alpha_L$  : Adsorpsiyon enerjisine bağılı Langmuir izoterm sabiti (L/mg)

$K_L$  : Adsorbanın adsorpsiyon kapasitesine bağılı Langmuir izoterm sabiti (L/mg)

olarak ifade edilmektedir.

Eşitlik (5.14) lineerleştirildiğinde Eşitlik (5.16) elde edilmektedir.

$$q_{max} = K_L/\alpha_L \quad (5.15)$$

$$1/q_e = 1/q_m + 1/q_m K_L C_e \quad (5.16)$$

Eşitlik (5.16) için  $1/q_e$ 'ye karşı  $1/C_e$  çizildiğinde elde edilen doğrunun eğimi  $1/q_m K_L$  ve kesim noktası  $1/q_m$  değerlerini verir. Langmuir izotermi açıklanırken yapılan kabullerden biri adsorpsiyonun tek tabakalı homojen adsorpsiyon olmasıdır. Dolayısı ile Langmuir izotermi tek tabakalı heterojen adsorpsiyon sistemlerinde denge durumunu net olarak açıklayamamaktadır. Langmuir adsorpsiyon izotermine denge durumu Eşitlik (5.17)'de verilen boyutsuz  $R_L$  (dağılıma) sabitinin hesaplanması ile açıklanmaktadır ve bu sabitin 0 ile 1 arasında değerler alması elverişlilik durumunun sağlandığına işaret etmektedir (Çizelge 5.2).

$$R_L = 1/(1 + \alpha_L * C_0) \quad (5.17)$$

Eşitlik (5.17)'de;

$\alpha_L$  : Langmuir sabitini (L/mg)

$C_0$  : Maddenin çözeltildeki başlangıç konsantrasyonunu (mg/L)

ifade etmektedir [93].

Çizelge 5. 2  $R_L$  (dağılıma) sabiti değerleri ve izoterm tipleri [93]

<b><math>R_L</math> (Dağılıma Sabiti)</b>	<b>İzoterm Tipi</b>
$R_L > 1$	Elverişli olmayan
$R_L = 1$	Lineer
$0 < R_L < 1$	Elverişli
$R_L = 0$	Tersinmez

### 5.6.2. Freundlich adsorpsiyon izotermi

Freundlich izoterm modeline göre adsorbanın yüzeyinde farklı adsorpsiyon noktaları bulunmakta ve bu noktaların heterojen olarak dağıldığı kabul edilmektedir. Freundlich izoterm modeli Eşitlik (5.18)'de gösterilmiştir [97], [98].

$$q_e = K_f * C_e^{1/n} \quad (5.18)$$

Eşitlik (5.18)'de;

$q_e$  : Dengede birim ağırlıkta adsorban başına adsorplanan madde miktarını (mg/g)

$C_e$  : Adsorpsiyon çözeltisinin denge konsantrasyonunu (mg/L)

$K_F$ : Freundlich sabitini ( $\text{mg}^{1-1/n} \text{L}^{1/n} \text{g}^{-1}$ )

$n$  : Adsorpsiyon yoğunluğunu veren Freundlich sabitini

ifade etmektedir.

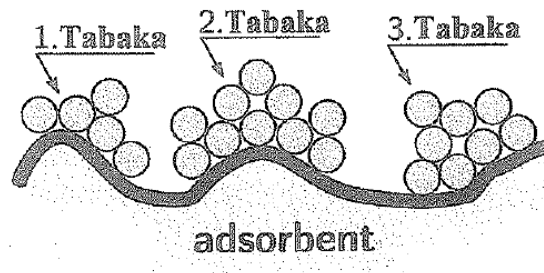
Eşitlik (5.18) lineerleştirildiğinde Eşitlik (5.19) elde edilir.

$$\ln(q_e) = \ln(K_F) + (1/n) * \ln(C_e) \quad (5.19)$$

Eşitlik (5.19) için  $\ln(C_e)$ 'ye karşı  $\ln(q_e)$  grafiği çizildiğinde eğimi  $1/n$  ve kesim noktası  $\ln(K_F)$  olan doğru elde edilmekte ve Freundlich sabitleri olan  $n$  ve  $K_F$  hesaplanabilmektedir [97], [98].

### 5.6.3. BET izotermi

BET izotermi, Brunauer, Emmett ve Teller tarafından Şekil 5.3'de gösterilen çok tabakalı adsorpsiyonu açıklamak için geliştirilmiştir. Bu modelde, adsorbat yüzeyinde birden fazla tabaka oluştuğu ve her bir tabakanın Langmuir modelinde oluşan tek tabaka olduğu varsayılmaktadır [98].



Şekil 5. 3 BET izoterm modelinde adsorpsiyon tabakaları [98]

İzoterm modelinde aşağıda verilen kabuller yapılmıştır:

- Adsorban yüzeyi tek tabaka ile kaplanmadan önce birçok tabakalı yapı oluşmaktadır.
- Adsorpsiyon dengeye geldiğinde her bir tabaka için de adsorpsiyon dengeye ulaşmış olmaktadır [98].

BET izoterm modeli Eşitlik (5.20)'de gösterilmiştir.

$$C_e/q_e(1-C_e) = 1/q_{\max}K_B + (K_B-1)C_e/q_{\max}K_B \quad (5.20)$$

Eşitlik(5.20)'de;

$q_e$  : Dengede birim ağırlıkta adsorban başına adsorplanan madde miktarını (mg/g)

$C_e$  : Adsorpsiyon çözeltisinin denge konsantrasyonu (mg/L)

$K_B$ : BET izoterm sabitini (L/mol)

ifade etmektedir [98].

Eşitlik (5.20) için,  $C_e$ 'ye karşı  $C_e/q_e*(1-C_e)$  çizildiğinde elde edilen doğrunun eğim ve kesim noktasından  $K_B$  ve  $q_{\max}$  değerleri hesaplanır.

#### 5.6.4. Temkin İzotermi

1940 yılında Temkin ve Pyzhev, adsorban ile adsorbat arasındaki etkileşimler üzerine gerçekleştirdikleri çalışmalarında, bu etkileşimlerden dolayı adsorban tabakasındaki tüm adsorbat moleküllerinin adsorpsiyon ısısının, adsorban yüzeyinin kaplanmasıyla doğrusal olarak azalacağını öne sürmüşlerdir. Temkin izoterm modeli Eşitlik (5.21)'de gösterilmiştir [92], [104].

$$q_e = \left( R * T / b \right) * \ln(A * C_d) \quad (5.21)$$

Eşitlik (5.21)'de;

$q_e$  : Denge anındaki adsorpsiyon kapasitesini (mg/g),

$C_e$  : Adsorpsiyon çözeltisinin denge konsantrasyonunu (mg/L),

$b$  : Temkin izoterm sabitini ( $\text{dm}^3/\text{mg}$ ),

$A$  : Temkin izoterm denge bağlanma sabitini (L/g),

R : Gaz sabitini (J/mol\*K),

T : Sıcaklığı (K),

ifade etmektedir.

Eşitlik (5.21) lineerleştirildiğinde Eşitlik (5.22) elde edilir.

$$q_e = \left( \frac{R * T}{b} \right) * \ln(A) + \left( \frac{R * T}{b} \right) * \ln(C_e) \quad (5.22)$$

Eşitlik (5.22) için,  $q_e$ 'ye karşı  $\ln(C_e)$  çizildiğinde eğimi  $(R*T/b)$  ve kesim noktası  $(R*T/b)*\ln(A)$  olan doğru elde edilmekte ve Temkin izoterm sabiti olan b ve Temkin izoterm denge bağlanma sabiti olan A hesaplanabilmektedir [92], [104].



## BÖLÜM 6

---

### DENEYSEL TASARIM

Sanayide ve akademik alanlarda gerçekleştirilen mühendislik ve araştırma-geliştirme çalışmalarında amaçlanan başlıca hedef gerek tasarlanan sistemden, gerekse geliştirilmek istenen üründen maksimum verim alınması ve bu ürünün maksimum performansa sahip olmasıdır. Çalışmalarda hedeflenen maksimum verimin ve performansın elde edilebilmesi için öncelikle verime ve performansa etki eden özelliklerin ve bu özellikleri etkileyen faktörlerin (parametrelerin) belirlenmesi gerekmektedir. Belirlenen parametrelerin performans üzerindeki etkilerinin tespiti ve bu parametrelerin en uygun kombinasyonlarının bulunması için deneyler yapılmaktadır. Yapılan deneyler sonucunda elde edilen performans sonuçları üzerinde değerlendirmeler yapılarak optimum şartlar belirlenmektedir. Bu yaklaşımda, yapılan deneyler sisteme sorulan soru; deney sonuçları da sistemin verdiği cevaplar olarak örneklendirilebilir. Bu konuda önemli olan nokta, sistemden doğru cevabın alınabilmesi için sisteme doğru soruların sorulması gerektiğidir.

Gerçekleştirilen deneylerden elde edilen sonuçlara her bir faktörün etkisinin tespit edilmesi ve her faktörün sistem üzerindeki etkilerinin ayrı ayrı tespit edilmesi gerekmektedir. Ancak, böyle bir yaklaşımda sisteme etki eden faktörler arasındaki ilişkinin göz ardı edilmesi sonucunda, farklı faktörlerin, bulunan sonuç üzerine ayrı ayrı yarattığı etki yanıltıcı olacaktır. Bu durumun yaşanmaması için mümkün olan bütün kombinasyonların denenmesi ise hem yüksek maliyet hem de zaman kaybına yol açacaktır. Bunlarla birlikte, gerçekleştirilen her deney bir belirsizlik ve hata payı içereceğinden dolayı, elde edilen sonuçların analizi de uygun istatistiksel yöntemler ile yapılmalıdır [13].

Çalışmalar süresince deneyleri en verimli şekilde gerçekleştirmek, kontrol edilebilen veya edilemeyen faktörlerin birbiriyle olan ilişkisini ve optimizasyonunu tamamlamak, elde edilen sonuçları doğru yorumlamak, belirsizlik ve hata payını minimum seviyeye indirmek için kullanılan teknik, deneysel tasarım adını almaktadır. Ekonomik şartlar ve zamansal kısıtlamalar göz önüne alındığında, araştırma ve geliştirme çalışmalarında deneysel tasarım yönteminin uygulanması verimli bir yaklaşımdır [13].

### **6.1. Deneysel Tasarımın Kullanım Alanları**

Deneysel tasarım üretim yapılan veya belirli bir proses çevresinde işlem gören her türlü alanda kullanılmaktadır. Bir proses geliştirilirken veya iyileştirilirken yapılan, çok fazla parametrenin var olduğu araştırma-geliştirme çalışmalarında ve ürün veya prosesin kalite problemlerinin çözülmesinde kullanılan en önemli araçlardan biridir [14].

Mühendislik tasarımlarının araştırılması ve uygulanmasında büyük bir öneme sahip olan deneysel tasarım yöntemlerinin kullanılmasının amaçlarından bazıları:

- Temel tasarım parametrelerinin incelenmesi ve değerlendirilmesi,
- Tasarımda alternatif olarak kullanılacak materyallerin değerlendirilmesi,
- Farklı çalışma koşulları altında prosesin gerçekleşmesini ve sonuçlanmasını sağlayacak en uygun parametrelerin belirlenmesi,
- Gerçekleştirecek proses için seçilen parametrelerin optimizasyonlarının yapılmasını içermektedir [105].

Deneysel tasarımı yöntemleri, geliştirilmek istenen sistemde veya çözülmek istenen problemde; meydana gelen değişimlerin sebeplerini irdelemeyi, bu değişimleri minimuma indirmeyi ve değişimlerden minimum seviyede etkilenen bir sistem kurmaya yardımcı olmayı hedeflemektedir. Yapılan deneysel tasarımda sistemin sonucunu etkileyen bütün faktörler göz önünde bulundurulduğu için faktör seviyelerinde yapılan çok az değişikliklerin sonuç üzerindeki katkısı fazla olabilmektedir. Geliştirilmek istenen proses için deneysel tasarım kullanmanın avantajlı yönlerinden bir tanesi de budur [14].

### **6.2. Deneysel Tasarım İlkeleri ve Stratejisi**

Deneysel tasarım sırasında kullanılan üç önemli ilke vardır. Bunlar: Rassallaştırma, tekrarlama ve bloklama ilkeleridir.

## **6.2.1. Deneysel tasarım ilkeleri**

### **6.2.1.1. Rassallaştırma**

Rassallık, çevresel gelişmelerin belirli bir düzen ve kural içinde olmadan tesadüf bir biçimde oluşmasına denmektedir. Deneysel tasarıma rassallığı getiren ve rassallığın önemli olduğunu anlatan kişi, aynı zamanda deneysel tasarımının kurucusu olarak bilinen Ronald A. Fischer'dır. Bağımsız olan faktör seviyelerinin her farklı deney için rassal olarak atanması, deneysel tasarımı rassallaştırmanın en önemli yoludur ve çok sayıda bulunan bağımsız faktörlerin deneylere atanma sırası rassal olarak seçilmelidir. Aynı zamanda, rassallaştırma deneysel verilerin toplanmasında da uygulanmalıdır. Rassallaştırma, deney sonuçlarının analizinde ön yargıların giderilmesine yardımcı olur ve tasarımda istatistiğin kullanılmasında gerekli temellerden bir tanesidir [14].

### **6.2.1.2 Tekrarlama**

Deneysel çalışmalarda elde edilen sonuçların ve ölçülen değerlerin doğruluğu son derece önemlidir. Sonuçların doğruluğunu etkileyen en önemli faktör ise deneyler sırasında gerçekleşebilecek tesadüfler ve değişkenlikler sebebiyle oluşan hatalardır. Hatalar sonucu oluşacak değişikliklerin fark edilmesi ve deneylerin güvenilirliğinin ve kesinlik derecesinin artırılması için yapılan deneylerin iki veya daha fazla sayıda tekrarlanması gerekmektedir.

Araştırmacıya deneysel hataların giderilmesi konusunda yardımcı olması ve gözlemciye daha kesin sonuçlar sunması, tekrarlamamanın iki temel önemli özelliğidir. Ancak, maliyeti arttırmamasından ötürü, aynı parametrelerde yapılan tekrar deneylerinin arasındaki farkın istatistiksel olarak anlamlı olmasını sağlayan deney sayısından fazla deney yapılmamalıdır. Bu yüzden, deneylere başlamadan önce en uygun tekrarlama sayısını bulmak önemlidir [14].

### **6.2.1.3. Bloklama**

Deneysel tasarımda bloklama ilkesinde temel, benzer deneysel birimlerin gruplara bölünmesi ile deneyin hassasiyetinin artırılmasıdır. Oluşturulan her bir grup ya tek bir etkiyi test edebilmek adına homojen olarak ya da farklı etkileri test edebilmek adına heterojen olarak belirli farklı özelliklerine göre bölünebilir. Bu şekilde yapılmış olan deneylerden elde edilen sonuçlardaki değişkenlik, her bir blok içindeki faktör etkilerinin

farklılığını ortaya koymaktadır. Bloklama ile kontrol edilemeyen ve sistem sonucuna etki eden faktörlerin etkisi minimize edilmektedir. Ayrıca, faktör ve faktör seviyeleri her bloktaki birimlere rassal olarak atanmaktadır. Böylece, bloklar arasındaki değişkenlik deneysel hatadan arındırılarak deneyin hassasiyeti arttırılmaktadır. Bununla birlikte bloklar aynı birimleri içerdiğinden dolayı, aynı koşullar altındaki faktör ve seviyelerinin karşılaştırılması sağlanmaktadır [14].

### 6.2.2 Deneysel tasarım stratejisi

Farklı parametrelerle proses ve proses çıktıları arasındaki ilişkileri belirlemek için kullanılan deneysel tasarım işleminde öncelikle parametrelerin sayısı, hangi seviye aralıklarında kullanılacağı, parametre ve cevap etkilerinin hesaplanabilirliği göz önünde bulundurulmalı, cevabı aynı anda etkileyen parametrelerin etkileri belirlenmelidir. Güvenilir ve kesin sonuçlar elde edebilmek açısından deneysel tasarımın uygulanma aşamaları aşağıda sıralanmıştır [14].

- 1- **Problemin Belirlenmesi:** Problemin tanımlanması, deneysel tasarımından en iyi sonucun alınabilmesi ve bu sonucun güvenilirliği açısından tasarımın en önemli adımıdır.
- 2- **Faktör ve Seviyelerin Belirlenmesi:** Problemin belirlenmesinden sonra, deneysel tasarımın sonucunu etkileyen faktörlerin ve faktör seviyelerinin belirlenmesi gelir. Tasarımcı belirlediği faktörleri ve bu faktörlerin seviyelerini tespit ederken daha önce yapılan çalışmaları göz önünde bulundurmalı ve kendi bilgisini de ortaya koymalıdır.
- 3- **Proses Cevabının Belirlenmesi:** Proses cevap değişkeninin seçimi sırasında, seçilen değişkenin deneyin amacı hakkında kesin ve net bilgiler vermesi gerekmektedir. Cevap değişkeninin ölçülmesi ve bu ölçümlerin kesinlik dereceleri konusunda dikkatli olunmalıdır. Cevap değişkeni olarak genellikle ölçülen karakteristiğin ortalaması veya standart sapması seçilir.
- 4- **Deneysel Tasarım Yönteminin Belirlenmesi:** Bu aşamada tasarımın büyüklüğü, deneylerin yapılış sırası, tekrarlar sayısı ve buna bağlı olarak oluşacak maliyet göz önünde bulundurularak deneysel tasarım yöntemi belirlenir.
- 5- **Deneylerin Gerçekleştirilmesi:** Deneysel verilerin alınacağı aşamadır. Rassallık, tekrarlar ve bloklama gibi deneysel tasarım ilkelerine dikkat edilerek deneyler yapılmalıdır.

**6- Verilerin İstatistiksel Analizi:** Deneyler sonucunda elde edilen deneysel verilerin çeşitli istatistik metotlarıyla analiz edilip, değişkenlerin cevap üzerindeki etkilerini, model denklemlerin uygunluklarını ve güvenilirliklerini gösteren aşamadır.

**7- Sonuç:** İstatistiksel veri analizinden elde edilen sonuçların değerlendirilmesi, çıkan sonucun problemin çözümüne yardımcı olup olmadığı, tasarım grafiklerinin oluşturulup optimum proses koşullarının bulunduğu aşamadır. Bu aşamada aynı zamanda, sonuçların güvenilirliği için elde edilen sonuçlarla bir deneme testi yapılmalıdır [14].

### **6.3. Deneysel Tasarımda Kullanılan Yöntemler**

Deneysel tasarım yöntemlerini oluşturmak günümüz teknolojisinde paket bilgisayar programlarıyla kolay hale gelmiştir. Faktöryel tasarımlar ve cevap yüzey tasarımları deneysel tasarımda kullanılan ve en çok karşılaşılan deneysel tasarım yöntemlerinden bazılarıdır.

#### **6.3.1. Tam faktöriyel deneysel tasarım yöntemleri**

Tam faktöriyel deneysel tasarım yöntemleri en az iki veya daha fazla faktör (parametre) ve bu faktörlere ait en az iki veya daha fazla seviye içeren deneylerde, seviyelerin faktör sayısı kadar birbirleriyle çarpımları ile oluşan deney setlerinin kombinasyonlarıdır. Tam faktöriyel deneysel tasarımının bir örneği Çizelge 6.1'de gösterilmiştir. Gösterilen tasarım modelinde 3 faktör ve her bir faktörün de 2 adet seviyesi bulunmaktadır. Bu durumda her bir parametre ve seviye kombinasyonu denendiği zaman toplamda çıkan deney sayısı 8 ( $2*2*2$ ) olmaktadır. Eğer tasarım 4 faktörlü ve 3 seviyeli olarak yapılıyorsa, 81 ( $3*3*3*3$ ) deney yapılması gerekirdi [105].

Çizelge 6. 1 3 faktör ve 2 seviyeli tam faktöriyel deneysel tasarım örneği [105]

Deneysel Sayısı	Faktörler ve Seviyeleri			Sonuç
	P <sub>1</sub>	P <sub>2</sub>	P <sub>3</sub>	
1	-1	-1	-1	S <sub>1</sub>
2	-1	-1	+1	S <sub>2</sub>
3	-1	+1	+1	S <sub>3</sub>
4	-1	+1	-1	S <sub>4</sub>
5	+1	-1	-1	S <sub>5</sub>
6	+1	-1	+1	S <sub>6</sub>
7	+1	+1	-1	S <sub>7</sub>
8	+1	+1	+1	S <sub>8</sub>

Çizelge 6.1’de tam faktöriyel tasarımında P<sub>x</sub>’ler faktör (parametre); düşük seviyeli faktör değeri -1 ve yüksek seviyeli faktör değeri +1 olarak kodlanmıştır. Tam faktöriyel deneylerinin analizlerinde genellikle ANOVA (Varyasyon Analizi) ve regresyon analizi kullanılmakta ve her bir parametrenin deney üzerindeki etkisi hesaplanmaktadır [105].

### 6.3.2. Kesirli faktöriyel deneysel tasarımı

Tam faktöriyel deneysel tasarımında parametrelerin bütün seviyelerinin kombinasyonlarının deneyleri tek tek yapıldığı zaman deney sayısı çok fazla olmakta ve hem maliyet artmakta hem de bütün tasarıma aşırı zaman harcanması söz konusu olmaktadır. Çalışmacılar, deneysel tasarımının en önemli iki unsuru olan maliyet ve zamandan kazanmak adına deney sayısında orantılı olarak azaltmaya giderek kesirli faktöriyel deneysel tasarımı yaparlar. Örneğin: 7 parametrelili (faktör) ve 2 seviyeli bir tam faktöriyel deneysel tasarımı yapıldığında toplamda 128 tane (2<sup>7</sup>) deney yapılması gerekmektedir. Ancak, bu tasarımın aynısı, deney sayısının (1/2) kesri yani 64 deney ile veya (1/4) kesri yani 32 deney ile yapılabilmektedir. Bu örnekler gibi oluşturulan faktöriyel deneysel tasarımlarına kesirli faktöriyel deneysel tasarımı denmektedir [105].

### 6.3.3. Cevap yüzey yöntemleri (RSM)

Cevap yüzey yöntemleri, ilk olarak 1951 yılında Box ve Wilson tarafından geliştirilmiştir. Çalışmacıların geliştirdiği yaklaşımlar, mühendislerin, bilim insanlarının ve istatistikçilerin proseslerin geliştirilmesine ve tasarlanmasına bakış açılarının son 50 yılda değişmesine sebep olmuştur. Cevap yüzey yöntemleri, proseslerin geliştirilmesi ve optimizasyonunun sağlanması için gerekli bazı istatistiksel ve matematiksel yöntemlerin bir arada kullanıldığı bir sistem olarak tanımlanmıştır. Bu yöntemin doğasında istatistiksel ve matematiksel tekniklerin ardarda uygulanarak, her aşamada elde edilen verilerin bir sonraki aşamada kullanılması yatmaktadır [106].

Cevap yüzey yöntemlerinin kullanılmasındaki temel amaç; proses değişkenlerinin birbirleri arasındaki ilişkilerin belirlenmesi ve birçok proses değişkeninden etkilenen cevap yüzeyinin optimize edilmesidir.

Minimum deney sayısı ve veri ile maksimum bilgi edinilmesi, buna paralel olarak proses maliyetini ve harcanan zamanı düşürmesi, kolaylıkla optimizasyonu gerçekleştirilmesi, sistem üzerinde etkin olan parametreleri aynı anda değiştirme imkanı vermesi, parametrelerin arasındaki ilişkilerin belirlenmesi, bu parametrelerin sisteme olan etkilerinin saptanması ve tasarım sonucu ortaya çıkan model denklemlerinin güvenilirliğinin ve kesinliğinin ön görülebilmesine imkan sağlayıcı özelliklerinin olması sebebiyle cevap yüzey yöntemleri, araştırmacılar tarafından en çok kullanılan deneysel tasarım yöntemleridir.

Cevap yüzey yöntemlerinde parametrelerin cevap değişkeni üzerinde ne derece etkili olduğu regresyon analizi ile öğrenilmektedir. Regresyon analizinde, prosesin cevabını etkileyecek parametreler için istenen özellikte cevabı sağlayacak optimum bölgeyi ve koşulları öngörebilmek adına modelleme yapılmakta ve bir cevap yüzey modeli oluşturulmaktadır. Cevap yüzey yönteminin başarılı bir şekilde uygulanması yanıt fonksiyonu ( $f$ ) için uygun matematiksel formun geliştirilmesine bağlıdır. Bu yöntemde kullanılan en yaygın modeller arasında birinci dereceden model ve düşük dereceli polinom modelleri bulunmaktadır [106].

Herhangi bir proses için, ürün veya bir sistemin cevabı ile parametreler arasındaki ilişki Eşitlik (6.1) ile açıklanmaktadır.

$$Y = f(X_1, X_2, \dots, X_n) + \varepsilon \quad (6.1)$$

Eşitlik (6.1)'de;

$Y$  : sistemin yanıtını,  
 $f$  : gerçek yanıt fonksiyonunu,  
 $X_1 \dots X_n$  : bağımsız değişkenleri,  
 $\varepsilon$  : deneysel hata değerini,  
ifade etmektedir.

$$Y = \beta_0 + \beta_1 X_1 + \beta_2 X_2 + \dots + \beta_n X_n + \varepsilon \quad (6.2)$$

Birinci dereceden model Eşitlik (6.2)'de verilmiştir. Ancak, birinci dereceden model gerçek cevap yüzeyini tahmin etmede genellikle yetersiz kalmaktadır. Bu durumda, Eşitlik (6.3)'de gösterilen, polinom modelin kullanılması uygun olmaktadır. Çok çeşitli formlarda çalışma imkanı sunan yanıt fonksiyonunu tanımlamada avantaj sağlaması ve en küçük kareler yöntemiyle fonksiyon katsayılarının kolaylıkla belirlenmesi gibi özelliklerinden dolayı ikinci dereceden polinomiyal modeller tercih edilmektedir [106].

$$Y = \beta_0 + \sum_{i=1}^n \beta_i X_i + \sum_{i=1}^n \beta_{ii} X_i^2 + \sum_{i < j} \beta_{ij} X_i X_j + \varepsilon \quad (6.3)$$

Eşitlik (6.2) ve Eşitlik (6.3)'de;

$\beta_0$  : regresyon katsayısını,  
 $\beta_i$  : doğrusal terimi,  
 $\beta_{ii}$  : ikinci derece terimi,  
 $\beta_{ij}$  : iç etkileşim terimlerini,  
 $\varepsilon$  : deneysel hatayı,

ifade etmektedir.

Elde edilen deneysel tasarımın regresyon analiz sonuçlarının elde edilen model ile uygun olup olmadığının test edilmesi açısından bir takım hipotez testleri geliştirilmiştir. Günümüzde en yaygın kullanılan hipotez testi, kısaltması ANOVA olan varyans analizidir [106].

Deneysel tasarımda kullanılan ve çalışmacılara kolaylık sağlayan paket programlarının içerisinde bulunan ANOVA analizinin istatistiksel değerlendirmesi Çizelge 6.2'de gösterilmiştir.



Çizelge 6. 2 ANOVA analizinin istatistiksel değerlendirmesi [106]

	<b>Serbestlik Derecesi</b>	<b>Karelerin Toplamı</b>	<b>Karelerin Oranı</b>	<b>F</b>
<b>Model</b>	$f_1$	$\sum(\hat{y}_1 - \bar{y})^2$	$SSM / f_3$	$MSM / MSE$
<b>Hata</b>	$f_2$	$\sum(y - \hat{y}_1)^2$	$SSE / f_2$	
<b>Toplam</b>	$f_3$		$SST / f_1$	

Çizelge 6.2’de;

SSM : modelin kareler toplamını,

SSE : hatanın kareler toplamını,

SST : model ve hatanın toplam kareler toplamını,

MSM: model karelerinin oranını (SSM/f3),

MSE: hata karelerinin oranını (SSE/f2),

ifade etmektedir [108].

ANOVA analizinde, F değerinin uygunluğu kontrol edilir ve eğer F değeri sistem için uygunsa, regresyon modelinin sistemi matematiksel olarak ifade ettiği kabul edilir. Bir model veya parametre için elde edilen F değeri ne kadar büyük ise o modelin veya parametrenin hem güvenilirliği hem de sisteme olan etkisi o kadar yüksektir. Sistemin güvenilirliğini ve doğruluğunu belirlemede F değerinin yanı sıra p-değeri (olasılık değeri) yaklaşımı da kullanılmaktadır. P-değerinin sıfıra yakın olması gerekmektedir ve 0.05’den büyük olan değerler model için uygun olmayan değerler olarak tanımlanır.

Bunlarla birlikte, test edilmesi gereken bir diğer parametre ise Regresyon katsayısıdır. Regresyon katasayısı,  $R^2$  ile gösterilmekte olup, model değişkenlerinin cevap yüzeyindeki değişkenliğin azalmasının bir ölçüsüdür. Eşitlik 6.4’de de görüldüğü üzere  $R^2$  değeri 0 ile 1 değerleri arasındadır [106].

$$R^2 = SSM / SST = 1 - SSE / SST \quad (6.4)$$

Modele bir değişken eklenmesi (bu değişken istatistiksel olarak önemsiz de olsa)  $R^2$ ’yi her zaman arttıracaktır. Dolayısıyla yüksek  $R^2$  değerleri bazı zamanlar doğru sonucu

vermeyebilir. Bu nedenle,  $R^2$  değerinin yanı sıra  $R^2$  yerine düzenlenmiş  $adj-R^2$  kullanılması da önerilmektedir.  $Adj-R^2$  değeri Eşitlik (6.5)'deki denklemden hesaplanmaktadır.

$$adj - R^2 = \frac{(1-SSM)/f_2}{1-SSM/f_1} = 1 - \frac{f_1}{f_2} (1 - R^2) \quad (6.5)$$

Elde edilen model denklemlerin uygunluğunun istatistiksel yöntemlerle analiz edilmesinden sonra, incelenen her bir parametrenin, diğer parametreler ile arasındaki ilişkileri ve bu parametrelerin cevap yüzeyine etkilerini gösteren 3 boyutlu cevap yüzey grafikleri oluşturulmakta ve bu gibi etkileşimler grafikler ile gösterilmektedir. Cevap yüzey yöntemlerinde en çok tercih edilen metotlar Merkezi Kompozit ve Box-Behnken deneysel tasarımlarıdır [106].

### 6.3.3.1. Merkezi kompozit tasarım

İkinci derece cevap yüzeyi elde edebilmek için oluşturulan Merkezi Kompozit tasarım modelinde yer alan parametrelerin en az 3 seviyeli olması gerekmektedir. Bir Merkezi Kompozit tasarım,  $2^k$  tane faktöriyel,  $2k$  tane tasarım merkezine eşit uzaklıktaki eksen noktası ve merkez noktada sistem ihtiyacı doğrultusunda isteğe bağlı sayıdaki tekrar deneylerinden oluşmaktadır [107].

Oluşturulan tasarımda toplam nokta sayısı (deney sayısı) Eşitlik (6.6) ile hesaplanmaktadır.

$$N = 2^k + 2k + n_0 \quad (6.6)$$

Eşitlik (6.6)'da;

$k$  : parametre sayısını,

$n_0$  : merkez noktada yapılan tekrar deneylerinin sayısını,

ifade etmektedir [107].

### 6.3.3.2. Box-Behnken tasarımı

Deneysel tasarımı yapılmak üzere oluşturulan modeldeki parametrelerin tahmin edilmesi için üç seviyeli eksik faktöriyel tasarımların bir sınıfı Box ve Behnken tarafından 1960 yılında geliştirilmiştir. Box-Behnken tasarımında her bir parametrenin 3

seviyesi bulunmaktadır. Box-Behnken tasarımları, daha az deney sayısı içermesinden ötürü hem maliyet hem de zaman açısından Merkezi Kompozit tasarımlarına kıyasla daha çok tercih edilmektedir.

Box-Behnken deneysel tasarımı için toplam deney sayısı Eşitlik (6.7) ile hesaplanmaktadır.

$$N = 2k(k - 1) + n_0 \quad (6.7)$$

Eşitlik (6.7)'de;

$k$  : parametre sayısını,

$n_0$  : merkez noktada yapılan tekrar deneylerinin sayısını,

ifade etmektedir [108].

Box-Behnken tasarımında, tüm etkenler için alt ve üst sınırlar aynı anda hiçbir zaman kapsamadığı için uç değerlerden alınacak tahmin edilenin dışındaki sonuçların sistemi kötü yönde etkilemesi engellenmiş olur. Box-Behnken tasarımı, yüksek dereceden modelleri çözmeye, modelin eksikliğinin analizine, ardışık tasarımların kurulumuna ve bloklama ilkesine rahatça izin verdiği için tercih edilen bir tasarımdır.

3 seviyeli ve 4 parametrelili, merkez seviye noktasında (0, 0, 0, 0) yapılan tekrar deney sayısının 3 olduğu, parametre seviyelerinin küçükten büyüğe -1, 0, +1 olarak kodlandığı Box-Behnken tasarımının bir örneği Çizelge 6.3'de gösterilmiştir. Box-Behnken tasarımı diğer tasarım yöntemlerine göre daha az sayıda deney içermesi, verimli ve uygulanabilir olması gibi özelliklerinden ötürü genellikle biyoteknoloji, kimya, kimya mühendisliği, çevre ve gıda teknolojileri, imalat ve eczacılık gibi kullanılacak hammaddelerin değerli olduğu ve zaman yönetiminin önemli olduğu alanlarda yapılan çalışmalarda daha çok kullanılmaktadır [108].

Çizelge 6. 3 4 parametrel (A, B, C, D) 3 seviyeli (-1, 0, +1) bir Box-Behnken tasarımı  
[108]

<b>Deney</b>	<b>A</b>	<b>B</b>	<b>C</b>	<b>D</b>
1	1	1	0	0
2	1	0	0	-1
3	0	-1	0	-1
4	1	0	0	1
5	0	0	-1	-1
6	1	0	1	0
7	0	0	0	0
8	-1	1	0	0
9	0	1	0	-1
10	0	-1	1	0
11	0	1	1	0
12	0	0	0	0
13	0	0	0	0
14	0	1	0	1
15	1	0	-1	0
16	-1	0	-1	0
17	1	-1	0	0
18	0	0	1	-1
19	0	1	-1	0
20	-1	0	0	1
21	-1	-1	0	0
22	0	-1	0	1
23	0	-1	-1	0
24	0	0	-1	1
25	0	0	1	1
26	-1	0	1	0
27	-1	0	0	-1

### LİTERATÜR ARAŞTIRMASI

Dünya nüfusundaki artıştan dolayı pestisit üretimi ve pestisit kullanımı artmakta ve bunun sonucu olarak pestisitlerin su bünyelerine bulaşması insan ve çevre sağlığını tehdit etmektedir. Bu yüzden, pestisitlerin atık su bünyelerinden giderilmesi büyük önem kazanmıştır. Bu bölümde hem Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerinin çeşitli adsorbentler ile atık sulardan giderimi, hem de maliyeti düşük olan badem ve kestane kabuklarının adsorpsiyon prosesinde adsorbent olarak kullanıldığı bazı çalışmalar özetlenmiştir.

**Memon vd.** tarafından gerçekleştirilen çalışmada; çeşitli kimsayal ve ısıl işlemler uygulanan kestane kabukları ile Carbofuran ve Metil Paration pestisitlerinin sulu çözeltilerden gideriminde farklı pH, kabuk konsantrasyonu, temas süresi, çalkalama hızı ve pestisit konsantrasyonu gibi parametrelerin adsorpsiyona olan etkileri incelenmiştir. Kestane kabukları önce 1 saat 0.1 M nitrik asit içerisinde, daha sonra 1 saat metanol içerisinde bekletilmiş ve 100, 300 ve 500 °C'de ısıl işleme tabi tutulmuştur. Gerçekleştirilen çalışmalarda uygulanan kimyasal ön işlemin % adsorpsiyon oranını arttırdığı görülmüştür. 100 ve 300 °C'de ısıl işlem uygulanmış numunelerde ısıl işlemin adsorpsiyonu olumlu etkilediği; 500 °C'de gerçekleştirilen ısıl işlemin ise adsorpsiyonu olumsuz etkilediği rapor edilmiştir. pH değeri azaldıkça adsorpsiyon yüzdesinin arttığı ve adsorpsiyon işleminde pH'nın büyük bir öneminin olduğu belirtilmiştir. Aynı zamanda, adsorban konsantrasyonu ve karıştırma hızı arttıkça adsorpsiyonun arttığı ve 10-100 mg/L aralığında pestisit konsantrasyonu arttıkça adsorpsiyon yüzdesinin düştüğü görülmüştür. Adsorpsiyon izoterm modellerinden Langmuir, Freundlich ve Dubinin-Radushkevich modellerinin deneysel verilere uygunluğu incelenmiş ve Freundlich modelinin adsorpsiyon işlemleri için en uygun izoterm modeli olduğu

belirlenmiştir. Freundlich izoterm modeli katsayısı ( $K_F$ ), Carbofuran ve Metil Paration pestisitleri için sırasıyla  $7.78 \pm 0.5$  ve  $4.72 \pm 0.7$  ( $\text{mg}^{1-1/n} \cdot \text{l}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ ) olarak tespit edilmiştir. Ayrıca, lokal bir tarım alanının yakınından yeraltı ve yerüstü sularından alınan atık su örneklerindeki Carbofuran ve Metil Paration miktarları tespit edilmiş ve bu atık su adsorpsiyon deneylerinde kullanılmıştır. Gerçek su örnekleriyle gerçekleştirilen çalışmada Carbofuran ve Metil Paration giderimleri yerüstü suyu örneği için sırasıyla %  $97 \pm 1.5$  ve %  $99 \pm 1.0$  ve yeraltı suyu örneği için sırasıyla %  $97 \pm 0.5$  ve %  $99 \pm 1.5$  olarak bulunmuştur. Yapılan bu çalışmada maliyeti düşük olan kestane kabuğunun pestisit adsorpsiyonunda etkili olduğu ve kullanılabilceği sonucuna varılmıştır [9].

**Santos vd.** tarafından gerçekleştirilen çalışmada, badem kabukları kullanılarak sulu çözeltilerden Pentaklorofenol pestisitinin giderimi ve badem kabuklarının adsorpsiyon kapasitesi araştırılmıştır.  $100 \mu\text{g/L}$  pestisit konsantrasyonunda pH 2’de gerçekleştirilen çalışmada maksimum Pentaklorofenol giderimi %  $93 \pm 0.14$  olarak bulunmuştur. Ayrıca,  $100 \mu\text{g/l}$  sabit Pentaklorofenol konsantrasyonunda ve  $100 \text{ ml}$ ’de  $10 \text{ mg}$ - $10 \text{ g}$  arasında değişen miktarlarda badem kabuğu kullanılarak gerçekleştirilen deneyler için adsorpsiyon izotermi modelleme çalışmalarında Freundlich izoterm modelinin adsorpsiyon için en uygun izoterm modeli olduğu belirlenmiş ve Freundlich izoterm modeli katsayıları olan  $K_F$  ve  $1/n$  sırasıyla,  $0.075 \pm 0.081 \text{ mg}^{1-1/n} \cdot \text{l}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$  ve  $1.882 \pm 0.289$  olarak bulunmuştur. Çalışmalardan elde edilen sonuçlardan, badem kabuğunun düşük maliyetli iyi bir adsorbent olabileceği sonucuna varılmıştır [109].

**Salman vd.** tarafından gerçekleştirilen çalışmada, nar ağacı dallarının karbonizasyonu sonucu elde edilen nar ağacı dalı aktif karbonu kullanılarak Bentazon pestisinin adsorpsiyonu çalışılmıştır. Çalışmada farklı pestisit konsantrasyonlarının ( $25$ - $250 \text{ mg/L}$ ) ve farklı pH değerlerinin ( $2$ - $12$ ) adsorpsiyon kapasitesi üzerindeki etkileri ve farklı adsorpsiyon izoterm modellerinin (Langmuir, Freundlich, Temkin) adsorpsiyona uygunluğu incelenmiştir. Bentazon’un nar ağacı dalı aktif karbonuna olan adsorpsiyonunda pH değerinin artmasının adsorpsiyonu olumsuz etkilediği ve adsorpsiyon denge konsantrasyonun artan pH değeri ile azaldığı görülmüştür. Ayrıca, adsorpsiyon kapasitesinin, artan Bentazon konsantrasyonuyla arttığı gözlemlenmiştir. İncelenen izoterm modelleri arasında deneysel verilere en iyi uygunluğu Langmuir ve Freundlich izoterm modellerinin sağladığı belirlenmiştir. Langmuir modeli için  $q_m$  ( $\text{mg/g}$ ),  $b$  ( $\text{L/mg}$ ) ve  $R^2$  değerleri sırasıyla  $80$ ,  $0.061$  ve  $0.97$  olarak hesaplanırken;

Freundlich modeli için  $K_F$  ( $\text{mg/g} * (\text{L/mg})^{1/n}$ ),  $1/n$  ve  $R^2$  deęerleri sırasıyla 12.48, 0.405 ve 0.960 olarak hesaplanmıřtır [110].

**Hameed vd.** tarafından gerekleřtirilen alıřmada, hurma ekirdeklerinin karbonizasyonu sonucu elde edilen hurma ekirdeęi aktif karbonu kullanılarak Bentazon ve Carbofuran pestisitlerinin, sulu özeltilerden adsorpsiyonu ve farklı pH (2-12) ve farklı pestisit konsantrasyonlarının (25-250 mg/L) adsorpsiyona olan etkileri alıřılmıřtır. Gerekleřtirilen deneyler sonucunda, pestisit konsantrasyonunun artmasıyla adsorpsiyon kapasitesinin arttıęı ve artan pH ile adsorpsiyon kapasitesinin azaldıęı gözlemlenmiřtir. Aynı zamanda, her iki pestisit adsorpsiyonu için Langmuir ve Freundlich izoterm modellerinin adsorpsiyona uygunluęu incelenmiř ve en uygun modelin Freundlich izoterm modeli olduęu tespit edilmiřtir. Freundlich izoterm modeli için  $K_F$  ( $\text{mg}^{1-1/n} * \text{L}^{1/n} * \text{g}^{-1}$ ),  $n$  ve  $R^2$  deęerleri Bentazon için sırasıyla 6.47, 1.78 ve 0.975; Carbofuran için sırasıyla 13.03, 2.68 ve 0.975 olarak bulunmuřtur. Langmuir izoterm modeli için  $q_m$  ( $\text{mg/g}$ ) ve  $R^2$  deęerleri Bentazon için sırasıyla 86.26 ve 0.968; Carbofuran için sırasıyla 137.04 ve 0.968 olarak bulunmuřtur. Arařtımacılar elde ettikleri sonuçlar ve gerekleřtirdikleri literatür alıřmaları sonucunda, hurma ekirdeęi aktif karbonunun Bentazon ve Carbofuran pestisitlerinin adsorpsiyonunda kullanılabilir bir adsorbent olduęu sonucuna varmıřlardır [111].

**De Wilde vd.** tarafından gerekleřtirilen alıřmada, hindistan cevizi talařı, bahe atık gübresi, kumlu balık kili, inek gübresi, torf karıřımı, saman ve sөгüt talařı adsorbentleri kullanılarak Bentazon, Metalaxyl, İsoprutrom, Linuron, İsoxaben ve Lenacil pestisitlerinin sulu özeltilerden adsorpsiyonu incelenmiřtir. Adsorpsiyon izotermi belirlemek için modelleme alıřmaları gerekleřtirilmiř ve Freundlich izoterm modelinin tüm adsorbat ve adsorbentlerle gerekleřtirilen adsorpsiyon iřlemleri için en uygun izoterm modeli olduęu belirlenmiřtir. Bentazon için Freundlich izoterm modeli katsayısı  $K_F$  ( $\text{mg}^{1-1/n} * \text{L}^{1/n} * \text{g}^{-1}$ ), hindistan cevizi talařı, bahe atık gübresi, kumlu balık kili, inek gübresi, torf karıřımı, saman ve sөгüt talařı adsorbentleri için sırasıyla 0.00708, 0.00245, 0.00057, 0.00436, 0.00927, 0.00254 ve 0.0022 olarak bulunmuřtur. Aynı řekilde, Metalaxyl için  $K_F$  ( $\text{mg}^{1-1/n} * \text{L}^{1/n} * \text{g}^{-1}$ ) katsayısı aynı adsorbentler için sırasıyla 0.01066, 0.01659, 0.00691, 0.00425, 0.05883, 0.00658 ve 0.00229 olarak bulunmuřtur. Yapılan alıřma sonucunda, Bentazon ve Metalaxyl pestisitleri için en yüksek adsorpsiyon kapasitesine sahip adsorbentin, torf karıřımı olduęu belirlenmiřtir [112].

**Vergili vd.** tarafından gerçekleştirilen çalışmada, organik polimer reçine olan Lewatit VP OC 1163 kullanılarak, Metalaxyl, 2,4-D ve MCPA pestisitlerinin sulu çözeltilerden adsorpsiyon ile giderimi incelenmiştir. Gerçekleştirilen modelleme çalışmaları sonucunda her iki pestisit adsorpsiyonu için Freundlich izoterm modelinin en uygun izoterm modeli olduğu bulunmuştur. Metalaxyl, 2,4-D ve MCPA pestisitleri için Freundlich izoterm katsayısı  $K_F$  ( $\text{mg}^{1-1/n} \cdot \text{L}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ ) sırasıyla 0.269, 0.017 ve 0.014 olarak hesaplanmıştır. Adsorpsiyonu çalışılan üç pestisit arasında, Metalaxyl için adsorbent adsorpsiyon kapasitesinin daha yüksek olduğu görülmüştür. Bu sonucun, pestisitlerin farklı kimyasal yapıları ve farklı fiziksel özellikleri ve kullanılan reçinenin doğasından kaynaklandığı belirtilmiştir [113].

**Wanyika vd.** tarafından gerçekleştirilen çalışmada, mezofor silika nanoparçacıklarıyla, Metalaxyl pestisitinin sulu çözeltilerden adsorpsiyon ve desorpsiyonu incelenmiştir. Adsorpsiyon işlemini ifade etmek için Freundlich izoterm modeli kullanılmıştır. Freundlich izoterm modeli katsayıları olan  $K_F$  ( $\text{mg}^{1-1/n} \cdot \text{L}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ ) ve  $n_F$  sırasıyla  $10^{-5}$  ve 0.413 olarak belirlenmiştir. Bulunan  $K_F$  değerinin düşük olması adsorbent adsorpsiyon kapasitesinin düşük olduğunu göstermiştir.  $n_F$  değerinin düşük olması ise Metalaxyl moleküllerinin mezofor silika nanoparçacıklarının gözeneklerine heterojen bir yayılım gerçekleştirmesine bağlanmıştır [114].

**Sanchez-Martin vd.** tarafından gerçekleştirilen çalışmada, katyonik bir sürfaktan olan oktadesiltrimetilamonyum bromit ile modifiye edilmiş 6 farklı doğal kil minerali (montmorillonite, illite, kaolinite, muscovite, sepiolite ve palygorskite) kullanılarak Metalaxyl, Penconazole, Linuron, Alachlor ve Atrazine pestisitlerinin, sulu çözeltilerden adsorpsiyonu ve desorpsiyonu incelenmiştir. Adsorpsiyon işlemi hem modifiye edilmiş killer ile hem de modifiye edilmemiş killer ile yapılarak, elde edilen sonuçlar birbirleriyle karşılaştırılmıştır. Lineer izoterm modeli ve Freundlich izoterm modellerinin adsorpsiyon işlemlerine uygunluğu incelenmiş ve en uygun izoterm modelinin tüm adsorpsiyon işlemleri için Freundlich izoterm modeli olduğu bulunmuştur. Metalaxyl'in modifiye edilmemiş killer ile adsorpsiyonu için Freundlich izoterm modeli katsayısı  $K_F$  ( $\text{mg}^{1-1/n} \cdot \text{L}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ ) değerleri montmorillonite, illite, kaolinite, muscovite, sepiolite ve palygorskite killeri için sırasıyla  $1.27 \pm 0.00$ ,  $14.1 \pm 6.74$ ,  $0.05 \pm 0.01$ ,  $1.08 \pm 1.10$ ,  $5.02 \pm 3.00$  ve  $2.49 \pm 0.76$  olarak bulunmuştur. Aynı şekilde, Metalaxyl'in oktadesiltrimetilamonyum bromit ile modifiye edilmiş killer ile adsorpsiyonu için Freundlich izoterm modeli katsayısı  $K_F$  ( $\text{mg}^{1-1/n} \cdot \text{L}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ ) değerleri ise



montmorillonite, illite, kaolinite, muscovite, sepiolite ve palygorskite doğal killeri için sırasıyla  $191\pm6.00$ ,  $74.1\pm1.86$ ,  $2.12\pm1.86$ ,  $-2.32\pm4.67$ ,  $25.2\pm1.70$  ve  $20.2\pm9.40$  olarak bulunmuştur. Elde edilen sonuçlardan, killerin oktadesiltrimetilamonyum bromit ile modifikasyonunun adsorpsiyon için son derece etkili olduğu sonucuna varılmıştır [115].

Bu bölümde özetlenen tüm çalışmalarda belirtilen optimum proses şartları ve optimum koşullarda elde edilen sonuçlar karşılaştırma amaçlı olarak Çizelge 7.1'de ayrıca sunulmuştur.

Çizelge 7. 1 Bentazon, Metalaxyl, badem kabuğu ve kestane kabuğu ile ilgili literatürde yer alan bazı adsorpsiyon çalışmaları

Kaynak	Pestisit Türü	Pestisit Derişimi	Adsorbent	Deneysel Koşullar	% Maksimum Adsorpsiyon	İzoterm Modeli	Adsorpsiyon İzotermi Katsayısı
Memon vd. [9]	Carbofuran	10-100 mg/L	Kestane Kabuğu	4 g/L adsorbent, 30 dakika adsorpsiyon süresi pH 6.0 30 ± 2 °C	99 ± %1	Freundlich İzoterm Modeli	$K_F = 4.72 \pm 0.7$ ( $\text{mg}^{1-1/n} \text{l}^{1/n} \text{g}^{-1}$ )
	Metil Paration						$K_F = 7.78 \pm 0.7$ ( $\text{mg}^{1-1/n} \text{l}^{1/n} \text{g}^{-1}$ )
Santos vd. [109]	Pentaklorofenol	100 µg/L	Badem Kabuğu	0.10 – 100 g/L, adsorbent, 24 saat adsorpsiyon süresi, pH 2.0 30 °C	% 93 ± 0.14	Freundlich İzoterm Modeli	$K_F = 0.075 \pm 0.081$ ( $\text{mg}^{1-1/n} \text{l}^{1/n} \text{g}^{-1}$ )
Salman vd. [110]	Bentazon	25 - 250 mg/L	Nar Ağacı Dalı Aktif Karbonu	1 g/L adsorbent, pH 2.0, 30 °C 32 saat adsorpsiyon süresi	% 60 (250 mg/L) % 80 (25 mg/L)	Langmuir İzoterm Modeli	$q_m = 80.0$ mg/g
Hameed vd. [111]	Carbofuran	25-250 mg/L	Hurma Çekirdeği Aktif Karbonu	1 g/L adsorbent, Optimum pH 5.5, 120 rpm, 30 °C 36 saat (bentazon) 22 saat (carbofuran) adsorpsiyon süresi	% 92 (25 mg/L) % 50 (250 mg/L)	Freundlich İzoterm Modeli	$K_F = 0.00676$ ( $\text{mg}^{1-1/n} \text{l}^{1/n} \text{g}^{-1}$ )
	Bentazon						% 90 (25 mg/L) % 65 (250 mg/L)
Vergili vd. [113]	Metalaxyl	100, 200, 300 ve 400 mg/L	Lewatit OC 1163 Organik Polimer Reçine	0-100 g/L adsorbent, 25 g/L optimum adsorbent, pH 5.96-6.54, 4 saat adsorpsiyon süresi	% 96 (100 mg/L) % 97 (200 mg/L) % 97.7 (300 mg/L) % 98.1 (400 mg/L)	Freundlich İzoterm Modeli	$K_F = 0.269$ ( $\text{mg}^{1-1/n} \text{l}^{1/n} \text{g}^{-1}$ )

Çizelge 7. 1 Bentazon, Metalaxyl, badem kabuğu ve kestane kabuğu ile ilgili literatürde yer alan bazı çalışmalar (devamı)

Kaynak	Pestisit Türü	Pestisit Derişimi	Adsorbent	Deneyisel Koşullar	% Maksimum Adsorpsiyon	İzoterm Modeli	Adsorpsiyon İzotermi Katsayısı
De Wilde vd. [112]	Bentazon	1, 10, 1000, 2500 ve 5000 mg/L	Söğüt Talaşı	pH 5.0-7.7 1:10 (katı/sıvı) oranında adsorbent 24 saat adsorpsiyon süresi 25 °C	-	Freundlich İzoterm Modeli	$K_F = 0.00220$ (mg <sup>1-1/n</sup> *L <sup>1/n</sup> *g <sup>-1</sup> )
			Bahçe Atık Gübresi				$K_F = 0.00245$ (mg <sup>1-1/n</sup> *L <sup>1/n</sup> *g <sup>-1</sup> )
			Kumlu Balçık Kili				$K_F = 0.00057$ (mg <sup>1-1/n</sup> *L <sup>1/n</sup> *g <sup>-1</sup> )
			İnek Gübresi	$K_F = 0.00436$ (mg <sup>1-1/n</sup> *L <sup>1/n</sup> *g <sup>-1</sup> )			
			Torf Karışımı	pH 5.0-7.7 1:25 (katı/sıvı) oranında adsorbent			$K_F = 0.00927$ (mg <sup>1-1/n</sup> *L <sup>1/n</sup> *g <sup>-1</sup> )
			Saman	24 saat adsorpsiyon süresi			$K_F = 0.00254$ (mg <sup>1-1/n</sup> *L <sup>1/n</sup> *g <sup>-1</sup> )
			H. Cevizi Talaşı	25 °C			$K_F = 0.00708$ (mg <sup>1-1/n</sup> *L <sup>1/n</sup> *g <sup>-1</sup> )
	Metalaxyl	1, 10, 1000, 2500 ve 5000 mg/L	Söğüt Talaşı	pH 5.0-7.7 1:10 (katı/sıvı) oranında adsorbent 24 saat adsorpsiyon süresi 25 °C	-	Freundlich İzoterm Modeli	$K_F = 0.00229$ (mg <sup>1-1/n</sup> *L <sup>1/n</sup> *g <sup>-1</sup> )
			Bahçe Atık Gübresi				$K_F = 0.01659$ (mg <sup>1-1/n</sup> *L <sup>1/n</sup> *g <sup>-1</sup> )
			Kumlu Balçık Kili				$K_F = 0.00691$ (mg <sup>1-1/n</sup> *L <sup>1/n</sup> *g <sup>-1</sup> )
			İnek Gübresi	$K_F = 0.00425$ (mg <sup>1-1/n</sup> *L <sup>1/n</sup> *g <sup>-1</sup> )			
			Torf Karışımı	pH 5.0-7.7 1:25 (katı/sıvı) oranında adsorbent			$K_F = 0.05883$ (mg <sup>1-1/n</sup> *L <sup>1/n</sup> *g <sup>-1</sup> )
			Saman	24 saat adsorpsiyon süresi			$K_F = 0.00658$ (mg <sup>1-1/n</sup> *L <sup>1/n</sup> *g <sup>-1</sup> )
			H. Cevizi Talaşı	25 °C			$K_F = 0.01066$ (mg <sup>1-1/n</sup> *L <sup>1/n</sup> *g <sup>-1</sup> )

Çizelge 7. 1. Bentazon, Metalaxyl, badem kabuğu ve kestane kabuğu ile ilgili literatürde yer alan bazı çalışmalar (devamı)

Kaynak	Pestisit Türü	Pestisit Derişimi	Adsorbent	Deneysel Koşullar	% Maksimum Adsorpsiyon	İzoterm Modeli	Adsorpsiyon İzotermi Katsayısı
Wanyik a vd. [114]	Metalaxyl	200-800 mg/L	Mezofor Silika Nanoparçacıkları	3.33 g/L adsorbent 25 ± 2 °C 24 saat adsorpsiyon süresi	% 14 (700 mg/L)	Freundlich İzoterm Modeli	$K_F = 10^{-5}$ ( $\text{mg}^{-1-1/n} \cdot \text{L}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ )
Sanchez -Martin vd. [115]	Metalaxyl	5, 10, 15, 20 ve 25 mg/L	Montmorillonite	5 g/L adsorbent, 20 ± 2 °C, 24 saat adsorpsiyon süresi	-	Freundlich İzoterm Modeli	$K_F = 1.27 \pm 0.00$ ( $\text{mg}^{-1-1/n} \cdot \text{L}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ )
			İllite				$K_F = 2.49 \pm 0.76$ ( $\text{mg}^{-1-1/n} \cdot \text{L}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ )
			Kaolinite				$K_F = 0.05 \pm 0.01$ ( $\text{mg}^{-1-1/n} \cdot \text{L}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ )
			Muscovite				$K_F = 1.08 \pm 1.10$ ( $\text{mg}^{-1-1/n} \cdot \text{L}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ )
			Sepiolite				$K_F = 5.02 \pm 3.00$ ( $\text{mg}^{-1-1/n} \cdot \text{L}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ )
			Palygoskite				$K_F = 14.1 \pm 6.74$ ( $\text{mg}^{-1-1/n} \cdot \text{L}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ )
	Metalaxyl	5, 10, 15, 20 ve 25 mg/L	OB-Montmorillonite	5 g/L adsorbent, 20 ± 2 °C, 24 saat adsorpsiyon süresi	-	Freundlich İzoterm Modeli	$K_F = 191 \pm 6.00$ ( $\text{mg}^{-1-1/n} \cdot \text{L}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ )
			OB-İllite				$K_F = 74.1 \pm 1.86$ ( $\text{mg}^{-1-1/n} \cdot \text{L}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ )
			OB-Kaolinite				$K_F = 2.12 \pm 1.86$ ( $\text{mg}^{-1-1/n} \cdot \text{L}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ )
			OB-Muscovite				$K_F = -2.32 \pm 4.7$ ( $\text{mg}^{-1-1/n} \cdot \text{L}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ )
			OB-Sepiolite				$K_F = 25.2 \pm 1.70$ ( $\text{mg}^{-1-1/n} \cdot \text{L}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ )
			OB-Palygoskite				$K_F = 20.2 \pm 9.40$ ( $\text{mg}^{-1-1/n} \cdot \text{L}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ )

### MATERYAL VE YÖNTEM

#### 8.1. Kullanılan Cihazlar

##### pH metre

Adsorpsiyon çözeltilisinin pH değerini kontrol etmek amacı ile EUTECH Alpha-pH800 marka bir pH metre kullanılmıştır. Deneylerde kullanılan pH metre Şekil 8.1’de gösterilmiştir.



Şekil 8. 1 pH metre

## Terazi

Adsorpsiyon iřleminde kullanılan adsorbentlerin tartımı iin 0.001 g hassasiyete sahip, 0-410 g arası tartım kapasiteli SCALTEC SBA markalı bir terazi kullanılmıřtır. Deneylerde kullanılan hassas terazi Őekil 8.2’de gsterilmiřtir.



Őekil 8. 2 Terazi

## Etv

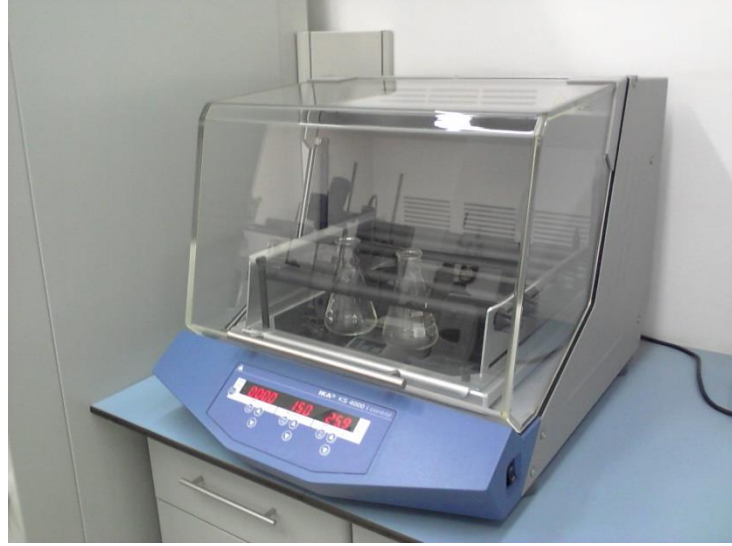
Yıkandıř ve n iřlemden gemiř badem ve kestane kabuęu adsorbentlerini adsorpsiyon iřleminde kullanmadan nce kurutmak ve ierisindeki nemi almak iin Memmert UM 400 marka etv kullanılmıřtır. Deneylerde kullanılan etv Őekil 8.3’de gsterilmiřtir.



Őekil 8. 3 Etv

### **Orbital alkalayıcı**

Deneylerde adsorpsiyon özeltisinin alkalanmasında IKA KS 4000 IC markalı, maksimum 500 rpm alkalama hızı ve 80 °C sıcaklıęa kadar ayarlanabilen sıcaklık kontrollü bir alkalamalı inkübatör kullanılmıştır. Deneylerde kullanılan alkalamalı inkübatör Şekil 8.4’de gösterilmiştir.



Şekil 8. 4 Orbital alkalayıcı

### **Mikro santrifüj**

Adsorpsiyon deneylerinde konsantrasyon ölçümü için belirli zaman aralıklarında alınan örnek özeltilerini santrifüjlemek için HETTICH markalı, 24 hazneli, 0-14000 devir/dakika aralığında ayarlanabilir dönüş hızına sahip bir santrifüj kullanılmıştır. Deneylerde kullanılan santrifüj Şekil 8.5’te gösterilmiştir.



Şekil 8. 5 Mikrosantrifüj

## UV Spektrofotometre

Örneklerin absorbans değerlerini okumak için 190-1100 nm aralığında okuma yapabilen, Döteryum ve Wolfran lambalı, Shimadzu UV-1800 markalı spektrofotometre kullanılmıştır. Deneyleerde kullanılan UV-spektrofotometre Şekil 8.6'da gösterilmiştir.



Şekil 8. 6 UV Spektrofotometre

### 8.2. Kullanılan Kimyasal Maddeler

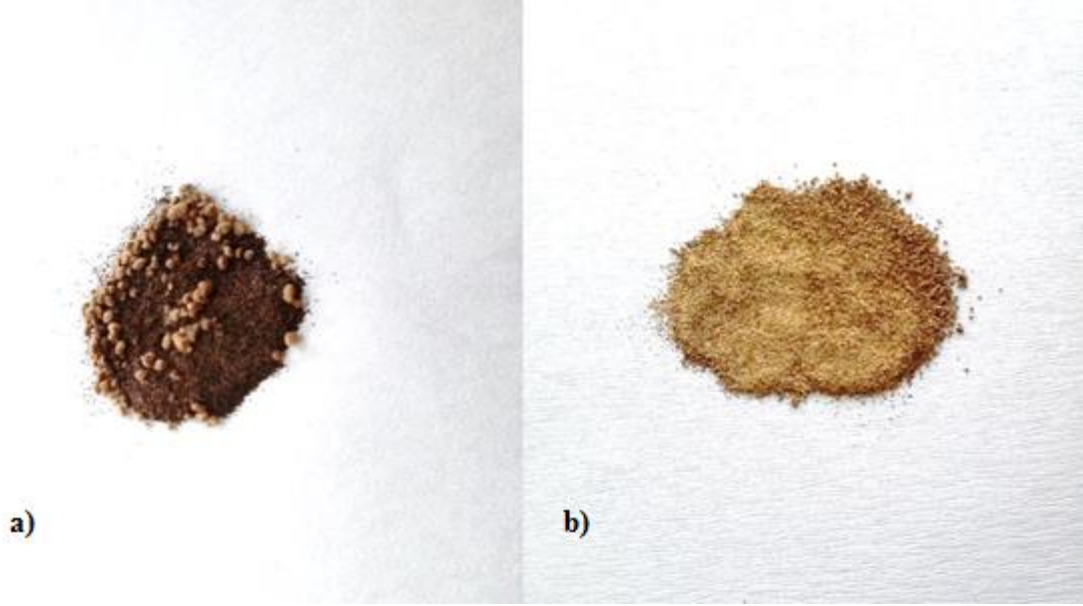
Deneyleerde kullanılan Bentazon (%99.99) ve Metalaxyl (%99.99) pestisitleri Fluka ve Sigma Aldrich firmalarından temin edilmiştir.

### 8.3. Kullanılan Adsorbentler

Adsorpsiyon deneylelerinde kullanılan badem kabukları Balıkesir'deki yerel bir firmadan, kestane kabukları Bursa'daki bir kestane şekeri fabrikasından temin edilmiştir. Deneyleerde kullanılmadan önce, badem ve kestane kabukları iyice yıkanmış ve 50 °C'deki etüvde kurutulduktan sonra 0.355-0.560 mm mesh boyut aralığında öğütülmüştür. Öğütülen kabuklar öncelikle 15 dakika saf su içerisinde kaynatılarak ısı işleme tabi tutulmuştur. Ardından, 2 saat boyunca 0.6 M sitrik asit içerisinde bekletilerek kimyasal ön işleme tabi tutulmuştur. Ön işlem sonrası kabuklar saf su ile yıkayıp 50 °C'de kurutulmuştur. Kurutulan kabuklar deneylelerde kullanılmak üzere desikatörde muhafaza edilmiştir.



Deneylerde kullanılmak üzere hazırlanan 0.355-0.560 mm tane boyutu aralığındaki badem ve kestane kabuğu numuneleri Şekil 8.7’de gösterilmiştir.



Şekil 8. 7 Ön işlem sonrası deneylerde kullanıma hazır hale getirilen kestane (a) ve badem (b) kabukları

#### **8.4. Pestisit Çözeltilerinin Hazırlanması**

Deneylerde kullanılan Bentazon ve Metalaxyl stok çözeltileri, toz halindeki Bentazon (250 mg) ve Metalaxyl (100 mg)’in 0.1 ml metanolde çözülmesi ve çözeltinin destile su ile 1 litreye tamamlanması ile hazırlanmıştır. Deneysel çalışmalarda kullanılan çözeltiler istenilen konsantrasyonlara stok çözeltilerin saf su ile seyreltilmesi ile getirilmiştir.

#### **8.5. Deneysel Çalışmaların Planlanması**

Bentazon ve Metalaxyl’in badem ve kestane üzerine adsorpsiyonu deneylerinin planlanması ve optimizasyonu, Box-Behnken deneysel tasarım yöntemi kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Çizelge 8.1’de verilen pH, pestisit konsantrasyonu, adsorbent konsantrasyonu ve adsorpsiyon zamanı deney parametreleri, pestisitlerin adsorpsiyon prosesi ile giderilmesi ve bu işlem için kullanılan adsorbentler için yapılan literatür araştırması ve gerçekleştirilen ön denemeler dikkate alınarak seçilmiştir.

Çizelge 8. 1 Adsorpsiyon prosesi için deneysel tasarım ile incelenen parametre değerleri

<b>Parametreler</b>	<b>Düşük Değer (-1)</b>	<b>Orta Değer (0)</b>	<b>Yüksek Değer (+1)</b>
<b>pH</b>	2	3.5	5
<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>	1	2	3
<b>Pestisit Konsantrasyonu (mg/L)</b>	25	50	75
<b>Adsorpsiyon Süresi (dakika)</b>	40	80	120

3 merkez tekrarlı olarak dizayn edilen Box-Behnken deneysel tasarım yöntemi için 27 farklı kombinasyondaki deney seti Çizelge 8.2’de gösterilmiştir.

Çizelge 8. 2 Box-Behnken deneysel tasarımı deney seti

<b>Deney</b>	<b>pH</b>	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50ml)</b>	<b>Pestisit Konsantrasyonu (mg/L)</b>	<b>Zaman (dakika)</b>
1	3.5	2	50	80
2	2	2	50	120
3	3.5	1	50	120
4	3.5	2	75	120
5	5	1	50	80
6	2	1	50	80
7	5	2	50	40
8	2	2	75	80
9	5	3	50	80
10	3.5	1	50	40
11	3.5	2	25	40
12	3.5	2	75	40
13	5	2	75	80
14	3.5	3	75	80
15	3.5	2	50	80
16	3.5	2	25	120
17	5	2	50	120
18	2	2	25	80
19	3.5	3	25	80
20	5	2	25	80
21	3.5	1	75	80
22	2	2	50	40
23	3.5	3	50	120
24	2	3	50	80
25	3.5	3	50	40
26	3.5	2	50	80
27	3.5	1	25	80

## **8.6. Deneylerin Yapılışı**

### **8.6.1. Deneysel tasarım deneyleri**

Çizelge 8.1’de verilen Box-Behnken deneysel tasarımındaki her adsorpsiyon deneyi için 100 mL’lik erlene 50 mL pestisit çözeltisi konulup, iyice karışması sağlandıktan sonra çözeltinin deney tasarımında belirtilen pH değeri 0.1 M HCl ve 0.1 M NaOH kullanılarak ayarlanmıştır. Çözeltinin pH değeri ayarlandıktan sonra deneysel tasarımda belirtilen gerekli miktarda adsorbent tartılıp erlen içerisindeki pestisit çözeltisine ilave edilerek deney başlatılmıştır. Numuneler, orbital çalkalayıcıda 150 rpm karıştırma hızında çalkalanmaya bırakılmıştır. Adsorpsiyon işlemi 25 °C sabit sıcaklıkta, belirlenen pH ve temas sürelerinde gerçekleştirilmiştir. Biyoadsorbentler çözeltiliye eklendiği an,  $t=0$  anı olarak alınmış ve deneysel tasarımda belirlenen adsorpsiyon süreleri sonunda (40., 80. ve 120. dakika) adsorpsiyon çözeltisinden numuneler alınarak, mikrosantrifüjde 14000 rpm hızında 3 dakika boyunca santrifüjlenmiştir. Santrifüjlenen numunelerin pestisit konsantrasyonu analizleri spektrofotometrik yöntemle yapılmıştır. Analizler 3’er kez tekrar edilmiş ve ortalama değerleri alınmıştır.

### **8.6.2. Kinetik deneyleri**

Çizelge 8.1’de verilen Box-Behnken deneysel tasarımındaki her adsorpsiyon deneyi için kinetik çalışma yapılmıştır. Biyoadsorbentlerin, hazırlanan çözeltilere eklendiği an  $t=0$ . olarak alınmış ve kinetik çalışma için 5, 10, 20, 40, 60, 80 ve 120. dakikalarda adsorpsiyon çözeltisinden numuneler alınarak, mikrosantrifüjde 14000 rpm hızında 3 dakika boyunca santrifüjlenmiştir. Santrifüjlenen numunelerin pestisit konsantrasyonu analizleri spektrofotometrik yöntemle yapılmıştır.

### **8.6.3. Adsorpsiyon izoterm deneyleri**

Gerçekleştirilen Box-Behnken deneysel tasarımından, elde edilen optimum pH ve pestisit konsantrasyonu değerlerinde farklı adsorbent konsantrasyonlarında (0.5, 1.0, 2.0, 2.5 ve 3.0 g/50ml) adsorpsiyon izotermi belirlemek için deneyler yapılmıştır. Denge verilerini belirlemek için adsorpsiyon deneyleri 300 dakika süresince gerçekleştirilmiş ve pestisit adsorpsiyonu zamana karşı incelenmiştir. Santrifüjlenen numunelerin pestisit konsantrasyonu analizleri spektrofotometrik yöntemle yapılmıştır.

## **8.7. Pestisit Analizi**

Adsorpsiyon deneyi süresince ortamda kalan pestisit miktarları; spektrofotometrik yöntemle, Bentazon ve Metalaxyl numunelerinin absorbans değerlerinin sırasıyla 232 nm ve 215 nm’de ölçülmesi ile belirlenmiştir. Ölçülen absorbans değerlerinden pestisit konsantrasyonlarının hesaplanabilmesi için kalibrasyon grafikleri oluşturulmuştur.

### **8.7.1 Kalibrasyon Grafiklerinin Oluşturulması**

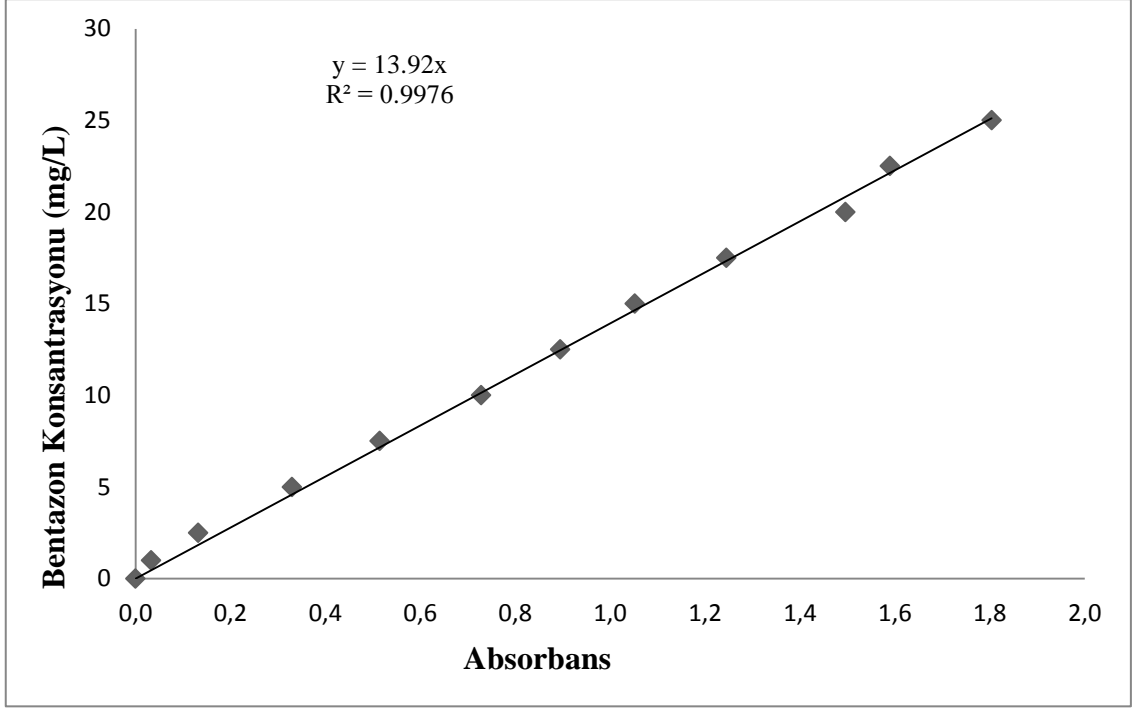
Kalibrasyon grafiklerini oluşturmak amacıyla her iki pestisit için bilinen konsantrasyonlarda çözeltiler hazırlanmıştır. Hazırlanan Bentazon ve Metalaxyl çözeltilerinin absorbans değerleri UV-spektrofotometrede sırasıyla 232 nm ve 215 nm dalga boyunda okunmuştur. Yapılan bu çalışma 3 kez tekrarlanmış ve okunan absorbans değerlerinin ortalaması alınmıştır. Kalibrasyon grafiği oluşturmak için kullanılan Bentazon ve Metalaxyl konsantrasyonları ve bu konsantrasyonlara karşı elde edilen ortalama absorbans değerleri sırasıyla Çizelge 8.3 ve Çizelge 8.4’te verilmiştir. İki pestisit için hazırlanan kalibrasyon grafikleri, kalibrasyon denklemleri ve denklemlerin regresyon katsayıları ( $R^2$ ) Şekil 8.8 ve Şekil 8.9’da gösterilmiştir.

Çizelge 8. 3 Bentazon için kalibrasyon grafiđi verileri

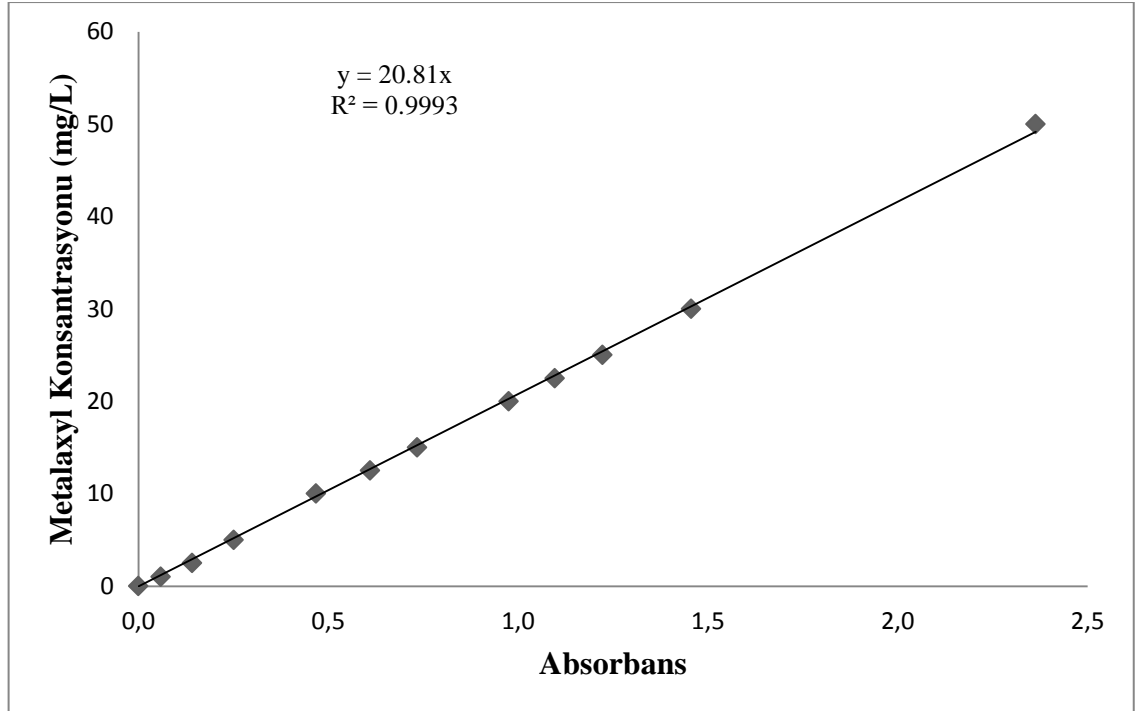
<b>Bentazon Konsantrasyonu (mg/L)</b>	<b>Ortalama Absorbans Deđerleri</b>
25	1.804
22.5	1.590
20	1.496
17.5	1.245
15	1.052
12.5	0.895
10	0.728
7.5	0.514
5	0.329
2.5	0.132
1.0	0.033
0	0

Çizelge 8. 4 Metalaxyl için kalibrasyon grafiđi verileri

<b>Metalaxyl Konsantrasyonu (mg/L)</b>	<b>Ortalama Absorbans Deđerleri</b>
50	2.363
30	1.456
25	1.222
22.5	1.097
20	0.975
15	0.734
12.5	0.610
10	0.467
5	0.251
2.5	0.141
1	0.058
0	0



Şekil 8. 8 Bentazon için oluşturulan kalibrasyon grafiği



Şekil 8. 9 Metalaxyl için oluşturulan kalibrasyon grafiği

## 8.8. Hesaplamalar

Analiz edilen örneklere ait Bentazon ve Metalaxyl konsantrasyon değerleri sırasıyla Eşitlik (8.1) ve Eşitlik (8.2) kullanılarak hesaplanmıştır.

$$C \text{ (mg/L)} = 13.92 * (\text{Absorbans değeri}) * \text{Seyreltme Faktörü} \quad (8.1)$$

$$C \text{ (mg/L)} = 20.81 * (\text{Absorbans değeri}) * \text{Seyreltme Faktörü} \quad (8.2)$$

Konsantrasyon değerleri belirlenmiş olan pestisitlerin % adsorpsiyon değerleri Eşitlik (8.3) kullanılarak hesaplanmıştır.

$$\% \text{ Adsorpsiyon} = \left[ \frac{(C_0 - C_t)}{C_0} \right] * 100 \quad (8.3)$$

Eşitlik (8.3)'te;

$C_0$  : pestisit çözeltisinin başlangıç konsantrasyonunu (mg/L),

$C_t$  : herhangi bir t anında çözeltide kalan pestisit konsantrasyonunu (mg/L),

ifade etmektedir.

Herhangi bir t anında adsorpsiyon kapasitesi değeri ise Eşitlik (8.4) kullanılarak hesaplanmıştır.

$$q_t = \frac{(C_0 - C_t) * V}{M} \quad (8.4)$$

Eşitlik (8.4)'de;

$q_t$  : adsorbanın birim kütlesi başına adsorpladığı pestisit miktarını (mg/g),

$C_0$  : pestisit çözeltisinin başlangıç konsantrasyonunu (mg/L),

$C_t$  : herhangi bir t anında çözeltide kalan pestisit konsantrasyonunu (mg/L),

$V$  : çözeltinin hacmini (L),

$M$  : kullanılan adsorbentin kütlesini (g),

ifade etmektedir.



### **8.9. Teorik Çalışma**

Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerinin badem ve kestane kabukları ile adsorpsiyon işlemi için gerçekleştirilen Box-Behnken deneysel tasarımı, varyans analizi ve optimizasyon işlemleri için Design Expert 9.0 paket programı kullanılmıştır. Bununla birlikte, adsorpsiyon kinetiği ve adsorpsiyon izoterm modellerini belirlemek için gerçekleştirilen modelleme çalışmalarında Curve Expert 1.3 paket programı kullanılmıştır.

### ARAŞTIRMA BULGULARI

Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerinin badem ve kestane kabukları ile adsorpsiyonuna pH, adsorbent konsantrasyonu, pestisit konsantrasyonu ve adsorpsiyon süresi parametrelerinin etkilerinin eş zamanlı olarak incelenmesi amacıyla adsorpsiyon deneyleri, Design Expert 9.0 paket programı yardımıyla Box-Behnken deneysel tasarım yöntemi kullanılarak belirlenen proses şartlarında gerçekleştirilmiştir.

Elde edilen deneysel veriler Design Expert 9.0 programına girilerek adsorpsiyon deneyleri için model denklemler oluşturulmuş, oluşturulan model denklemlerin istatistiksel analizleri yapılmış adsorpsiyon proseslerinin optimizasyonları gerçekleştirilmiştir.

Box-Behnken deneysel tasarım modelinden elde edilen optimizasyon sonuçları, proses ekonomisi baz alınarak, proses parametrelerinden en uygun pH değeri, kısa sürede maksimum pestisit giderimi için: maliyeti çok düşük olduğu için maksimum adsorbent miktarı, maksimum pestisit konsantrasyonu ve minimum adsorpsiyon süresi kullanılarak hesaplanmıştır.

Ekonomik bazda hesaplanan deneysel tasarım sonuçlarından elde edilen optimum parametre değerleri kullanılarak farklı adsorbent miktarlarında (0.5, 1.0, 2.0, 2.5 ve 3.0 g/50 ml) adsorpsiyon deneyleri gerçekleştirilmiş ve elde edilen deneysel verilerin Langmuir, Freundlich, BET ve Temkin izoterm modellerinin uygunluğu incelenmiştir. Ayrıca, Box-Behnken deneysel tasarımında yer alan deneylerin ve adsorpsiyon izotermi deneyleri için kinetik çalışması gerçekleştirilmiş ve her bir adsorpsiyon prosesi için en uygun kinetik model belirlenmiştir.

## 9.1. Deneysel Tasarım Sonuçları

### 9.1.1. Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için deneysel tasarım sonuçları

Badem kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için Box-Behnken deneysel tasarım yöntemi uygulanarak belirlenen farklı pH, adsorbent konsantrasyonu, pestisit konsantrasyonu ve adsorpsiyon sürelerinde gerçekleştirilen 24 deney ve orta noktada 3 tekrar deneyi için elde edilen % adsorpsiyon değerleri Çizelge 9.1'de verilmiştir.

Çizelge 9. 1 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonunun deneysel tasarım sonuçları

Deney	A : pH	B : Adsorbent Konsantrasyonu (g/50ml)	C : Pestisit Konsantrasyonu (mg/L)	D: Adsorp. Süresi (dakika)	% Adsorpsiyon
1	3.5	2	50	80	33.50
2	2	2	50	120	77.60
3	3.5	1	50	120	28.60
4	3.5	2	75	120	27.10
5	5	1	50	80	9.40
6	2	1	50	80	56.00
7	5	2	50	40	20.90
8	2	2	75	80	68.50
9	5	3	50	80	19.90
10	3.5	1	50	40	23.10
11	3.5	2	25	40	36.80
12	3.5	2	75	40	30.60
13	5	2	75	80	17.00
14	3.5	3	75	80	39.80
15	3.5	2	50	80	32.00
16	3.5	2	25	120	48.30
17	5	2	50	120	32.10
18	2	2	25	80	82.80
19	3.5	3	25	80	28.30
20	5	2	25	80	14.40
21	3.5	1	75	80	21.70
22	2	2	50	40	62.30
23	3.5	3	50	120	33.80
24	2	3	50	80	71.80
25	3.5	3	50	40	30.70
26	3.5	2	50	80	24.40
27	3.5	1	25	80	17.00

Çizelge 9.1 incelendiğinde en yüksek % adsorpsiyon değerinin pH 2.0, 2 g/50ml adsorbent konsantrasyonu ve 25 mg/L Bentazon konsantrasyonunda 80 dakika süreyle gerçekleştirilen adsorpsiyon işlemi sonucunda (18. deneyde) % 82.8 olarak elde edildiği görülmektedir. En düşük % adsorpsiyon değeri ise pH 5.0, 1 g/50 ml adsorbent konsantrasyonu, 50 mg/L Bentazon konsantrasyonunda ve 80 dakika süreyle gerçekleştirilen adsorpsiyon işlemi sonucunda (5. deneyde) % 9.40 olarak elde edilmiştir. Orta noktalarda (pH 3.5, 2 g/50 ml adsorbent konsantrasyonu, 50 mg/L bentazon konsantrasyonu ve 80 dakika adsorpsiyon süresi) gerçekleştirilen 3 tekrar deneyi sonucu elde edilen % adsorpsiyon değerlerinin birbirine yakın olması deneysel hataların başarıyla minimize edildiğini göstermektedir.

Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyon işlemi sonucunda elde edilen deneysel veriler için Design Expert 9.0 programında Quadratik model seçilerek model denklem geliştirilmiş ve bu model denklem Eşitlik (9.1)'de verilmiştir. Modelin varyans analizi (ANOVA) sonuçları ise Çizelge 9.2'de gösterilmiştir.

Çizelge 9. 2 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen deneysel tasarım modelinin ANOVA analizi

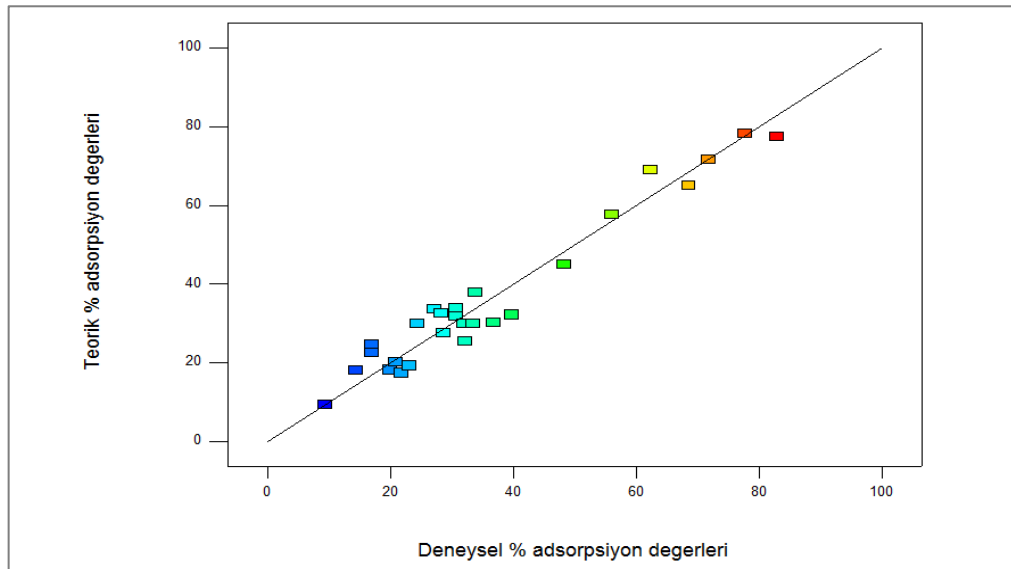
Kaynak	Kareler Toplamı	Serbestlik Derecesi	Ort. Kareler Değeri	F Değeri	p-değeri	Anlamlılık
Model	10162.57	14	725.90	16.57	< 0.0001	Anlamlı
A-pH	7767.34	1	7767.34	177.26	< 0.0001	
B-Ads. Kon.	391.02	1	391.02	8.92	0.0113	
C-Pest. Kon.	43.70	1	43.70	1.00	0.3377	
D-Ads.Süresi	154.80	1	154.80	3.53	0.0847	
AB	7.02	1	7.02	0.16	0.6960	
AC	71.40	1	71.40	1.63	0.2259	
AD	4.20	1	4.20	0.096	0.7621	
BC	11.56	1	11.56	0.26	0.6168	
BD	1.44	1	1.44	0.033	0.8592	
CD	56.25	1	56.25	1.28	0.2793	
A <sup>2</sup>	1070.37	1	1070.37	24.43	0.0003	
B <sup>2</sup>	128.49	1	128.49	2.93	0.1125	
C <sup>2</sup>	13.94	1	13.94	0.32	0.5831	
D <sup>2</sup>	88.20	1	88.20	2.01	0.1814	
Kalan	525.83	12	43.82			
Uygunsuzluk	478.22	10	47.82	1.87	0.3778	Anlamlı değil
Hata	47.61	2	23.80			
Toplam	10688.40	26				

$$\begin{aligned} \% \text{ Ads} = & + 152.926 - 63.535*A + 26.233*B - 0.5653*C - 0.0396*D - 0.8833*A*B + \\ & 0.11267*A*C - 0.01708*A*D + 0.068*B*C - 0.015*B*D - 0.00375*C*D + \\ & 6.2963*A^2 - 4.908*B^2 + 0.00259*C^2 + 0.00254*D^2 \end{aligned} \quad (9.1)$$

Box-Behnken deneysel tasarım model denklemindeki parametrelerin pozitif ve negatif katsayılı değerlere sahip olması, bu parametrelerin % adsorpsiyon değeri üzerinde yaptıkları etkiyi göstermektedir. Eşitlik (9.1) incelendiğinde, pH (A) ve pestisit konsantrasyonu (C) ve adsorpsiyon süresi (D) azaldığında; adsorbent konsantrasyonu (B) ise arttığında % adsorpsiyon değerinin arttığı görülmektedir. Ayrıca, % adsorpsiyon değerinin (pH\*pestisit konsantrasyonu) ve (adsorbent konsantrasyonu\*pestisit konsantrasyonu) terimlerinin artması ile arttığı ve (pH\*adsorbent konsantrasyonu), (pH\*adsorpsiyon süresi), (adsorbent konsantrasyonu\*adsorpsiyon süresi) ve (pestisit konsantrasyonu\*adsorpsiyon süresi) terimlerinin artması ile de azaldığı görülmektedir.

Tasarım modelinin ANOVA analizi sonucunda 16.57 olarak hesaplanan F değerinin ve 0.0001'den küçük olan p değerlerinin anlamlı olması, uygunsuzluk değerinin (Lack of Fit) anlamsız olması ve korelasyon katsayısı  $R^2$  değerinin 0.9508 bulunması istatistiksel olarak modelin uygulanabilir olduğunu göstermektedir.

Box-Behnken tasarım yöntemi uygulanarak gerçekleştirilen deneyler sonucunda elde edilen % adsorpsiyon değerlerinin, elde edilen model denklemden hesaplanan teorik % adsorpsiyon değerleri ile karşılaştırılması Şekil 9.1 ve Çizelge 9.3'de gösterilmiştir.



Şekil 9. 1 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonundan elde edilen deneysel adsorpsiyon verileri ile Box-Behnken tasarım modelinden elde edilen teorik adsorpsiyon verilerinin karşılaştırılması

Çizelge 9. 3 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen deneysel verilerin model denklemden elde edilen teorik veriler ile karşılaştırılması

<b>Deney</b>	<b>A : pH</b>	<b>B : Adsorbent Kons. (g/50ml)</b>	<b>C : Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>D: Adsorp. Süresi (dakika)</b>	<b>% Deneysel Adsorpsiyon</b>	<b>% Teorik Adsorpsiyon</b>
1	3.5	2	50	80	33.50	29.97
2	2	2	50	120	77.60	78.62
3	3.5	1	50	120	28.60	27.97
4	3.5	2	75	120	27.10	33.58
5	5	1	50	80	9.40	9.16
6	2	1	50	80	56.00	57.39
7	5	2	50	40	20.90	20.07
8	2	2	75	80	68.50	65.42
9	5	3	50	80	19.90	17.92
10	3.5	1	50	40	23.10	19.10
11	3.5	2	25	40	36.80	30.94
12	3.5	2	75	40	30.60	33.66
13	5	2	75	80	17.00	22.99
14	3.5	3	75	80	39.80	32.54
15	3.5	2	50	80	32.00	29.97
16	3.5	2	25	120	48.30	44.66
17	5	2	50	120	32.10	25.69
18	2	2	25	80	82.80	77.20
19	3.5	3	25	80	28.30	32.47
20	5	2	25	80	14.40	17.87
21	3.5	1	75	80	21.70	17.72
22	2	2	50	40	62.30	68.90
23	3.5	3	50	120	33.80	38.19
24	2	3	50	80	71.80	71.46
25	3.5	3	50	40	30.70	31.72
26	3.5	2	50	80	24.40	29.97
27	3.5	1	25	80	17.00	24.45

Model denklemden elde edilen % teorik adsorpsiyon değerleri ile % deneysel adsorpsiyon değerlerinin birbirine yakın olması hem Box-Behnken deneysel tasarımının uygunluğunu hem de elde edilen sonuçların güvenilirliğini göstermektedir.

Design Expert programı optimizasyon işleminde, işletmecinin hedeflerine göre çalışmak istediği farklı parametreleri belirlemesini mümkün kılmaktadır. Box-Behnken deneysel tasarım modelinden elde edilen optimizasyon sonuçları, proses ekonomisi baz alınarak proses parametrelerinden en uygun pH değeri, kısa sürede maksimum pestisit giderimi için: maliyeti çok düşük olduğu için maksimum adsorbent miktarı, maksimum pestisit konsantrasyonu ve minimum adsorpsiyon süresi seçilerek hesaplanmıştır. Belirlenen

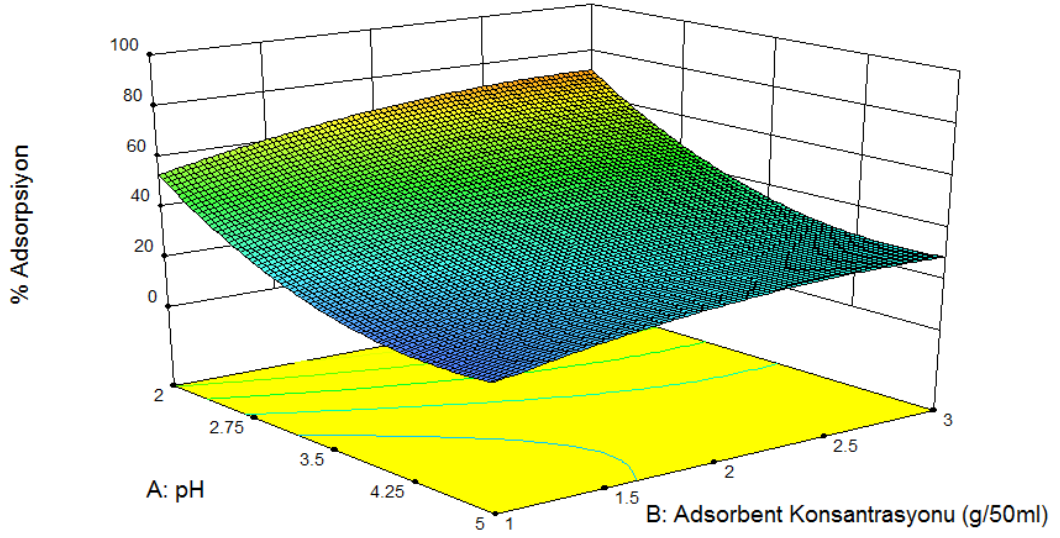
optimum parametre deęerleri izelge 9.4'te gsterilmiřtir. Ekonomik bazda elde edilen optimizasyon sonuları dıřında Design Expert 9.0 programı 29 tane daha optimizasyon sonucu nermektedir. Bu sonular izelge EK-A.1'de verilmiřtir. Aynı zamanda, Design Expert 9.0 programı tarafından belirlenen ve program zerinde hibir parametre ayarlaması yapılmadan elde edilen 30 optimizasyon sonucu da izelge EK-A.2'de gsterilmiřtir.

izelge 9. 4 Bentazon'un badem kabuęu ile adsorpsiyonunun Box-Behnken deneysel tasarımıdan elde edilen optimum kořullar ve bu kořullarda ulařılacak maksimum % teorik ve deneysel adsorpsiyon deęeri

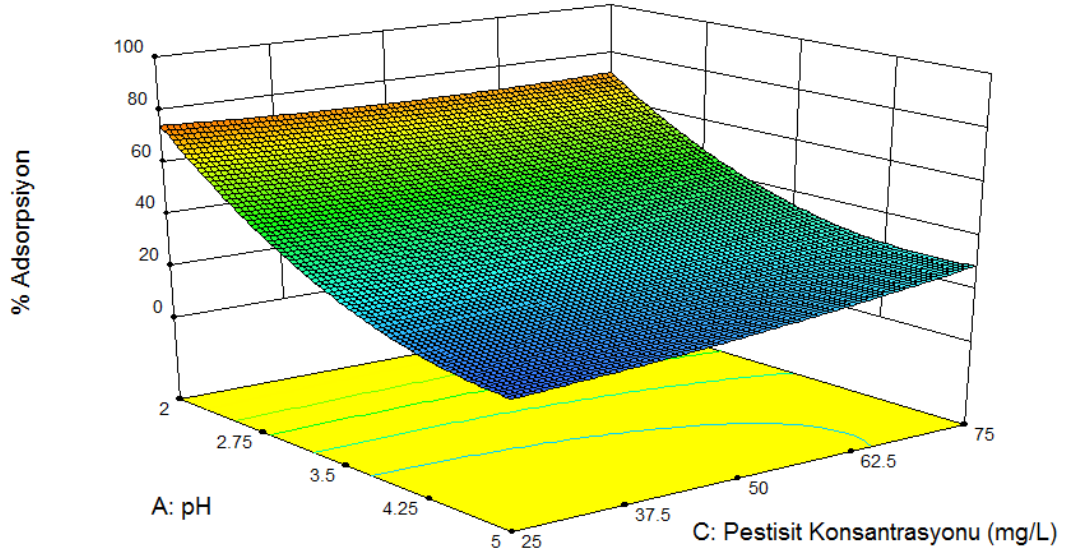
<b>Parametre Adı</b>	<b>Optimum Deęer</b>
<b>pH</b>	2.000
<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>	3.000
<b>Pestisit Konsantrasyonu (mg/L)</b>	75.000
<b>Adsorpsiyon Sresi (dakika)</b>	40.069
<b>% Teorik Adsorpsiyon</b>	72.184
<b>% Deneysel Adsorpsiyon</b>	70.336

izelge 9.4'den de grldę gibi; Design Expert 9.0 programı ile gerekleřtirilen tasarım iřlemi sonucunda Bentazon'un badem kabuęuna adsorpsiyonu iin proses parametrelerinin optimum deęerleri pH 2.0, adsorbent konsantrasyonu 3.0 g/50 ml, pestisit konsantrasyonu 75.0 mg/L, adsorpsiyon sresi 40.069 dakika olarak bulunmuřtur. Bu parametrelerde adsorpsiyon iřlemi yapıldıęında elde edilecek sonu olarak programın nerdięi % teorik adsorpsiyon deęeri % 72.184'tr. Programın verdięi bu deęerin doęrulanması iin optimum parametre deęerlerinde doęrulama deneyi yapılmıř ve % deneysel adsorpsiyon deęeri % 70.336 olarak bulunmuřtur.

Bentazon'un badem kabuęu ile adsorpsiyonu iin proses parametrelerinin adsorpsiyon verimine olan etkilerinin grafik zerinde grlebilmesi ve yorumlanması amacıyla Design Expert 9.0 programı ile 3-boyutlu cevap yzey grafikleri oluřturulmuř ve Őekil 9.2-9.7'de gsterilmiřtir.

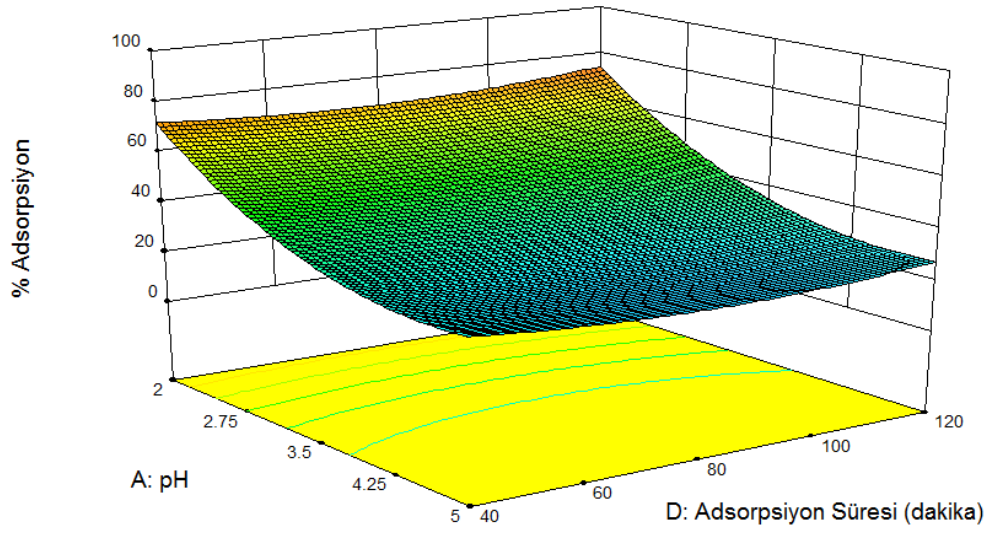


Şekil 9. 2 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği

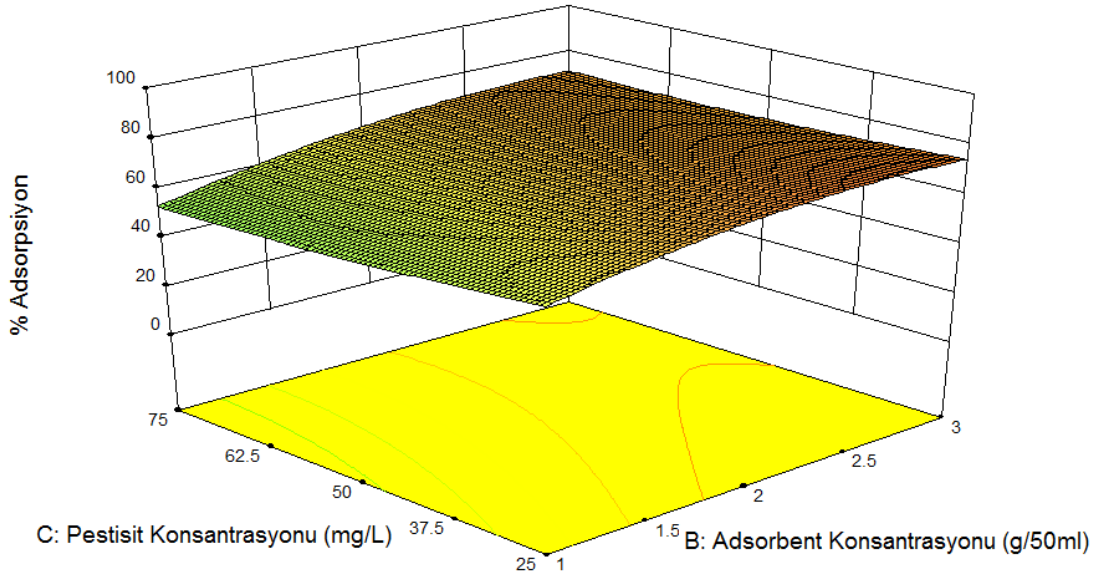


Şekil 9. 3 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve pestisit konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği

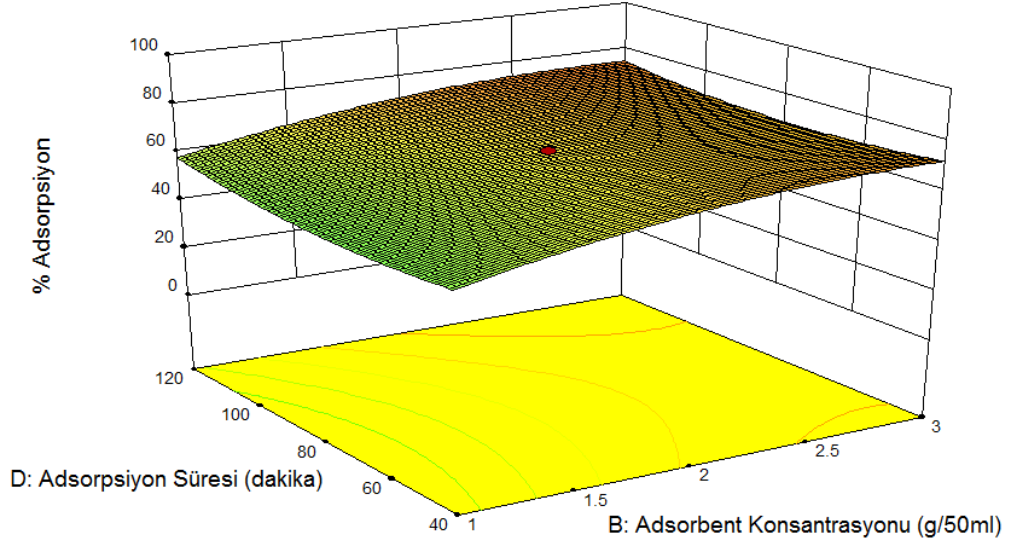




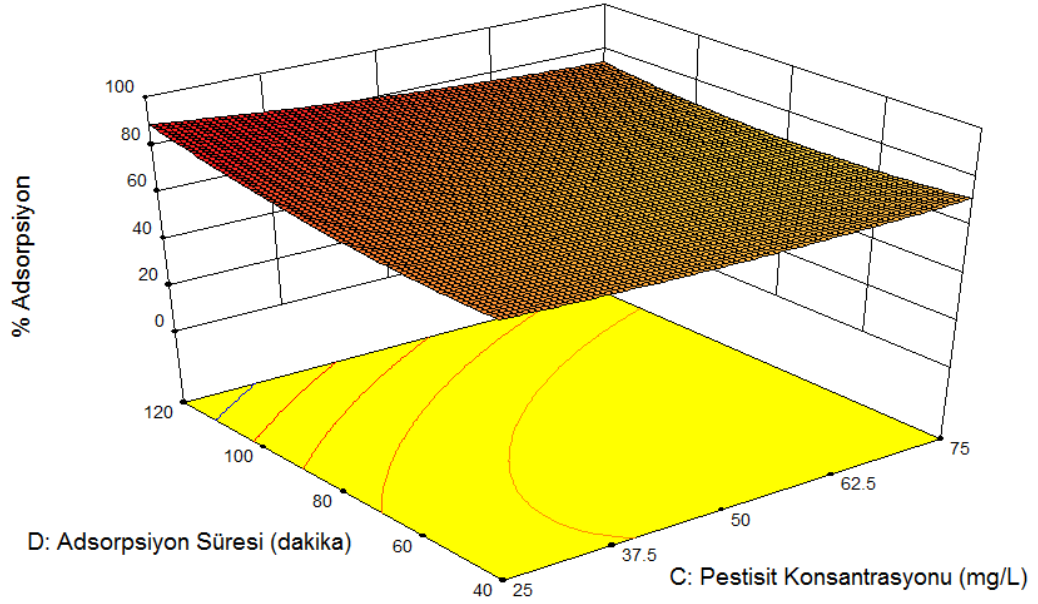
Şekil 9. 4 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve adsorpsiyon süresi parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 9. 5 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonunda pestisit konsantrasyonu ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyon etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 9. 6 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonunda adsorpsiyon süresi ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 9. 7 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonunda adsorpsiyon süresi ve pestisit konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği

### 9.1.2. Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için deneysel tasarım sonuçları

Kestane kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için Box-Behnken deneysel tasarım yöntemi uygulanarak belirlenen farklı pH, adsorbent konsantrasyonu, pestisit konsantrasyonu ve adsorpsiyon sürelerinde gerçekleştirilen 24 deney ve orta noktada 3 tekrar deneyi için elde edilen % adsorpsiyon değerleri Çizelge 9.5'de verilmiştir.

Çizelge 9. 5 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonunun deneysel tasarım sonuçları

Deney	A : pH	B : Adsorbent Konsantrasyonu (g/50ml)	C : Pestisit Konsantrasyonu (mg/L)	D: Adsorp. Süresi (dakika)	% Adsorpsiyon
1	3.5	2	50	80	25.80
2	2	2	50	120	62.50
3	3.5	1	50	120	29.60
4	3.5	2	75	120	34.10
5	5	1	50	80	14.50
6	2	1	50	80	56.10
7	5	2	50	40	21.10
8	2	2	75	80	63.10
9	5	3	50	80	31.80
10	3.5	1	50	40	20.20
11	3.5	2	25	40	31.00
12	3.5	2	75	40	25.50
13	5	2	75	80	24.90
14	3.5	3	75	80	56.80
15	3.5	2	50	80	30.60
16	3.5	2	25	120	38.30
17	5	2	50	120	32.00
18	2	2	25	80	71.20
19	3.5	3	25	80	26.20
20	5	2	25	80	28.70
21	3.5	1	75	80	42.10
22	2	2	50	40	61.70
23	3.5	3	50	120	35.70
24	2	3	50	80	78.60
25	3.5	3	50	40	35.20
26	3.5	2	50	80	28.50
27	3.5	1	25	80	31.47

Çizelge 9.5 incelendiğinde en yüksek % adsorpsiyon değerinin pH 2.0, 3 g/50ml adsorbent konsantrasyonu, 50 mg/L Bentazon konsantrasyonunda 80 dakika süreyle gerçekleştirilen adsorpsiyon işlemi sonucunda (24. deneyde) % 78.60 olarak elde edildiği görülmektedir. En düşük % adsorpsiyon değeri ise pH 5.0, 1 g/50 ml adsorbent konsantrasyonu ve 50 mg/L Bentazon konsantrasyonunda 80 dakika süreyle gerçekleştirilen adsorpsiyon işlemi sonucunda (5. deneyde) % 14.50 olarak elde edilmiştir. Orta noktalarda (pH 3.5, 2 g/50 ml adsorbent konsantrasyonu, 50 mg/L bentazon konsantrasyonu ve 80 dakika adsorpsiyon süresi) gerçekleştirilen 3 tekrar deneyi sonucu elde edilen % adsorpsiyon değerlerinin birbirine yakın olması deneysel hataların başarıyla minimize edildiğini göstermektedir.

Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyon işlemi sonucunda elde edilen deneysel veriler için Design Expert 9.0 programında Quadratik model seçilerek model denklem geliştirilmiş ve bu model Eşitlik (9.2)'de verilmiştir. Modelin varyans analizi (ANOVA) sonuçları ise Çizelge 9.6'da gösterilmiştir.

Çizelge 9. 6 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen deneysel tasarım modelinin ANOVA analizi

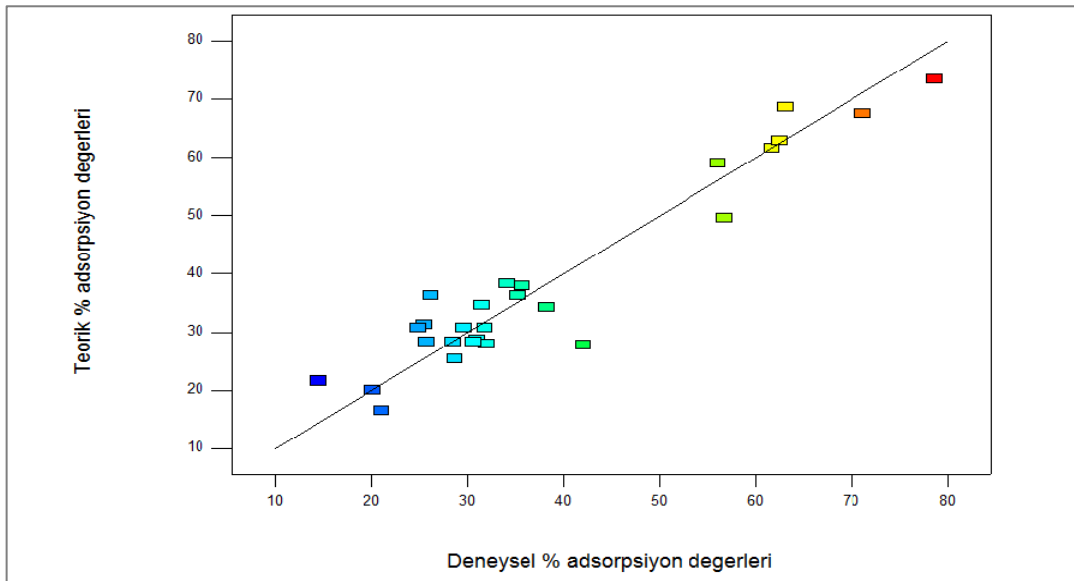
Kaynak	Kareler Toplamı	Serbestlik Derecesi	Ort. Kareler Değeri	F Değeri	p-değeri	Anlamlılık
Model	6829.27	14	487.81	8.69	0.0003	Anlamlı
A-pH	4808.00	1	4808.00	85.65	< 0.0001	Anlamlı değil
B-Ads.Kon	412.19	1	412.19	7.34	0.0190	
C-Pest.Kon.	32.11	1	32.11	0.57	0.4640	
D-Ads.Süresi	117.19	1	117.19	2.09	0.1741	
AB	6.76	1	6.76	0.12	0.7346	
AC	4.62	1	4.62	0.082	0.7790	
AD	25.50	1	25.50	0.45	0.5131	
BC	99.70	1	99.70	1.78	0.2074	
BD	19.80	1	19.80	0.35	0.5636	
CD	0.42	1	0.42	0.0075	0.9323	
A <sup>2</sup>	1112.52	1	1112.52	19.82	0.0008	
B <sup>2</sup>	63.54	1	63.54	1.13	0.3083	
C <sup>2</sup>	152.04	1	152.04	2.71	0.1257	
D <sup>2</sup>	1.18	1	1.18	0.021	0.8873	
Kalan	673.64	12	56.14			
Uygunsuzluk	662.06	10	66.21	11.43	0.0830	Anlamlı değil
Hata	11.58	2	5.79			
Toplam	7502.92	26				

$$\% \text{ Ads} = + 188.784 - 61.345*A - 10.448*B - 1.3146*C + 0.0728*D - 0.8667*A*B + 0.02867*A*C + 0.04208*A*D + 0.1997*B*C - 0.05563*B*D + 0.00325*C*D + 6.419*A^2 + 3.452*B^2 + 0.0085*C^2 - 0.002935*D^2 \quad (9.2)$$

Box-Behnken deneysel tasarım model denklemindeki parametrelerin pozitif ve negatif katsayılı değerlere sahip olması, bu parametrelerin % adsorpsiyon değeri üzerinde yaptıkları etkiyi göstermektedir. Eşitlik (9.2) incelendiğinde, pH (A) adsorbent konsantrasyonu (B) ve pestisit konsantrasyonu (C) azaldığında; adsorpsiyon süresi (D) ise arttığında % adsorpsiyon değerinin arttığı görülmektedir. Ayrıca, % adsorpsiyon değerlerinin (pH\*pestisit konsantrasyonu), (pH\*adsorpsiyon süresi), (adsorbent konsantrasyonu\*pestisit konsantrasyonu) ve (pestisit konsantrasyonu\*adsorpsiyon süresi) terimlerinin artması ile arttığı ve (pH\*adsorbent konsantrasyonu) ve (adsorbent konsantrasyonu\*adsorbent süresi) terimlerinin artması ile de azaldığı görülmektedir.

Tasarım modelinin ANOVA analizi sonucunda 8.69 olarak hesaplanan F değerinin ve 0.0003 olan p değerlerinin anlamlı olması, uygunsuzluk değerinin (Lack of Fit) anlamsız olması ve korelasyon katsayısı  $R^2$  değerinin 0.9102 bulunması istatistiksel olarak modelin uygulanabilir olduğunu göstermektedir.

Box-Behnken tasarım yöntemi uygulanarak gerçekleştirilen deneyler sonucunda elde edilen adsorpsiyon değerlerinin model denklemden hesaplanan teorik % adsorpsiyon değerleri ile karşılaştırılması Şekil 9.8 ve Çizelge 9.7'de gösterilmiştir.



Şekil 9. 8 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonundan elde edilen deneysel adsorpsiyon verileri ile Box-Behnken tasarım modelinden elde edilen teorik adsorpsiyon verilerinin karşılaştırılması

Çizelge 9. 7 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen deneysel verilerin model denklemden elde edilen teorik veriler ile karşılaştırılması

<b>Deney</b>	<b>A : pH</b>	<b>B : Adsorbent Kons. (g/50ml)</b>	<b>C : Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>D: Adsorp. Süresi (dakika)</b>	<b>% Deneysel Adsorpsiyon</b>	<b>% Teorik Adsorpsiyon</b>
1	3.5	2	50	80	25.80	28.30
2	2	2	50	120	62.50	62.79
3	3.5	1	50	120	29.60	30.77
4	3.5	2	75	120	34.10	38.26
5	5	1	50	80	14.50	21.62
6	2	1	50	80	56.10	59.05
7	5	2	50	40	21.10	16.61
8	2	2	75	80	63.10	68.66
9	5	3	50	80	31.80	30.74
10	3.5	1	50	40	20.20	20.07
11	3.5	2	25	40	31.00	28.73
12	3.5	2	75	40	25.50	31.36
13	5	2	75	80	24.90	30.78
14	3.5	3	75	80	56.80	49.58
15	3.5	2	50	80	30.60	28.30
16	3.5	2	25	120	38.30	34.33
17	5	2	50	120	32.00	27.91
18	2	2	25	80	71.20	67.54
19	3.5	3	25	80	26.20	36.32
20	5	2	25	80	28.70	25.35
21	3.5	1	75	80	42.10	27.87
22	2	2	50	40	61.70	61.69
23	3.5	3	50	120	35.70	38.04
24	2	3	50	80	78.60	73.37
25	3.5	3	50	40	35.20	36.24
26	3.5	2	50	80	28.50	28.30
27	3.5	1	25	80	31.47	34.59

Model denklemden elde edilen % teorik adsorpsiyon değerleri ile % deneysel adsorpsiyon değerlerinin birbirine yakın olması hem Box-Behnken deneysel tasarımının uygunluğunu hem de elde edilen sonuçların güvenilirliğini göstermektedir.

Design Expert programı optimizasyon işleminde, işletmecinin hedeflerine göre çalışmak istediği farklı parametreleri belirlemesini mümkün kılmaktadır. Box-Behnken deneysel tasarım modelinden elde edilen optimizasyon sonuçları, proses ekonomisi baz alınarak proses parametrelerinden en uygun pH değeri, kısa sürede maksimum pestisit giderimi için: maliyeti çok düşük olduğu için maksimum adsorbent miktarı, maksimum pestisit

konsantrasyonu ve minimum adsorpsiyon süresi seçilerek hesaplanmıştır. Belirlenen optimum parametre değerleri Çizelge 9.8'te gösterilmiştir. Elde edilen optimizasyon sonuçları dışında Design Expert 9.0 programı 29 tane daha optimizasyon sonucu önermektedir. Bu sonuçlar Çizelge EK-A.3'de verilmiştir. Aynı zamanda, Design Expert 9.0 programı tarafından belirlenen ve program üzerinde hiçbir parametre ayarlaması yapılmadan elde edilen 30 optimizasyon sonucu da Çizelge EK-A.4'de gösterilmiştir.

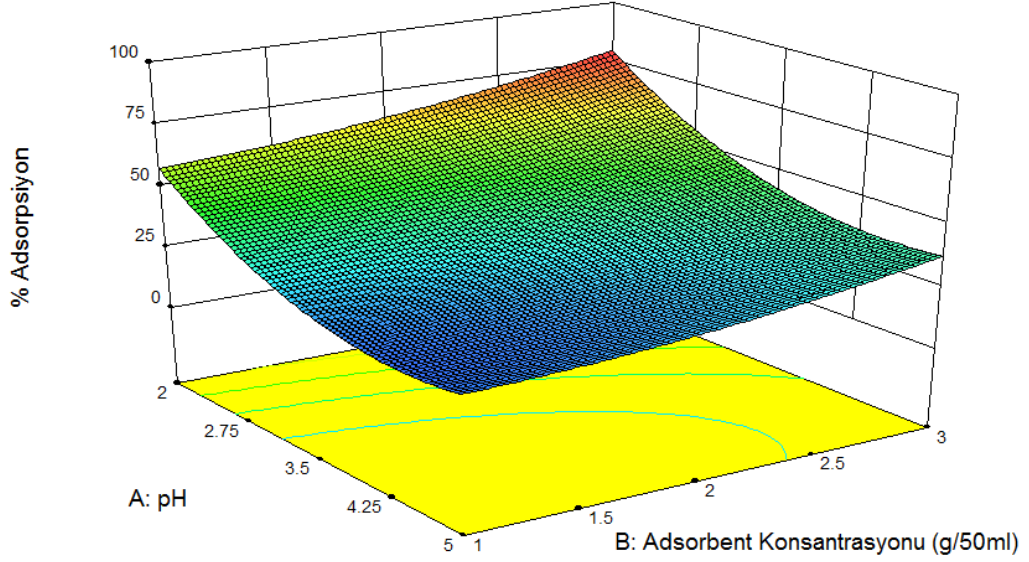
Çizelge 9. 8 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonunun Box-Behnken deneysel tasarımından elde edilen optimum koşullar ve bu koşullarda ulaşılabilecek maksimum % teorik ve deneysel adsorpsiyon değeri

<b>Parametre Adı</b>	<b>Optimum Değer</b>
<b>pH</b>	2.018
<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>	3.000
<b>Pestisit Konsantrasyonu (mg/L)</b>	75.000
<b>Adsorpsiyon Süresi (dakika)</b>	40.000
<b>% Teorik Adsorpsiyon</b>	84.483
<b>% Deneysel Adsorpsiyon</b>	85.092

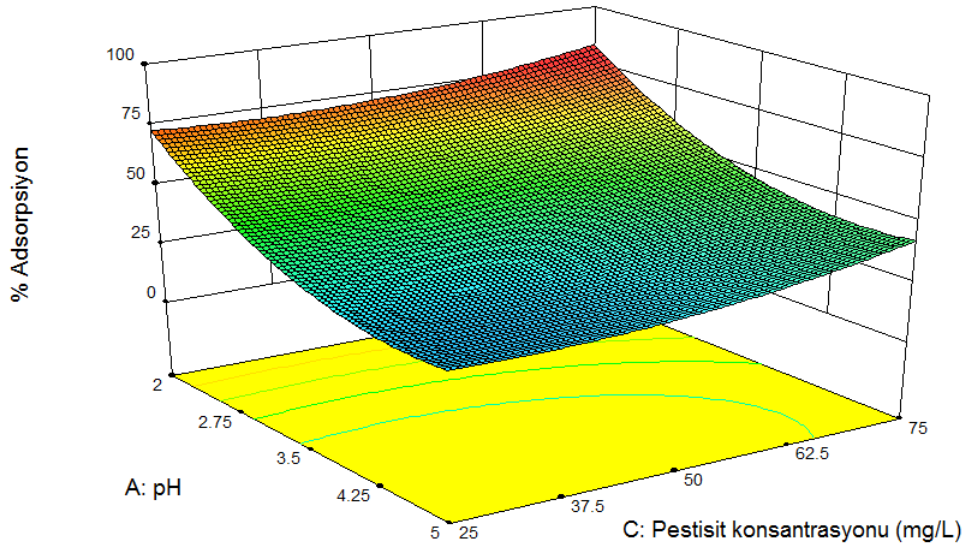
Çizelge 9.8'ten de görüldüğü üzere; Design Expert 9.0 programı ile gerçekleştirilen tasarım işlemi sonucunda Bentazon'un kestane kabuğuna adsorpsiyonu için proses parametrelerinin optimum değerleri pH 2.018, adsorbent konsantrasyonu 3.0 g/50 ml, pestisit konsantrasyonu 75.0 mg/L, adsorpsiyon süresi 40.0 dakika olarak bulunmuştur. Bu parametrelerde adsorpsiyon işlemi yapıldığında elde edilecek sonuç olarak programın önerdiği % teorik adsorpsiyon değeri % 84.483'tür. Programın verdiği bu değer doğrulanması için optimum parametre değerlerinde doğrulama deneyi yapılmış ve % deneysel adsorpsiyon değeri % 85.092 olarak bulunmuştur.

Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için proses parametrelerinin adsorpsiyon verimine olan etkilerinin grafik üzerinde görülebilmesi ve yorumlanması amacıyla

Design Expert 9.0 programı ile 3-boyutlu cevap yüzey grafikleri oluşturulmuştur. Oluşturulan grafikler Şekil 9.9-9.14'de gösterilmiştir.

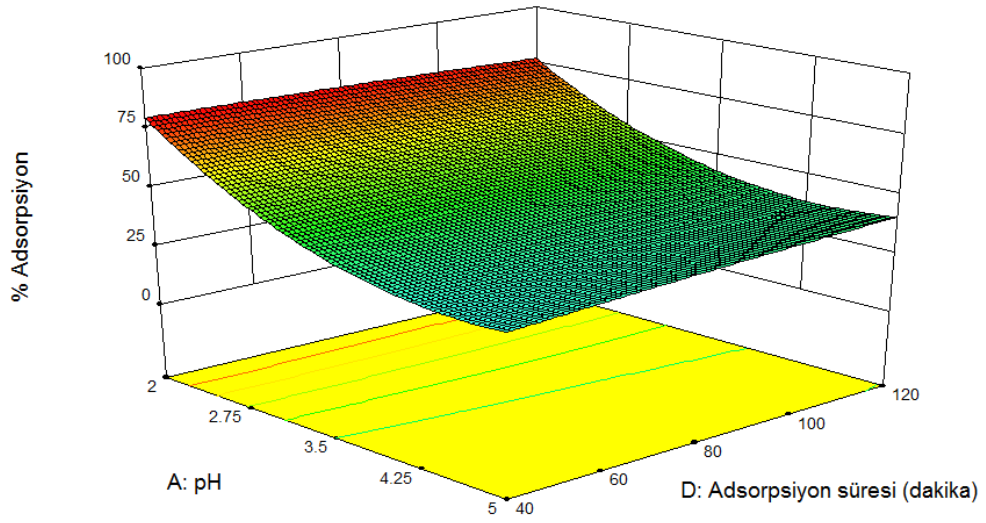


Şekil 9. 9 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği

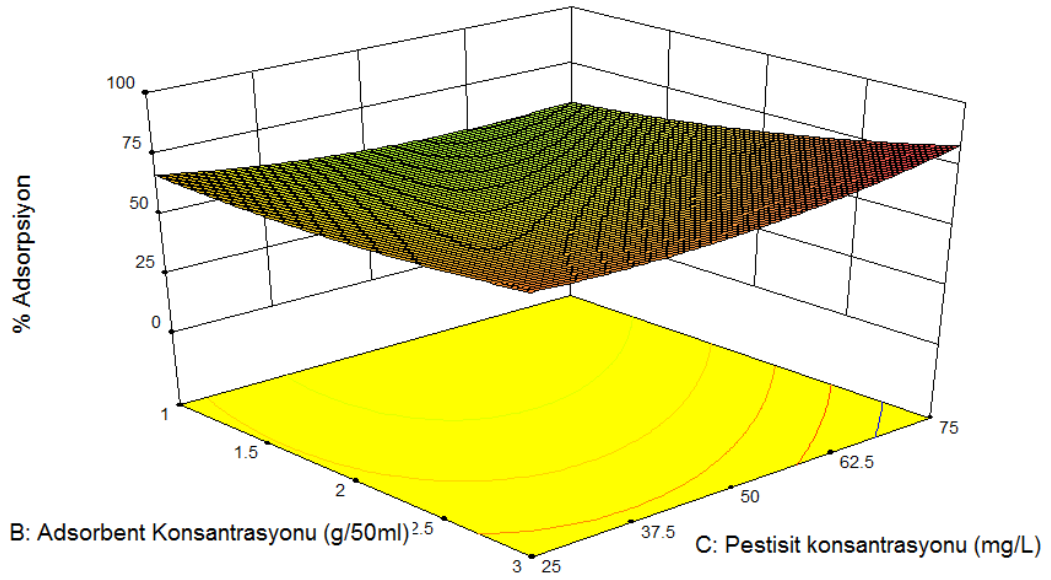


Şekil 9. 10 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve pestisit konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği

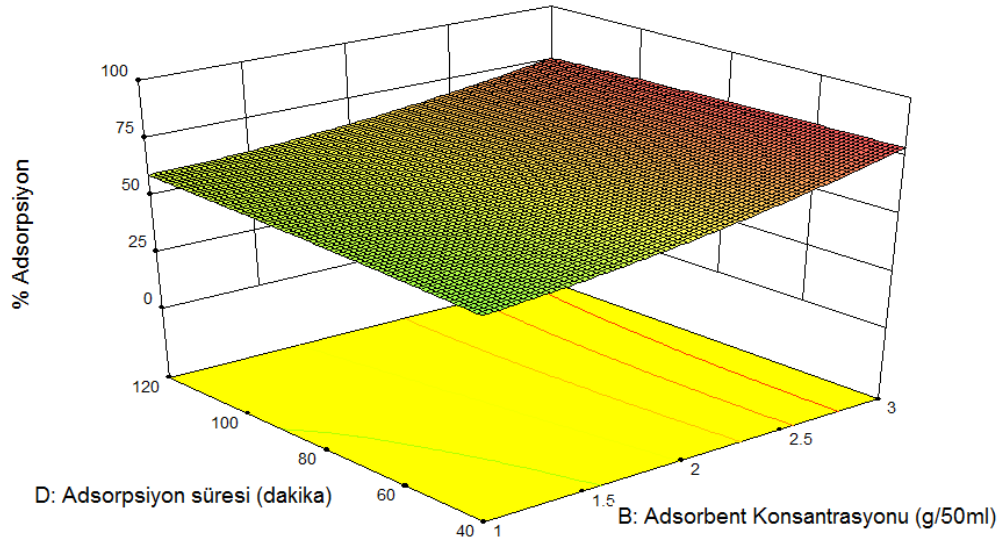




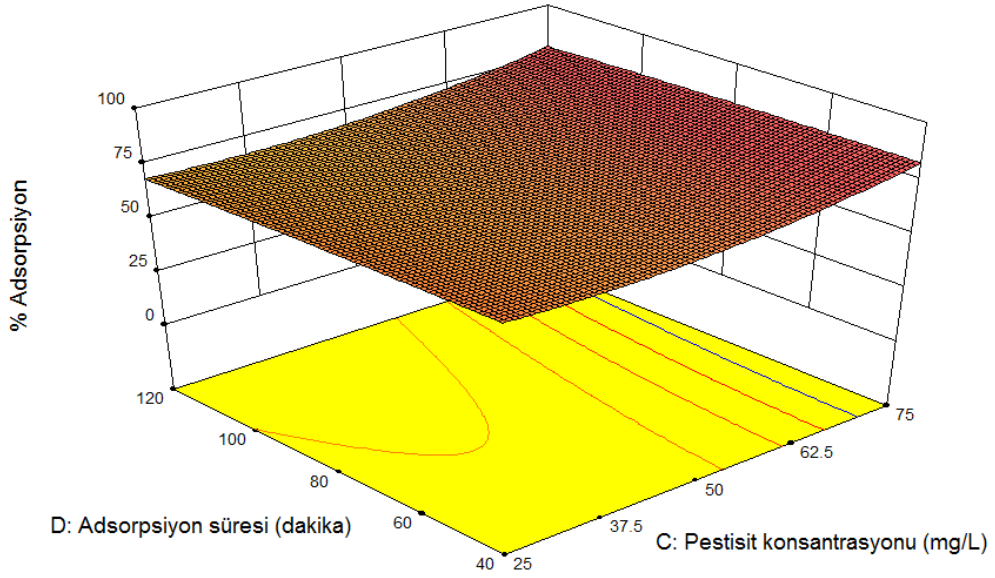
Şekil 9. 11 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve adsorpsiyon süresi parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 9. 12 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda pestisit konsantrasyonu ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 9. 13 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda adsorpsiyon süresi ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 9. 14 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda adsorpsiyon süresi ve pestisit konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği

### 9.1.3. Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için deneysel tasarım sonuçları

Badem kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için Box-Behnken deneysel tasarım yöntemi uygulanarak belirlenen farklı pH, adsorbent konsantrasyonu, pestisit konsantrasyonu ve adsorpsiyon sürelerinde gerçekleştirilen 24 deney ve orta noktada 3 tekrar deneyi için elde edilen % adsorpsiyon değerleri Çizelge 9.9'da verilmiştir.

Çizelge 9. 9 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonunun deneysel tasarım sonuçları

Deney	A : pH	B : Adsorbent Konsantrasyonu (g/50ml)	C : Pestisit Konsantrasyonu (mg/L)	D: Adsorp. Süresi (dakika)	% Adsorpsiyon
1	3.5	2	50	80	28.20
2	2	2	50	120	32.20
3	3.5	1	50	120	20.90
4	3.5	2	75	120	19.20
5	5	1	50	80	22.50
6	2	1	50	80	21.80
7	5	2	50	40	21.70
8	2	2	75	80	29.60
9	5	3	50	80	32.90
10	3.5	1	50	40	13.40
11	3.5	2	25	40	24.90
12	3.5	2	75	40	17.10
13	5	2	75	80	26.20
14	3.5	3	75	80	34.40
15	3.5	2	50	80	27.80
16	3.5	2	25	120	30.50
17	5	2	50	120	30.90
18	2	2	25	80	33.50
19	3.5	3	25	80	37.20
20	5	2	25	80	30.20
21	3.5	1	75	80	15.00
22	2	2	50	40	27.40
23	3.5	3	50	120	36.90
24	2	3	50	80	40.40
25	3.5	3	50	40	33.60
26	3.5	2	50	80	27.10
27	3.5	1	25	80	17.00

Çizelge 9.9 incelendiğinde en yüksek % adsorpsiyon değerinin, pH 2.0, 3 g/50ml adsorbent konsantrasyonu ve 50 mg/L Metalaxyl konsantrasyonunda 80 dakika süreyle gerçekleştirilen adsorpsiyon işlemi sonucunda (24. deneyde) % 40.40 olarak elde edildiği görülmektedir. En düşük % adsorpsiyon değeri ise pH 3.5, 1 g/50 ml adsorbent konsantrasyonu, 50 mg/L Metalaxyl konsantrasyonunda ve 40 dakika süreyle gerçekleştirilen adsorpsiyon işlemi sonucunda (10. deneyde) % 13.40 olarak elde edilmiştir. Orta noktalarda (pH 3.5, 2 g/50 ml adsorbent konsantrasyonu, 50 mg/L metalaxyl konsantrasyonu ve 80 dakika adsorpsiyon süresi) gerçekleştirilen 3 tekrar deneyi sonucu elde edilen % adsorpsiyon sonuçlarının birbirine yakın olduğu görülmektedir. Elde edilen bu sonuçların birbirine yakın olması deneysel hataların başarıyla minimize edildiğini göstermektedir.

Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyon işlemi sonucunda elde edilen deneysel veriler için Design Expert 9.0 programında Quadratik model seçilerek model denklem geliştirilmiş ve bu model Eşitlik (9.3)'de verilmiştir. Modelin varyans analizi (ANOVA) sonuçları ise Çizelge 9.10'da gösterilmiştir.

Çizelge 9. 10 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen deneysel tasarım modelinin ANOVA analizi

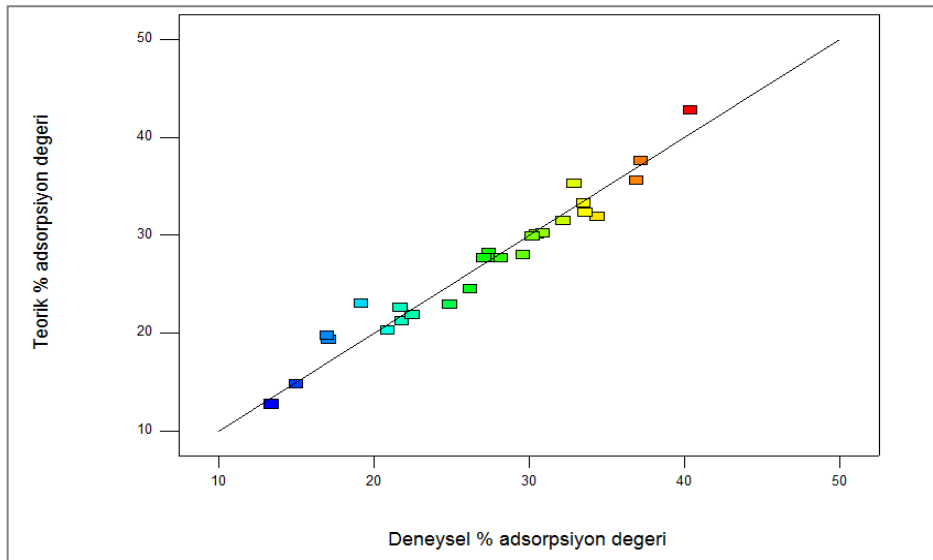
Kaynak	Kareler Toplamı	Serbestlik Derecesi	Ort. Kareler Değeri	F Değeri	p-değeri	Anlamlılık
Model	1273.06	14	90.93	17.41	< 0.0001	Anlamlı
A-pH	35.02	1	35.02	6.70	0.0237	
B-Ads.Kon.	915.25	1	915.25	175.22	< 0.0001	
C-Pest.Kon.	84.27	1	84.27	16.13	0.0017	
D-Ads.Süresi	88.02	1	88.02	16.85	0.0015	
AB	16.81	1	16.81	3.22	0.0980	
AC	0.0025	1	0.0025	0.0005	0.9829	
AD	4.84	1	4.84	0.93	0.3547	
BC	0.16	1	0.16	0.031	0.8640	
BD	4.41	1	4.41	0.84	0.3763	
CD	3.06	1	3.06	0.59	0.4586	
A <sup>2</sup>	40.46	1	40.46	7.75	0.0166	
B <sup>2</sup>	0.13	1	0.13	0.026	0.8755	
C <sup>2</sup>	12.95	1	12.95	2.48	0.1413	
D <sup>2</sup>	28.73	1	28.73	5.50	0.0370	
Kalan	62.68	12	5.22			
Uygunsuzluk	62.06	10	6.21	20.02	0.0485	Anlamlı Değil
Saf Hata	0.62	2	0.31			
Toplam	1335.74	26				

$$\% \text{ Ads} = -0.10231 - 8.407*A + 16.65*B - 0.2317*C + 0.33188*D - 1.36667*A*B - 0.00067*A*C + 0.01833*A*D - 0.008*B*C - 0.02625*B*D - 0.00875*C*D + 1.224*A^2 - 0.15833*B^2 + 0.002493*C^2 - 0.00145*D^2 \quad (9.3)$$

Box-Behnken deneysel tasarım model denklemindeki parametrelerin pozitif ve negatif katsayılı değerlere sahip olması, bu parametrelerin % adsorpsiyon değeri üzerinde yaptıkları etkiyi göstermektedir. Eşitlik (9.3) incelendiğinde, pH (A) ve pestisit konsantrasyonu (C) azaldığında; adsorbent konsantrasyonu (B) ve adsorpsiyon süresi (D) ise arttığında % adsorpsiyon değerinin arttığı görülmektedir. Ayrıca, denklem katsayıları incelendiğinde, % adsorpsiyon değerinin (pH\*adsorpsiyon konsantrasyonu), (pH\*pestisit konsantrasyonu), (adsorbent konsantrasyonu\*pestisit konsantrasyonu) ve (pestisit konsantrasyonu\*adsorpsiyon süresi) terimlerinin artması ile azaldığı; (pH\*adsorpsiyon süresi) teriminin artmasıyla ise arttığı görülmektedir.

Tasarım modelinin ANOVA analizi sonucunda 17.41 olarak hesaplanan F değerinin ve 0.0001'den küçük olan p değerlerinin anlamlı olması, uygunsuzluk değerinin (Lack of Fit) anlamsız olması ve korelasyon katsayısı  $R^2$  değerinin 0.9531 bulunması istatistiksel olarak modelin uygulanabilir olduğunu göstermektedir.

Box-Behnken tasarım yöntemi uygulanarak gerçekleştirilen deneyler sonucunda elde edilen % adsorpsiyon değerlerinin, model denklemden hesaplanan teorik % adsorpsiyon değerleri ile karşılaştırılması Şekil 9.15 ve Çizelge 9.11'de gösterilmiştir.



Şekil 9. 15 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonundan elde edilen deneysel adsorpsiyon verileri ile Box-Behnken tasarım modelinden elde edilen teorik adsorpsiyon verilerinin karşılaştırılması

Çizelge 9. 11 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen deneysel verilerin model denklemden elde edilen teorik veriler ile karşılaştırılması

<b>Deney</b>	<b>A : pH</b>	<b>B : Adsorbent Kons. (g/50ml)</b>	<b>C : Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>D: Adsorp. Süresi (dakika)</b>	<b>% Deneysel Adsorpsiyon</b>	<b>% Teorik Adsorpsiyon</b>
1	3.5	2	50	80	28.20	27.70
2	2	2	50	120	32.20	31.45
3	3.5	1	50	120	20.90	20.25
4	3.5	2	75	120	19.20	23.00
5	5	1	50	80	22.50	21.90
6	2	1	50	80	21.80	21.22
7	5	2	50	40	21.70	22.62
8	2	2	75	80	29.60	27.98
9	5	3	50	80	32.90	35.27
10	3.5	1	50	40	13.40	12.73
11	3.5	2	25	40	24.90	22.89
12	3.5	2	75	40	17.10	19.34
13	5	2	75	80	26.20	24.51
14	3.5	3	75	80	34.40	31.87
15	3.5	2	50	80	27.80	27.70
16	3.5	2	25	120	30.50	30.05
17	5	2	50	120	30.90	30.23
18	2	2	25	80	33.50	33.23
19	3.5	3	25	80	37.20	37.57
20	5	2	25	80	30.20	29.86
21	3.5	1	75	80	15.00	14.80
22	2	2	50	40	27.40	28.23
23	3.5	3	50	120	36.90	35.61
24	2	3	50	80	40.40	42.79
25	3.5	3	50	40	33.60	32.30
26	3.5	2	50	80	27.10	27.70
27	3.5	1	25	80	17.00	19.70

Model denklemden elde edilen % teorik adsorpsiyon değerleri ile % deneysel adsorpsiyon değerlerinin birbirine yakın olması hem Box-Behnken deneysel tasarımının uygunluğunu hem de elde edilen sonuçların güvenilirliğini göstermektedir.

Design Expert programı optimizasyon işleminde, işletmecinin hedeflerine göre çalışmak istediği farklı parametreleri belirlemesini mümkün kılmaktadır. Box-Behnken deneysel tasarım modelinden elde edilen optimizasyon sonuçları, proses ekonomisi baz alınarak proses parametrelerinden en uygun pH değeri, kısa sürede maksimum pestisit giderimi için: maliyeti çok düşük olduğu için maksimum adsorbent miktarı, maksimum pestisit

konsantrasyonu ve minimum adsorpsiyon süresi seçilerek hesaplanmıştır. Belirlenen optimum parametre değerleri Çizelge 9.12’te gösterilmiştir. Elde edilen optimizasyon sonuçları dışında Design Expert 9.0 programı 29 tane daha optimizasyon sonucu önermektedir. Bu sonuçlar Çizelge EK-A.5’de verilmiştir. Aynı zamanda, Design Expert 9.0 programı tarafından belirlenen ve program üzerinde hiçbir parametre ayarlaması yapılmadan elde edilen 30 optimizasyon sonucu da Çizelge EK-A.6’da gösterilmiştir.

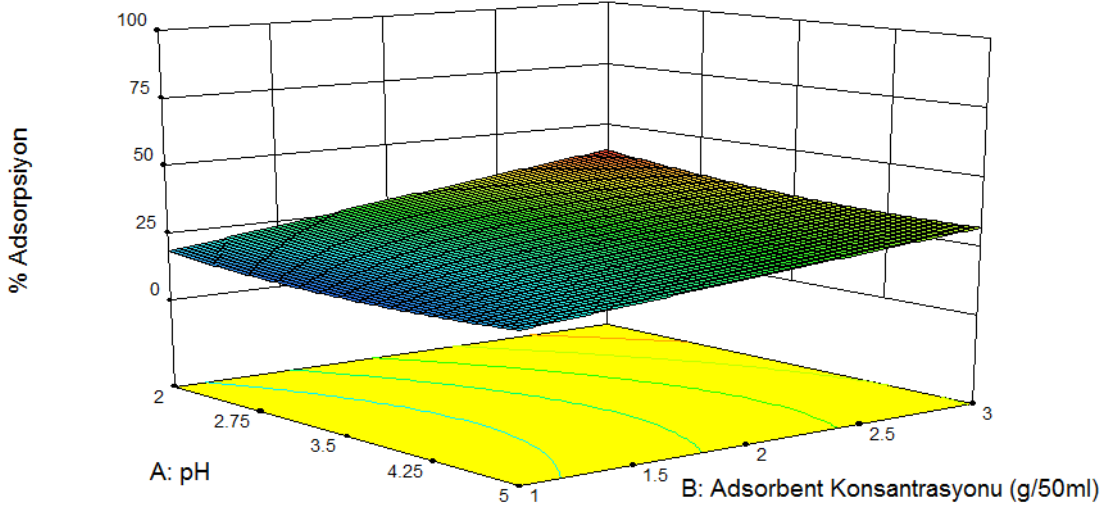
Çizelge 9. 12 Metalaxyl’in badem kabuğu ile adsorpsiyonunun Box-Behnken deneysel tasarımından elde edilen optimum koşullar ve bu koşullarda ulaşılabilecek maksimum % teorik ve deneysel adsorpsiyon değeri

<b>Parametre Adı</b>	<b>Optimum Değer</b>
<b>pH</b>	2.003
<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>	3.000
<b>Pestisit Konsantrasyonu (mg/L)</b>	75.000
<b>Adsorpsiyon Süresi (dakika)</b>	40.000
<b>% Teorik Adsorpsiyon</b>	36.382
<b>% Deneysel Adsorpsiyon</b>	33.288

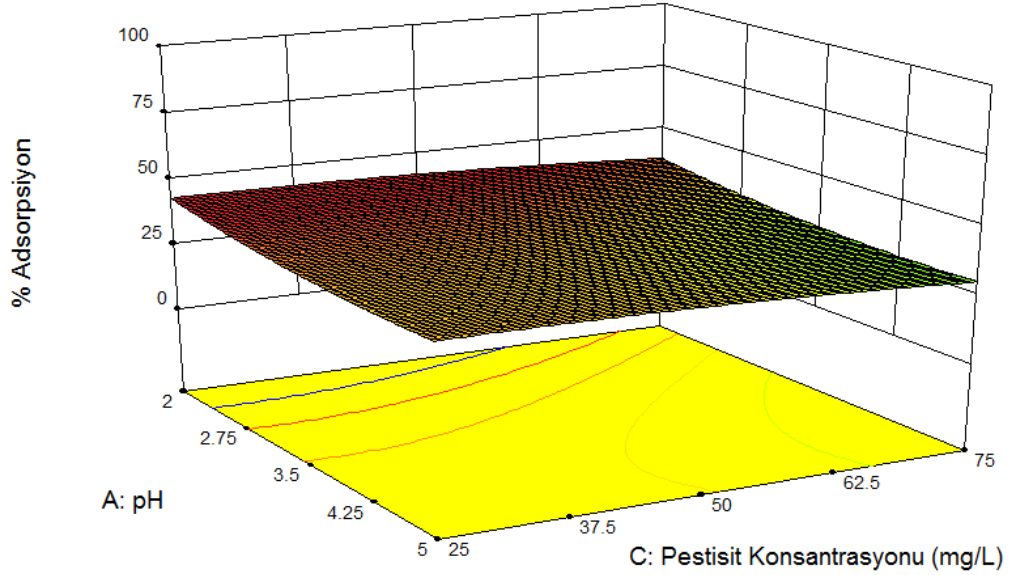
Çizelge 9.12’den de görüldüğü gibi; Design Expert 9.0 programı ile gerçekleştirilen tasarım işlemi sonucunda Metalaxyl’in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için proses parametrelerinin optimum değerleri pH 2.003, adsorbent konsantrasyonu 3.0 g/50 ml, pestisit konsantrasyonu 75.0 mg/L, adsorpsiyon süresi 40.0 dakika olarak bulunmuştur. Bu parametrelerde adsorpsiyon işlemi yapıldığında elde edilecek sonuç olarak programın önerdiği % teorik adsorpsiyon değeri % 36.382’tür. Programın verdiği bu değer doğrulanması için optimum parametre değerlerinde doğrulama deneyi yapılmış ve % deneysel adsorpsiyon değeri % 33.288 olarak bulunmuştur.

Metalaxyl’in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için proses parametrelerinin adsorpsiyon verimine olan etkilerinin grafik üzerinde görülebilmesi ve yorumlanması amacıyla

Design Expert 9.0 programı ile 3-boyutlu cevap yüzey grafikleri oluşturulmuştur. Oluşturulan grafikler Şekil 9.15-9.20'de gösterilmiştir.

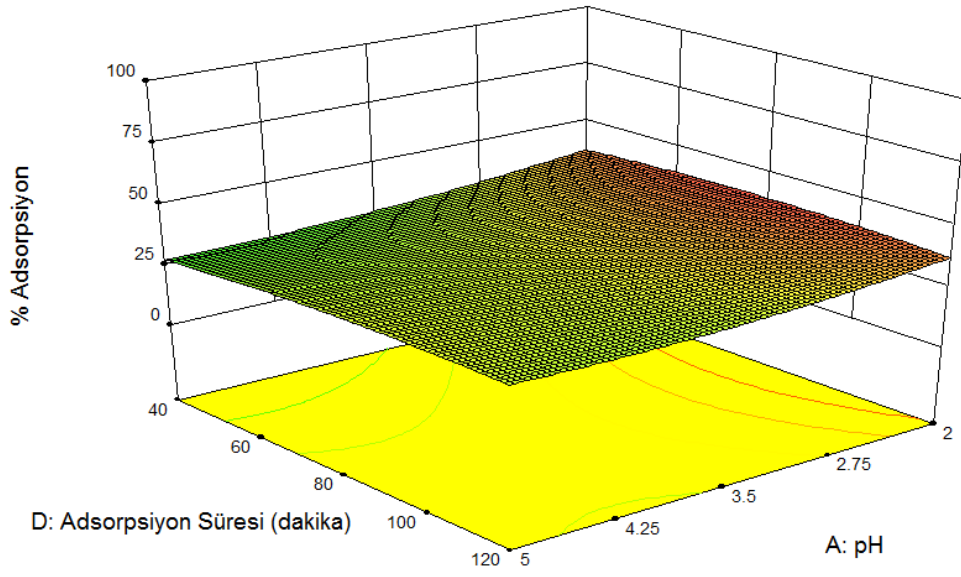


Şekil 9. 16 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği

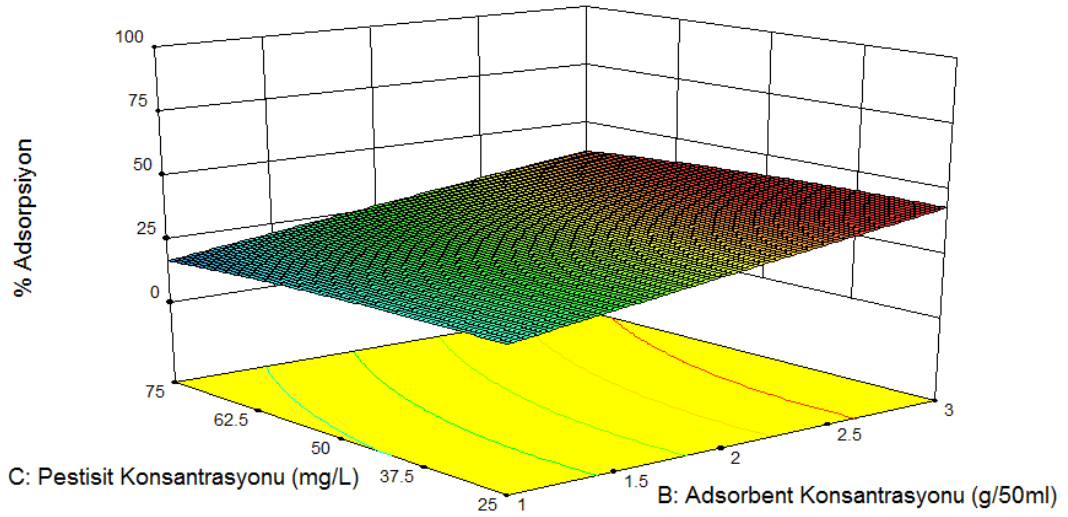


Şekil 9. 17 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve pestisit konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği

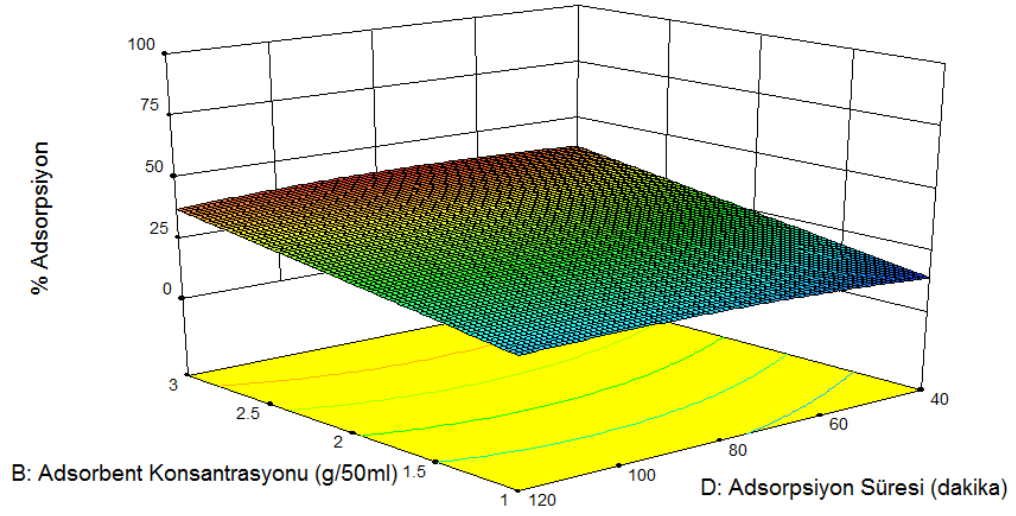




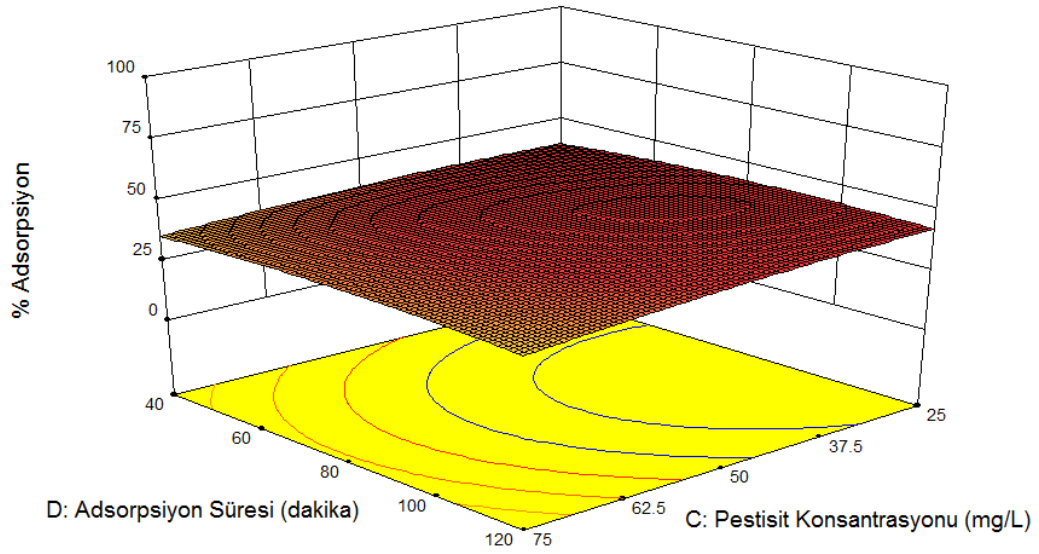
Şekil 9. 18 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve adsorpsiyon süresi parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 9. 19 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonunda pestisit konsantrasyonu ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 9. 20 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonunda adsorpsiyon süresi ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 9. 21 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonunda adsorpsiyon süresi ve pestisit konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği

#### 9.1.4. Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için deneysel tasarım sonuçları

Kestane kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için Box-Behnken deneysel tasarım yöntemi uygulanarak belirlenen farklı pH, adsorbent konsantrasyonu, pestisit konsantrasyonu ve adsorpsiyon sürelerinde gerçekleştirilen 24 deney ve orta noktada 3 tekrar deneyi için elde edilen % adsorpsiyon değerleri Çizelge 9.13'de verilmiştir.

Çizelge 9. 13 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonunun deneysel tasarım sonuçları

Deney	A : pH	B : Adsorbent Konsantrasyonu (g/50ml)	C : Pestisit Konsantrasyonu (mg/L)	D: Adsorp. Süresi (dakika)	% Adsorpsiyon
1	3.5	2	50	80	55.10
2	2	2	50	120	58.20
3	3.5	1	50	120	42.60
4	3.5	2	75	120	55.00
5	5	1	50	80	40.30
6	2	1	50	80	44.30
7	5	2	50	40	53.60
8	2	2	75	80	54.60
9	5	3	50	80	60.90
10	3.5	1	50	40	37.40
11	3.5	2	25	40	48.30
12	3.5	2	75	40	47.10
13	5	2	75	80	52.90
14	3.5	3	75	80	65.10
15	3.5	2	50	80	51.40
16	3.5	2	25	120	55.30
17	5	2	50	120	58.50
18	2	2	25	80	58.20
19	3.5	3	25	80	67.20
20	5	2	25	80	56.20
21	3.5	1	75	80	38.50
22	2	2	50	40	50.40
23	3.5	3	50	120	67.10
24	2	3	50	80	70.40
25	3.5	3	50	40	60.90
26	3.5	2	50	80	53.30
27	3.5	1	25	80	47.20

Çizelge 9.13 incelendiğinde en yüksek % adsorpsiyon değerinin pH 2.0, 3 g/50ml adsorbent konsantrasyonu ve 50 mg/L Metalaxyl konsantrasyonunda 80 dakika süreyle gerçekleştirilen adsorpsiyon işlemi sonucunda (24. deneyde) % 70.40 olarak elde edildiği görülmektedir. En düşük % adsorpsiyon değeri ise pH 3.5, 1 g/50 ml adsorbent konsantrasyonu, 50 mg/L Metalaxyl konsantrasyonunda 40 dakika süreyle gerçekleştirilen adsorpsiyon işlemi sonucunda (10. deneyde) % 37.40 olarak elde edilmiştir. Orta noktalarda (pH 3.5, 2 g/50 ml adsorbent konsantrasyonu, 50 mg/L metalaxyl konsantrasyonu ve 80 dakika adsorpsiyon süresi) gerçekleştirilen 3 tekrar deneyi sonucu elde edilen % adsorpsiyon sonuçlarının birbirine yakın olduğu görülmektedir. Elde edilen bu sonuç, deneysel hataların başarıyla minimize edildiğini göstermektedir.

Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyon işlemi sonucunda elde edilen deneysel veriler için Design Expert 9.0 programında Quadratik model seçilerek model denklem geliştirilmiş ve bu model Eşitlik (9.4)'de verilmiştir. Modelin varyans analizi (ANOVA) sonuçları ise Çizelge 9.14'de gösterilmiştir.

Çizelge 9. 14 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen deneysel tasarım modelinin ANOVA analizi

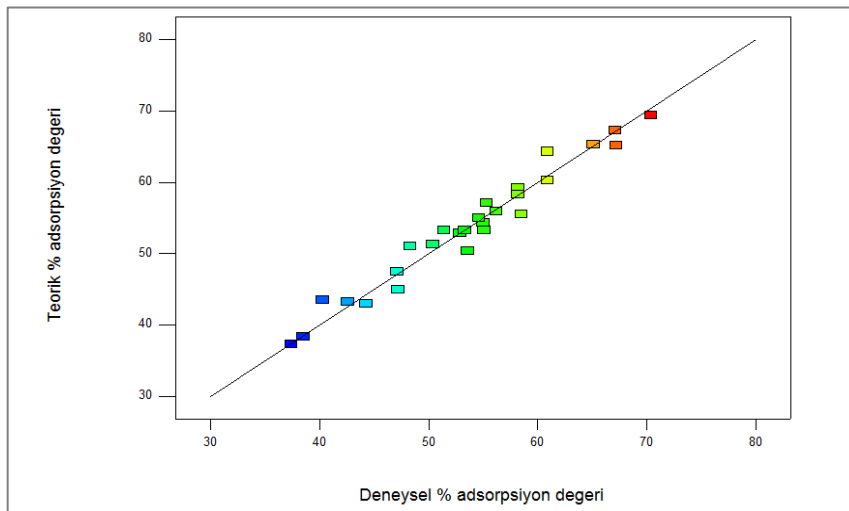
Kaynak	Kareler Toplamı	Serbestlik Derecesi	Ort. Kareler Değeri	F Değeri	p-değeri	Anlamlılık
Model	1896.66	14	135.48	21.88	< 0.0001	Anlamlı
A-pH	15.64	1	15.64	2.53	0.1380	
B-Ads.Kon.	1663.81	1	1663.81	268.68	< 0.0001	
C-Pest.Kon.	30.72	1	30.72	4.96	0.0458	
D-Ads.Süresi	126.75	1	126.75	20.47	0.0007	
AB	7.56	1	7.56	1.22	0.2908	
AC	0.023	1	0.023	0.0036	0.9529	
AD	2.10	1	2.10	0.34	0.5709	
BC	10.89	1	10.89	1.76	0.2095	
BD	0.25	1	0.25	0.040	0.8441	
CD	0.20	1	0.20	0.033	0.8595	
A <sup>2</sup>	19.68	1	19.68	3.18	0.0999	
B <sup>2</sup>	0.13	1	0.13	0.020	0.8886	
C <sup>2</sup>	0.51	1	0.51	0.082	0.7796	
D <sup>2</sup>	6.36	1	6.36	1.03	0.3310	
Kalan	74.31	12	6.19			
Uygunsuzluk	67.46	10	6.75	1.97	0.3833	Anlamlı Değil
Hata	6.85	2	3.42			
Toplam	1970.97	26				

$$\% \text{ Ads} = + 34.838 - 4.037*A + 11.80*B - 0.27033*C + 0.20896*D - 0.91667*A*B + 0.002*A*C - 0.01208*A*D + 0.066*B*C + 0.00625*B*D + 0.000225*C*D + 0.8537*A^2 - 0.1542*B^2 + 0.000493*C^2 - 0.00068*D^2 \quad (9.4)$$

Box-Behnken deneysel tasarım model denklemindeki parametrelerin pozitif ve negatif katsayılı değerlere sahip olması, bu parametrelerin % adsorpsiyon değeri üzerinde yaptıkları etkiyi göstermektedir. Eşitlik (9.4) incelendiğinde, pH (A) ve pestisit konsantrasyonu (C) azaldığında; adsorbent konsantrasyonu (B) ve adsorpsiyon süresi (D) ise arttığında % adsorpsiyon değerinin arttığı görülmektedir. Ayrıca, denklem katsayıları incelendiğinde, % adsorpsiyon değerinin (pH\*adsorpsiyon konsantrasyonu) ve (pH\*adsorpsiyon süresi) terimlerinin artması ile azaldığı; (pH\*pestisit konsantrasyonu), (adsorbent konsantrasyonu\* adsorpsiyon süresi), (adsorbent konsantrasyonu\*pestisit konsantrasyonu) ve (pestisit konsantrasyonu\*adsorpsiyon süresi) terimlerinin artmasıyla ise arttığı görülmektedir.

Tasarım modelinin ANOVA analizi sonucunda 21.88 olarak hesaplanan F değerinin ve 0.0001'den küçük olan p değerlerinin anlamlı olması, uygunsuzluk değerinin (Lack of Fit) anlamsız olması ve korelasyon katsayısı R<sup>2</sup> değerinin 0.9623 bulunması istatistiksel olarak modelin uygulanabilir olduğunu göstermektedir.

Box-Behnken tasarım yöntemi uygulanarak gerçekleştirilen deneyler sonucunda elde edilen adsorpsiyon değerlerinin, model denklemden hesaplanan teorik % adsorpsiyon değerleri ile karşılaştırılması Şekil 9.22 ve Çizelge 9.15'de gösterilmiştir.



Şekil 9. 22 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonundan elde edilen deneysel adsorpsiyon verileri ile Box-Behnken tasarım modelinden elde edilen teorik adsorpsiyon verilerinin karşılaştırılması

Çizelge 9. 15 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen deneysel verilerin model denklemden elde edilen teorik veriler ile karşılaştırılması

<b>Deney</b>	<b>A : pH</b>	<b>B : Adsorbent Kons. (g/50ml)</b>	<b>C : Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>D: Adsorp. Süresi (dakika)</b>	<b>% Deneysel Adsorpsiyon</b>	<b>% Teorik Adsorpsiyon</b>
1	3.5	2	50	80	55.10	53.27
2	2	2	50	120	58.20	59.21
3	3.5	1	50	120	42.60	43.25
4	3.5	2	75	120	55.00	54.36
5	5	1	50	80	40.30	43.49
6	2	1	50	80	44.30	43.03
7	5	2	50	40	53.60	50.43
8	2	2	75	80	54.60	54.96
9	5	3	50	80	60.90	64.29
10	3.5	1	50	40	37.40	37.25
11	3.5	2	25	40	48.30	51.06
12	3.5	2	75	40	47.10	47.41
13	5	2	75	80	52.90	52.83
14	3.5	3	75	80	65.10	65.25
15	3.5	2	50	80	51.40	53.27
16	3.5	2	25	120	55.30	57.11
17	5	2	50	120	58.50	55.48
18	2	2	25	80	58.20	58.31
19	3.5	3	25	80	67.20	65.15
20	5	2	25	80	56.20	55.88
21	3.5	1	75	80	38.50	38.40
22	2	2	50	40	50.40	51.26
23	3.5	3	50	120	67.10	67.30
24	2	3	50	80	70.40	69.33
25	3.5	3	50	40	60.90	60.30
26	3.5	2	50	80	53.30	53.27
27	3.5	1	25	80	47.20	44.90

Model denklemden elde edilen % teorik adsorpsiyon değerleri ile % deneysel adsorpsiyon değerlerinin birbirine yakın olması hem Box-Behnken deneysel tasarımının uygunluğunu hem de elde edilen sonuçların güvenilirliğini göstermektedir.

Design Expert programı optimizasyon işleminde, işletmecinin hedeflerine göre çalışmak istediği farklı parametreleri belirlemesini mümkün kılmaktadır. Box-Behnken deneysel tasarım modelinden elde edilen optimizasyon sonuçları, proses ekonomisi baz alınarak proses parametrelerinden en uygun pH değeri, kısa sürede maksimum pestisit giderimi için: maliyeti çok düşük olduğu için maksimum adsorbent miktarı, maksimum pestisit

konsantrasyonu ve minimum adsorpsiyon süresi seçilerek hesaplanmıştır. Belirlenen optimum parametre değerleri Çizelge 9.16'te gösterilmiştir. Elde edilen optimizasyon sonuçları dışında Design Expert 9.0 programı 29 tane daha optimizasyon sonucu önermektedir. Bu değerler Çizelge EK-A.7'de verilmiştir. Aynı zamanda, Design Expert 9.0 programı tarafından belirlen ve program üzerinde hiçbir parametre ayarlaması yapılmadan elde edilen 30 optimizasyon sonucu da Çizelge EK-A.8'de gösterilmiştir.

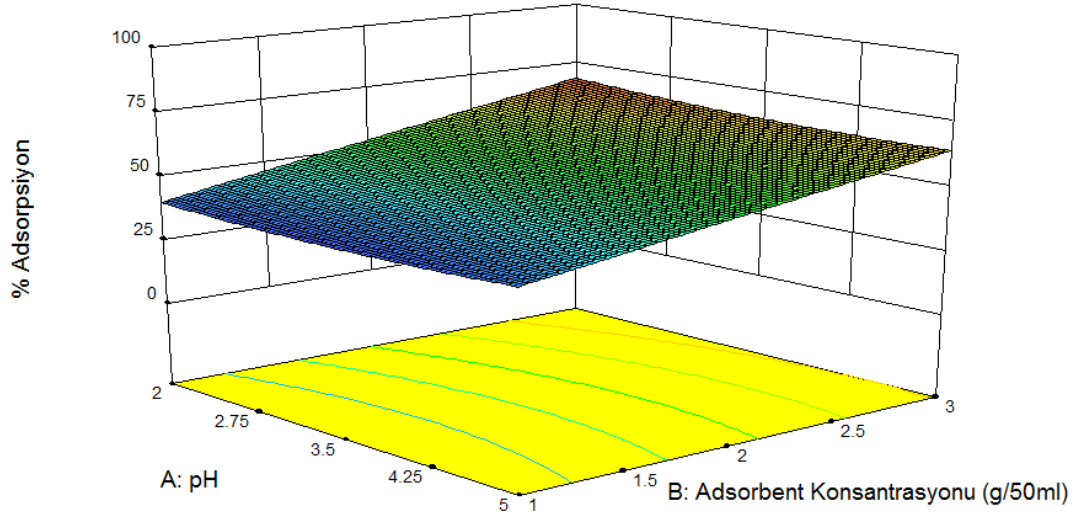
Çizelge 9. 16 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonunun Box-Behnken deneysel tasarımından elde edilen optimum koşullar ve bu koşullarda ulaşılabilecek maksimum % teorik ve deneysel adsorpsiyon değeri

<b>Parametre Adı</b>	<b>Optimum Değer</b>
<b>pH</b>	2.009
<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>	3.000
<b>Pestisit Konsantrasyonu (mg/L)</b>	75.000
<b>Adsorpsiyon Süresi (dakika)</b>	40.000
<b>% Teorik Adsorpsiyon</b>	64.033
<b>% Deneysel Adsorpsiyon</b>	66.084

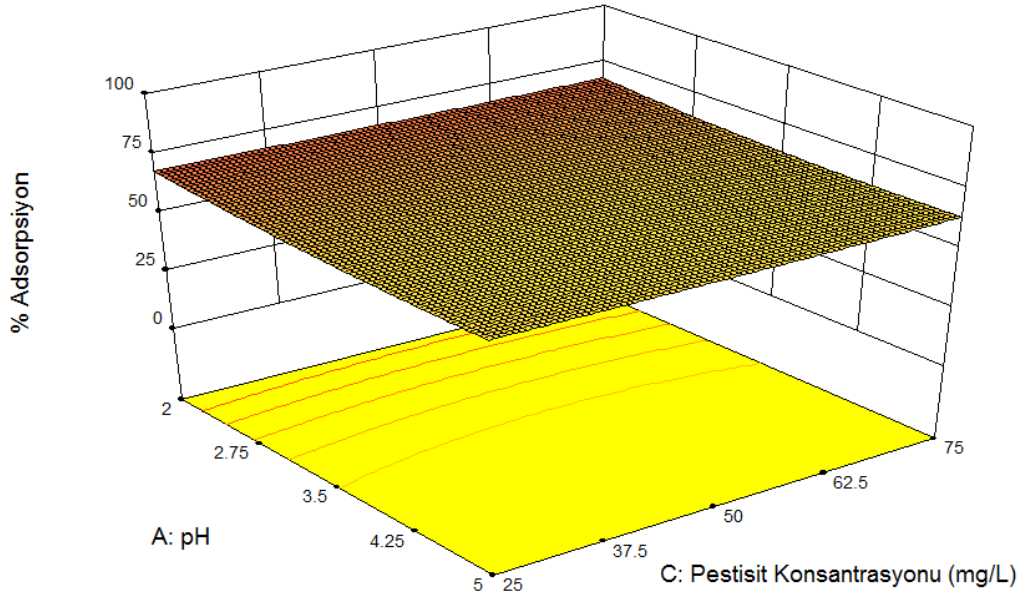
Çizelge 9.16'dan da görüldüğü gibi; Design Expert 9.0 programı ile gerçekleştirilen tasarım işlemi sonucunda Metalaxyl'in kestane kabuğuna adsorpsiyonu için proses parametrelerinin optimum değerleri pH 2.009, adsorbent konsantrasyonu 3.0 g/50 ml, pestisit konsantrasyonu 75.0 mg/L, adsorpsiyon süresi 40.0 dakika olarak bulunmuştur. Bu parametrelerde adsorpsiyon işlemi yapıldığında elde edilecek sonuç olarak programın önerdiği % teorik adsorpsiyon değeri % 64.033'tür. Programın verdiği bu değer doğrulanması için optimum parametre değerlerinde doğrulama deneyi yapılmış ve % deneysel adsorpsiyon değeri % 66.084 olarak bulunmuştur.

Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için proses parametrelerinin adsorpsiyon verimine olan etkilerinin grafik üzerinde görülebilmesi ve yorumlanması amacıyla

Design Expert 9.0 programı ile 3-boyutlu cevap yüzey grafikleri oluşturulmuştur. Oluşturulan grafikler Şekil 9.21-9.26'da gösterilmektedir.

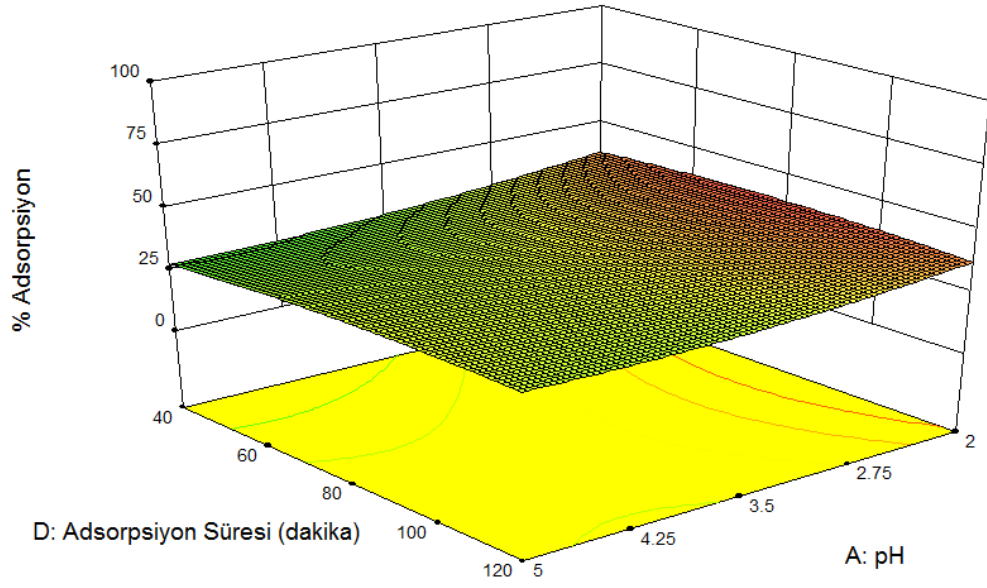


Şekil 9. 23 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği

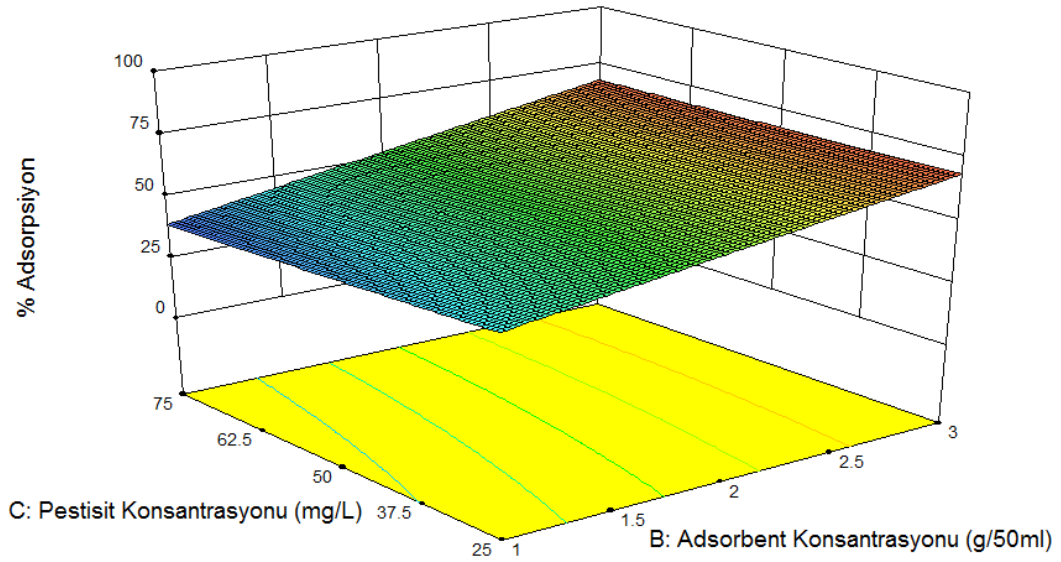


Şekil 9. 24 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve pestisit konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği

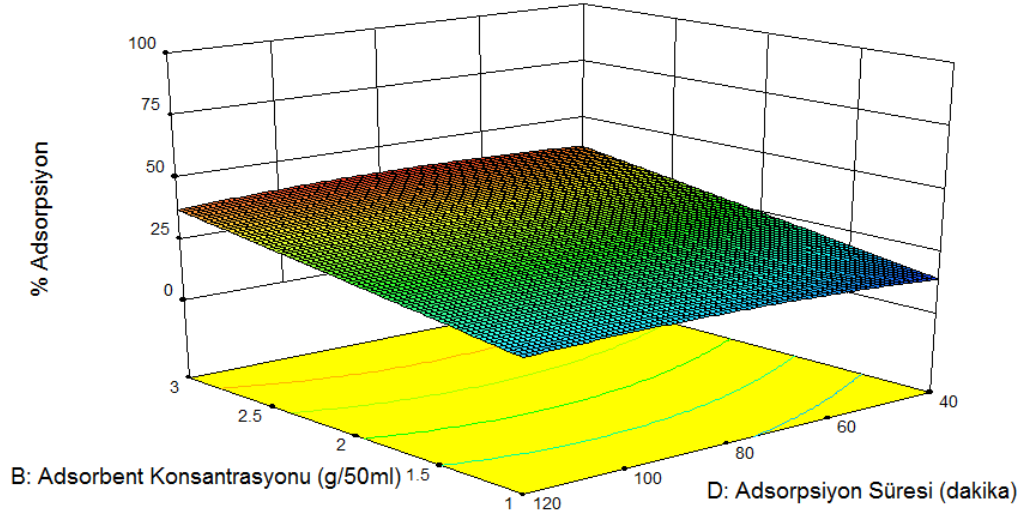




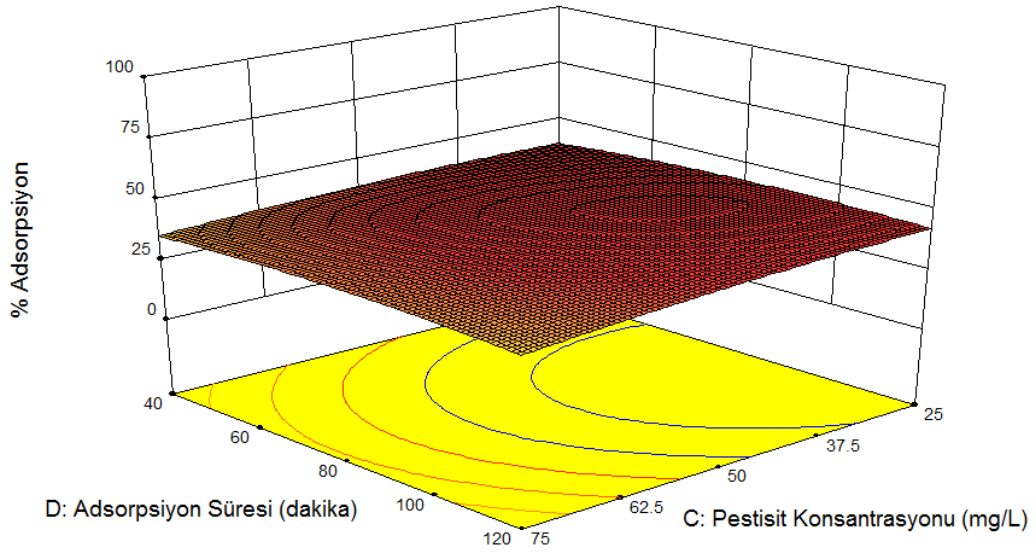
Şekil 9. 25 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda pH ve adsorpsiyon süresi parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 9. 26 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda pestisit konsantrasyonu ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 9. 27 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda adsorpsiyon süresi ve adsorbent konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 9. 28 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonunda adsorpsiyon süresi ve pestisit konsantrasyonu parametrelerinin etkileşiminin adsorpsiyona etkisini gösteren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği

### 9.1.5. Box-Behnken Deneysel Tasarımı Optimizasyon Sonuçlarının Karşılaştırılması ve Yorumlanması

Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerinin badem ve kestane kabukları ile adsorpsiyonları için Box-Behnken deneysel tasarımı ile elde edilen optimizasyon sonuçları Çizelge 9.17’de gösterilmiştir.

Çizelge 9. 17 Box-Behnken deneysel tasarımı optimizasyon sonuçları

Optimum Parametreler	Pestisit / Kullanılan Adsorbent			
	Bentazon		Metalaxyl	
	Badem Kabuğu	Kestane Kabuğu	Badem Kabuğu	Kestane Kabuğu
pH	2.000	2.018	2.003	2.009
Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)	3.000	3.000	3.000	3.000
Pestisit Konsantrasyonu (mg/L)	75.000	75.000	75.000	75.000
Adsorpsiyon Süresi (dakika)	40.069	40.000	40.000	40.000
% Teorik Adsorpsiyon	72.184	84.483	36.382	64.033
% Deneysel Adsorpsiyon	70.336	85.092	33.288	66.084

Adsorpsiyon sonucunu etkileyen parametrelerden en önemlisi pH’dır. Adsorbent yüzey fonksiyonel grupları, içerdikleri farklı yük karakteristikleri ile adsorpsiyon prosesini karışık hale getirmektedirler. Gerçekleştirilen deneylerde de görüldüğü üzere, artan pH değerlerinde % adsorpsiyonun azaldığı belirlenmiştir. Çözeltilerin pH’ındaki değişiklik hem pestisit hem de adsorbent moleküllerinin özelliklerini değiştirmektedir.

Düşük pH değerlerinde adsorpsiyonun yüksek olmasının sebebi, yapılarında karbohidratları, aminleri, hidroksil ve karboksilleri ve karbonlu fiber  $C_xOH$  gibi bileşikler bulunan adsorbent yüzeylerinin düşük pH değerlerinde hidronyum ( $OH^-$ ) iyonlarıyla kaplanmış olması [9] ve zayıf asit olan Bentazon ( $pK_a \sim 3.3$ ) ve Metalaxyl ( $pK_a \sim 1.41$ ) [116] pestisit çözeltilerinin düşük pH değerlerinde artan ( $H^+$ ) iyon

konsantrasyonu içermesi ve pestisitlerin yüksek pH değerlerinde olduğu gibi anyon formuna çözünmemiş olmamasıdır [117]. Bu sebeplerden dolayı düşük pH değerlerinde pestisit ve adsorbent yüzeyi arasında elektriksel bir çekim oluşmakta ve % adsorpsiyon artmaktadır. Bu yüzden, 4 farklı deney tasarımı için de optimum pH değeri 2.000 olarak bulunmuştur.

Çizelge 9.17’de de görüldüğü üzere Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerinin giderimi için adsorbent olarak kestane kabuğu kullanıldığında daha yüksek verim elde edilmiştir. Bu durum Bentazon pestisitinin badem ve kestane kabuklarıyla olan etkileşiminin, Metalaxyl pestisinin bu iki adsorbent ile olan etkileşiminden daha fazla olması ile açıklanabilir.

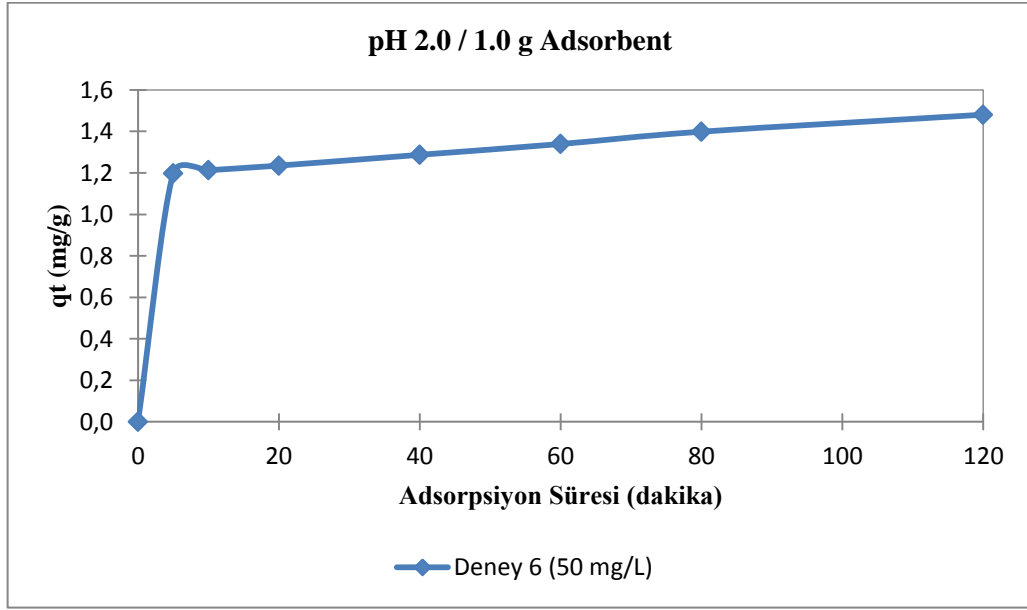
Yapılan optimizasyon çalışmalarında, adsorbent maliyeti çok düşük olduğu için maksimum adsorbent ile minimum adsorpsiyon süresinde, maksimum giderim amaçlanmıştır. Bu nedenle gerçekleştirilen tasarım sonucunda pH 2.000, 40 dakikalık adsorpsiyon süresi, 75.0 mg/L pestisit konsantrasyonu ve 3.0 g/50ml adsorbent konsantrasyonu incelenen tüm adsorpsiyon prosesleri için optimum proses parametreleri olarak belirlenmiştir. Belirlenen optimum koşullarda gerçekleştirilen deneyler sonucunda Bentazon’un badem kabuğu ve kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için sırasıyla % 70.336 ve % 85.092 giderim sağlanırken; Metalaxyl’in badem kabuğu ve kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için sırasıyla % 33.288 ve % 66.084 giderim sağlanmıştır.

## **9.2. Adsorpsiyon Kinetiğinin İncelenmesi**

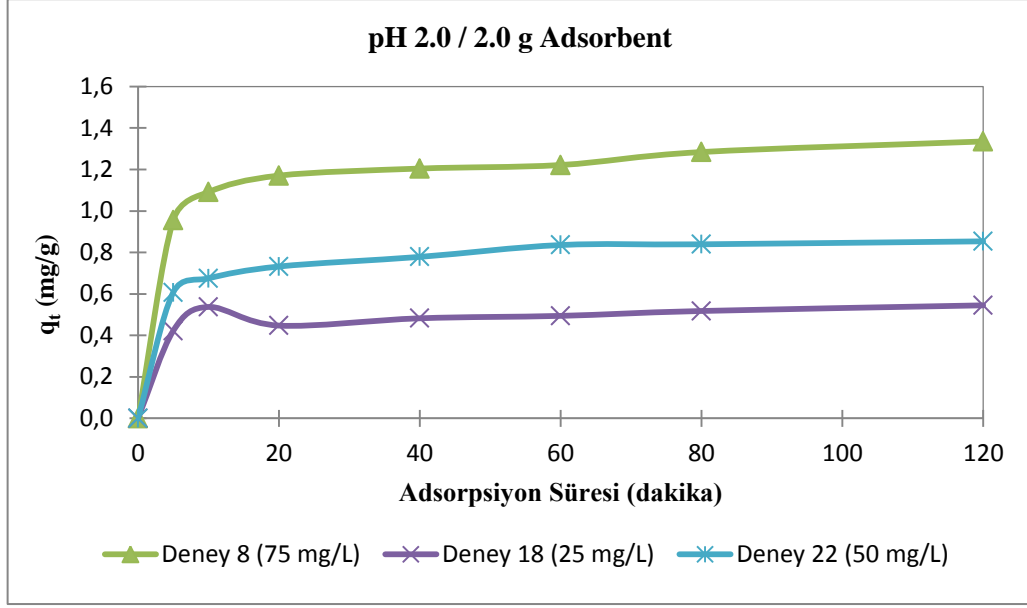
Çalışmanın bu bölümünde her bir pestisit ve adsorbent için Box-Behnken deneysel tasarımı ile proses şartları belirlenen deneyler için 120 dakika süreyle gerçekleştirilen adsorpsiyon işlemlerinde belirli zaman aralıklarında örnekler alınarak pestisit adsorpsiyonu zamana karşı incelenmiştir. Deneyler sonucunda zamana karşı elde edilen pestisit konsantrasyonu ve adsorpsiyon kapasitesi değerleri analiz edilmiş ve adsorpsiyon kinetiğinin literatürde sıklıkla kullanılan; 1. Mertebe (Eşitlik 5.3), 2. Mertebe (Eşitlik 5.5), Yalancı 1. Mertebe (Eşitlik 5.8), Yalancı 2. Mertebe (Eşitlik 5.10), Elovich (Eşitlik 5.12) ve Partikül İçi Difüzyon (Eşitlik 5.13) kinetik modellerine uygunluğu incelenmiştir.

### 9.2.1. Bentazon'un badem kabuđu ile adsorpsiyonu için adsorpsiyon kinetiđinin incelenmesi

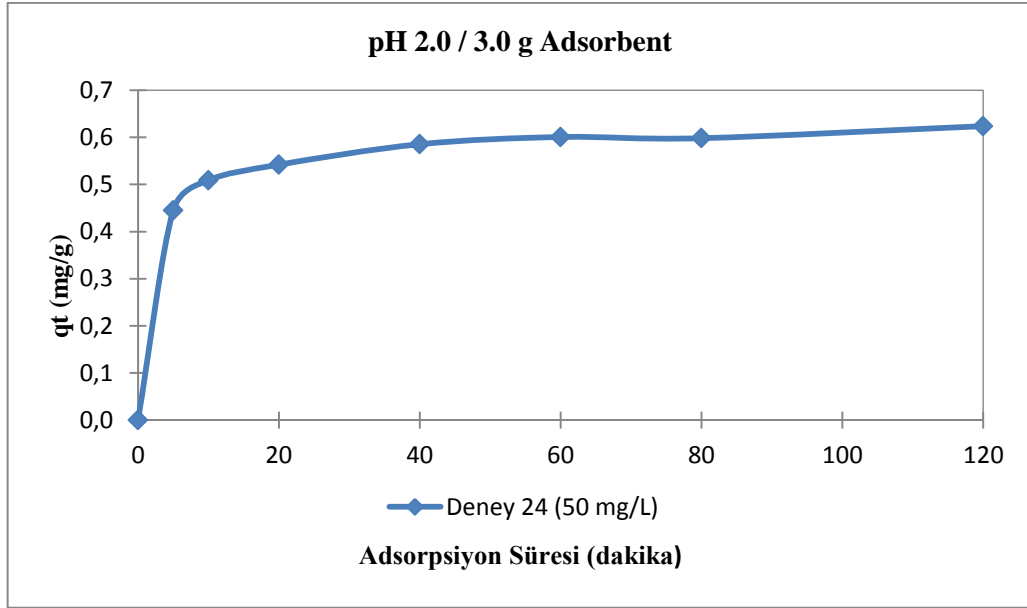
Bentazon'un badem kabuđuna adsorpsiyonu için Box-Behnken deneysel tasarımı ile belirlenen şartlarda, 120 dakika süreyle gerekleřtirilen deneyler, pH ve adsorbent konsantrasyonlarına gore sınıflandırılmıř ve deđiřen pestisit konsantrasyonlarında zamana karřı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi deđerleri grafiksel olarak Őekil 9.29-9.37'de sunulmuřtur.



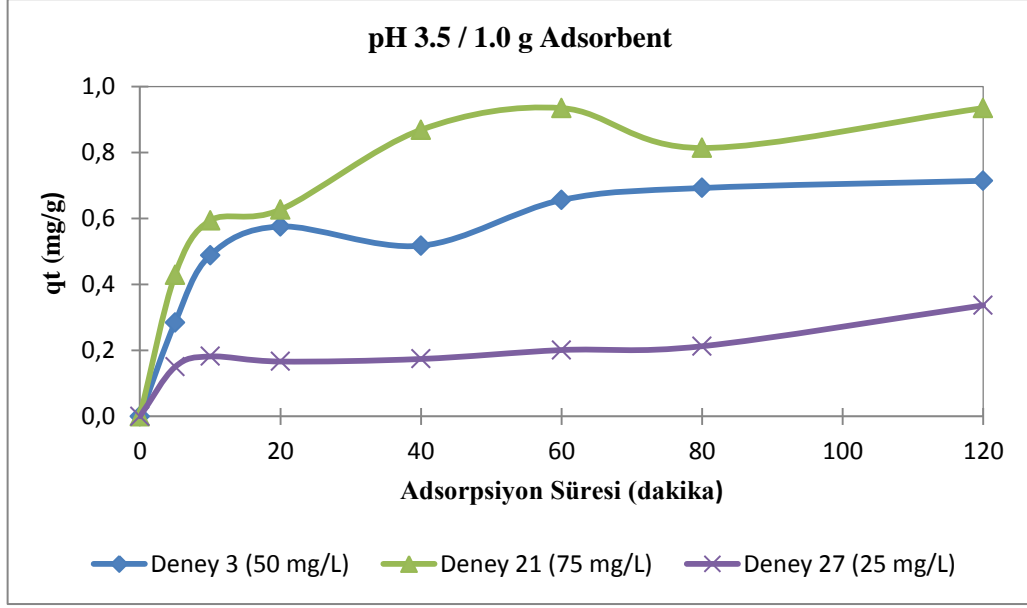
Őekil 9. 29 Bentazon'un badem kabuđuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 6. deney için zamana karřı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi deđerleri



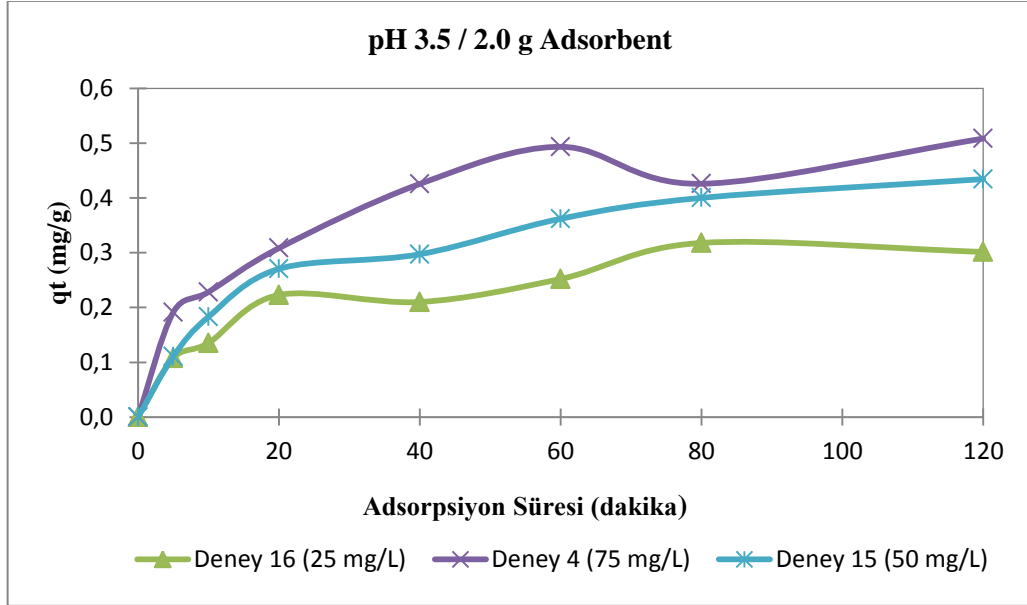
Şekil 9. 30 Bentazon'un badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 8, 18 ve 22. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



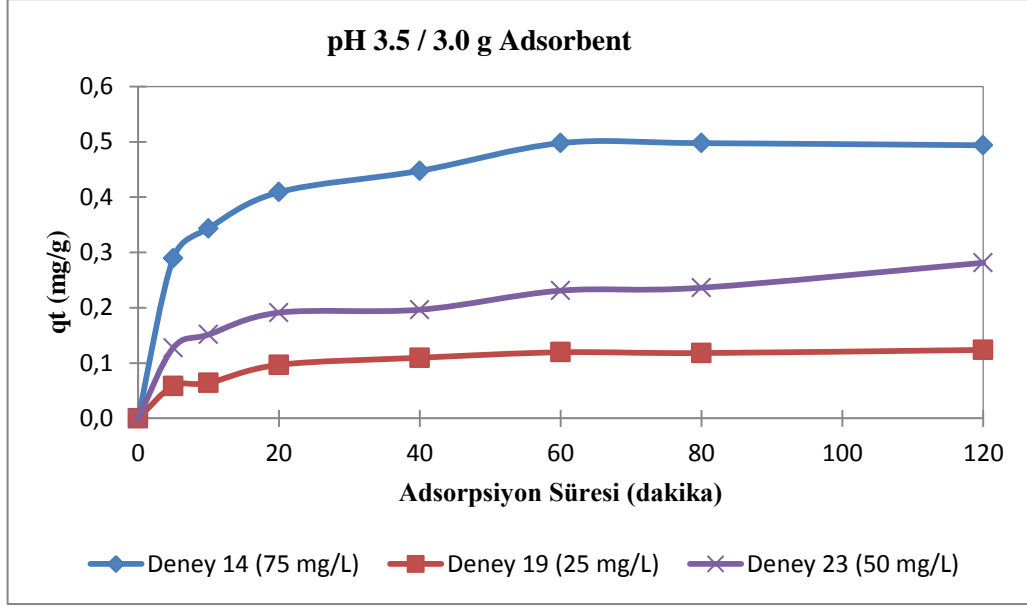
Şekil 9. 31 Bentazon'un badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 24. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



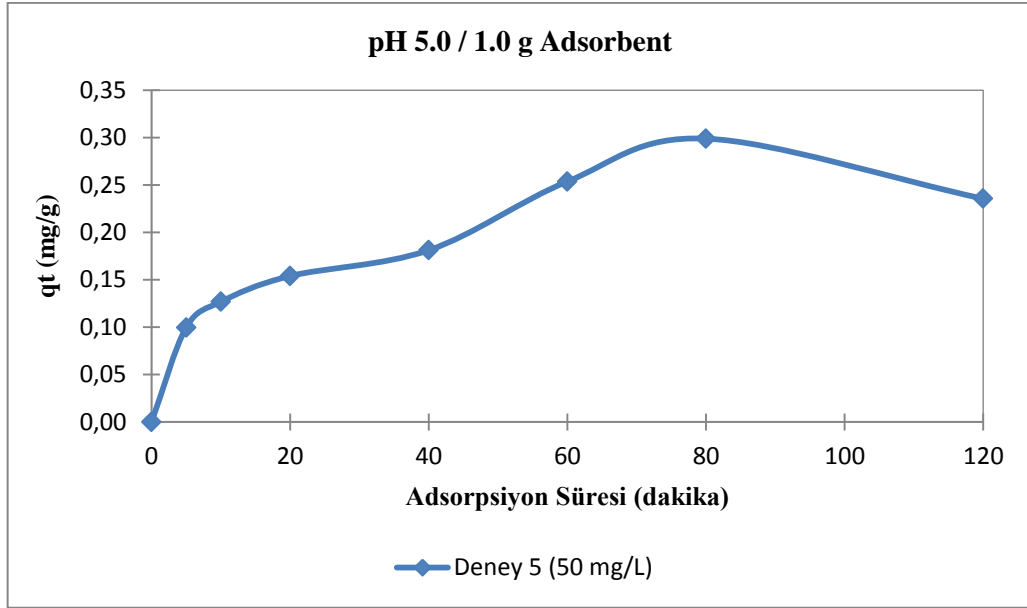
Şekil 9. 32 Bentazon'un badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 3, 21 ve 27. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



Şekil 9. 33 Bentazon'un badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 16, 4 ve 15. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri

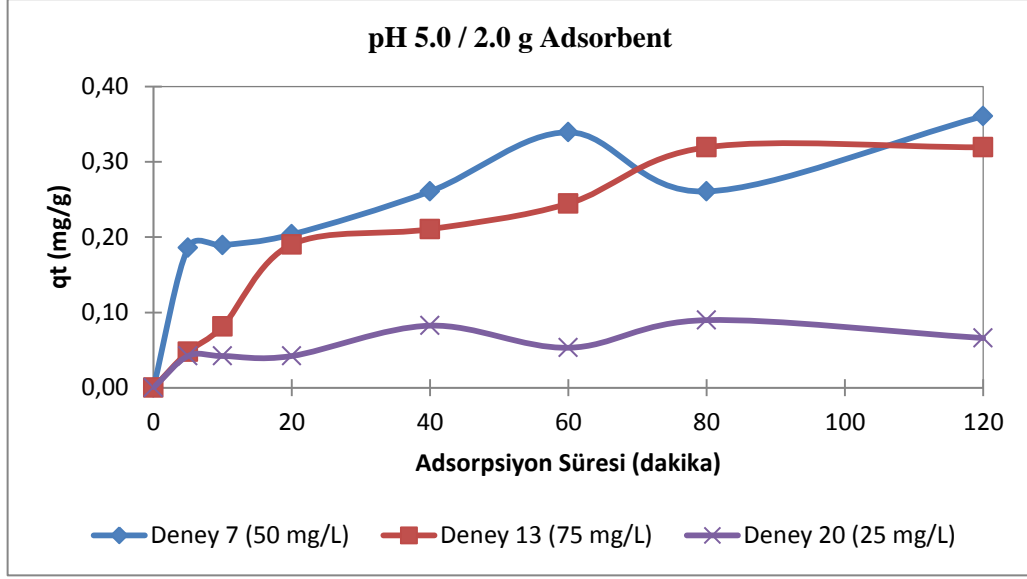


Şekil 9. 34 Bentazon'un badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 14, 19 ve 23. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri

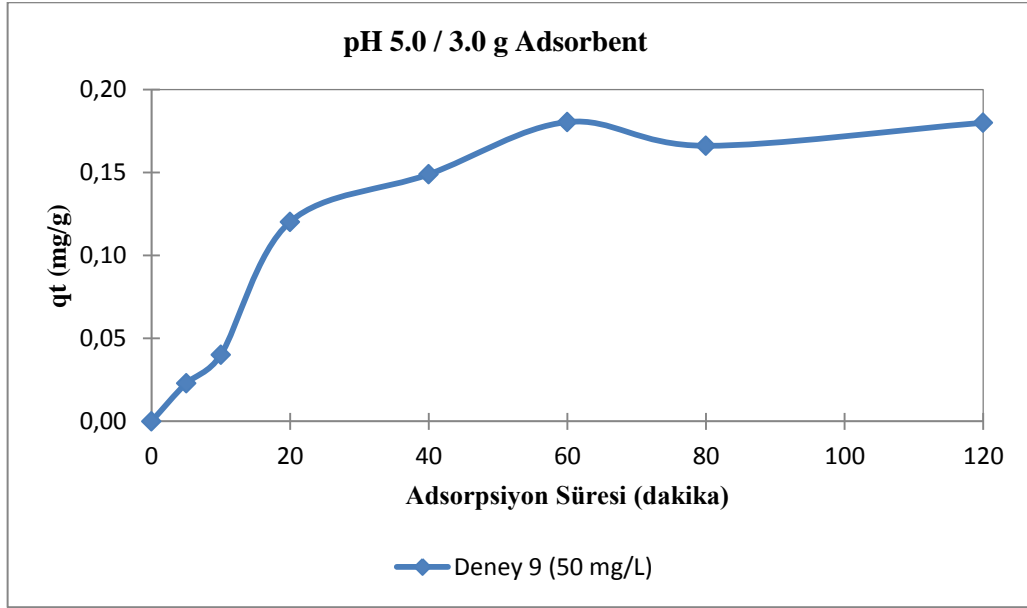


Şekil 9. 35 Bentazon'un badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 5. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri





Şekil 9. 36 Bentazon'un badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 7, 13 ve 20. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



Şekil 9. 37 Bentazon'un badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 9. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri

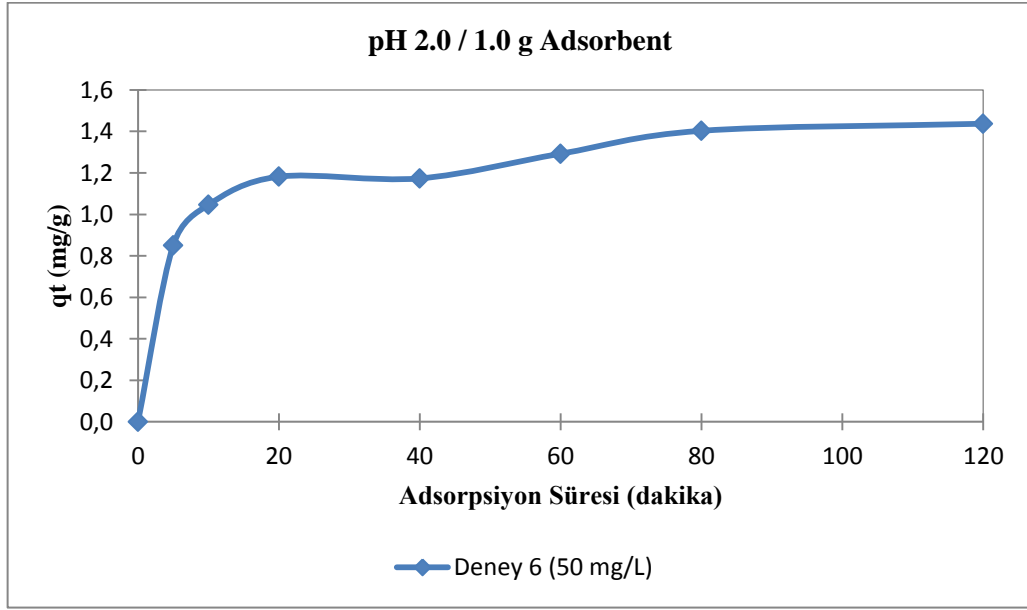
Gerçekleştirilen modelleme çalışmaları sonucunda Yalancı 2. Mertebe Kinetik modelin deneysel verilere diğer modellerden daha yüksek oranda uyumluluk gösterdiği ve Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyon kinetiğinin Yalancı 2. Mertebe kinetik modeli ile ifade edilebileceği belirlenmiştir. Yalancı 2. Mertebe Kinetik modeli için elde edilen denklem sabitleri ve istatistiksel veriler Çizelge 9.18'de verilmiştir. Ayrıca, çalışmada deneysel verilere uygunluğu incelenen diğer tüm modeller için elde edilen denklem sabitleri ve istatistiksel veriler Çizelge EK-B.1-B.5'de verilmiştir.

Çizelge 9. 18 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Yalancı 2. Mertebe kinetik model sabitleri ve istatistiksel veriler

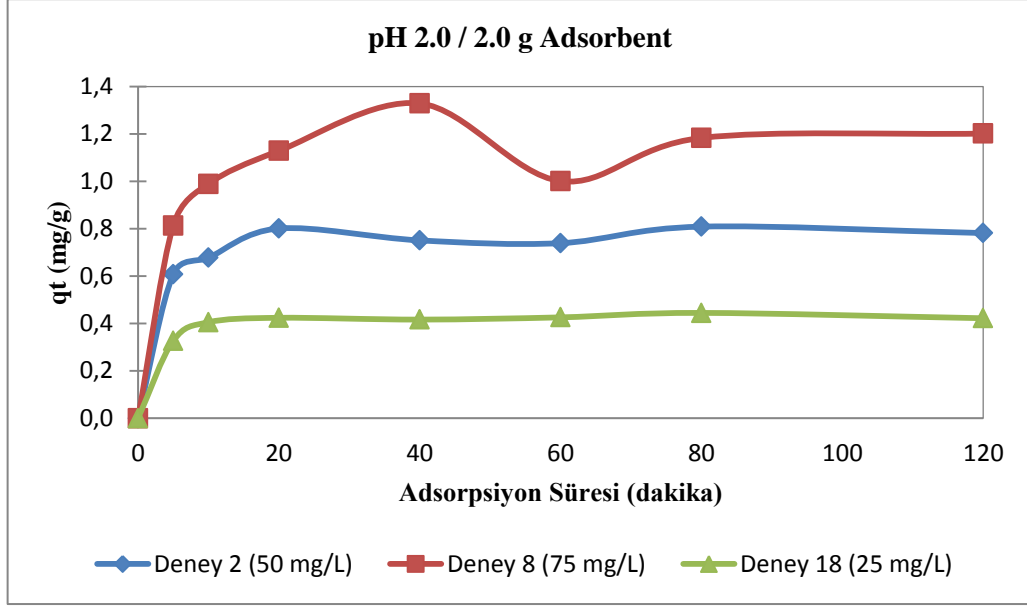
				<b>Yalancı 2. Mertebe Kinetik Modeli Katsayılar</b>				
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pest. Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>Q<sub>e</sub> deneysel (mg/g)</b>	<b>Q<sub>e</sub> teorik (mg/g)</b>	<b>k<sub>2</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	1.43973	1.48986	0.17650	1.78	0.99832
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	0.53125	0.54594	0.57719	5.03	0.99821
		<b>50</b>	<b>22</b>	0.85357	0.87445	0.34751	1.11	0.99978
		<b>75</b>	<b>8</b>	1.30966	1.34971	0.21602	1.41	0.99913
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	0.61094	0.63208	0.54486	1.66	0.99974
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	0.27477	0.32037	0.16125	61.9	0.91960
		<b>50</b>	<b>3</b>	0.71429	0.75810	0.14635	6.37	0.99450
		<b>75</b>	<b>21</b>	0.93475	0.97040	0.14269	5.05	0.99432
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>16</b>	0.30158	0.33952	0.20165	21.1	0.98805
		<b>50</b>	<b>15</b>	0.43445	0.46414	0.16256	15.6	0.98772
		<b>75</b>	<b>4</b>	0.56127	0.54611	0.14600	10.8	0.99183
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	0.12372	0.12835	1.37174	24.3	0.99767
		<b>50</b>	<b>23</b>	0.25876	0.27943	0.42755	24.9	0.98855
		<b>75</b>	<b>14</b>	0.49383	0.51018	0.41820	4.15	0.99892
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	0.24892	0.27798	0.31412	37.9	0.97461
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	0.06598	0.07571	2.97285	153	0.96918
		<b>50</b>	<b>7</b>	0.36072	0.36290	0.23659	31.4	0.97043
		<b>75</b>	<b>13</b>	0.31929	0.42698	0.06294	20.2	0.98269
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	0.23196	0.24938	0.10822	57.3	0.95467

### 9.2.2. Bentazon'un kestane kabuđu ile adsorpsiyonu için adsorpsiyon kinetiđinin incelenmesi

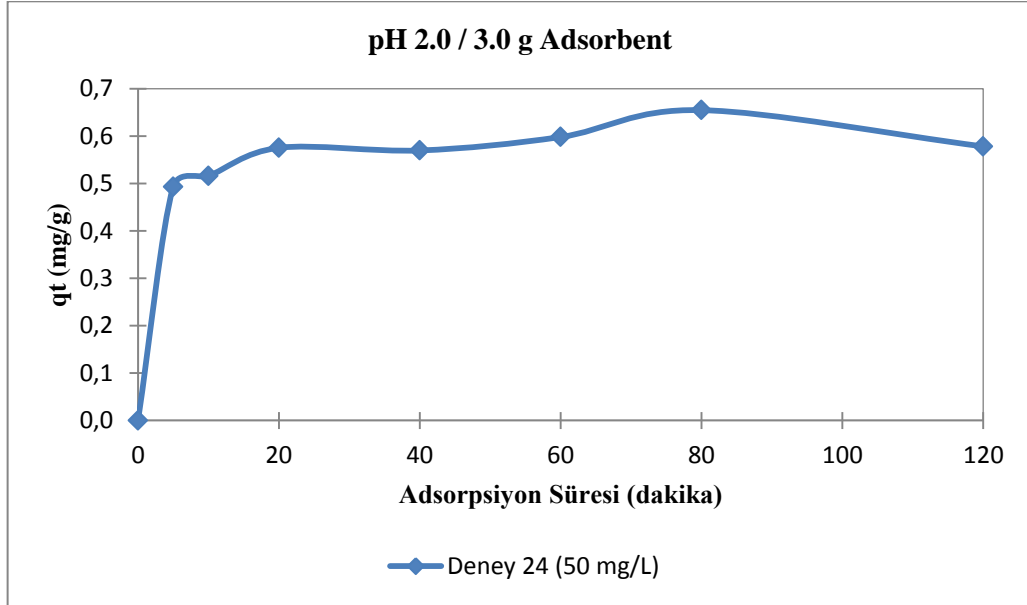
Bentazon'un kestane kabuđuna adsorpsiyonu için Box-Behnken deneysel tasarımı ile belirlenen şartlarda, 120 dakika süreyle gerekleřtirilen deneyler, pH ve adsorbent konsantrasyonlarına gore sınıflandırılmıř ve deđiřen pestisit konsantrasyonlarında zamana karřı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi deđerleri grafiksel olarak Őekil 9.38-9.46'da sunulmuřtur.



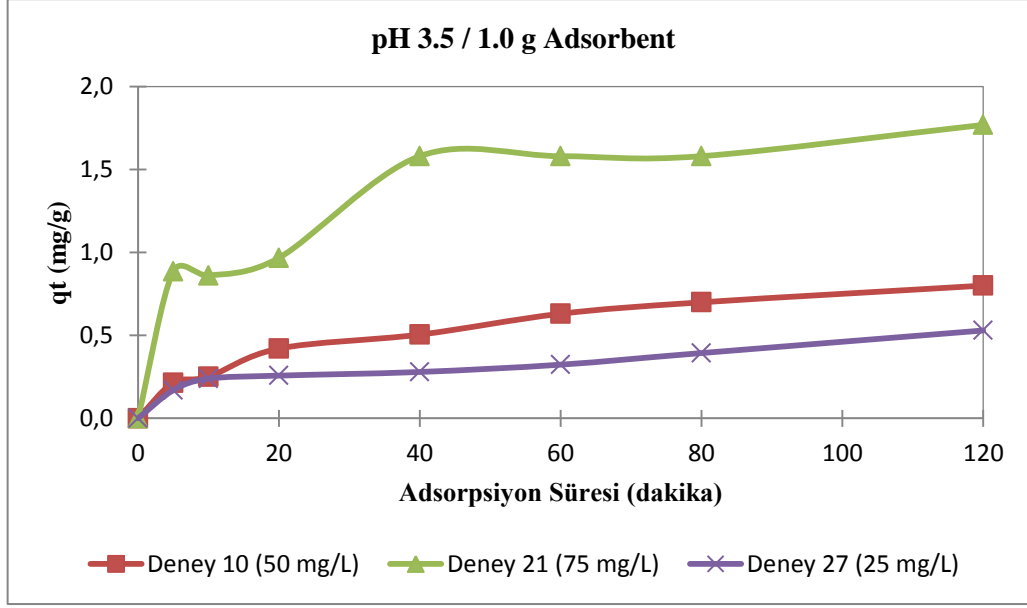
Őekil 9. 38 Bentazon'un kestane kabuđuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 6. deney için zamana karřı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi deđerleri



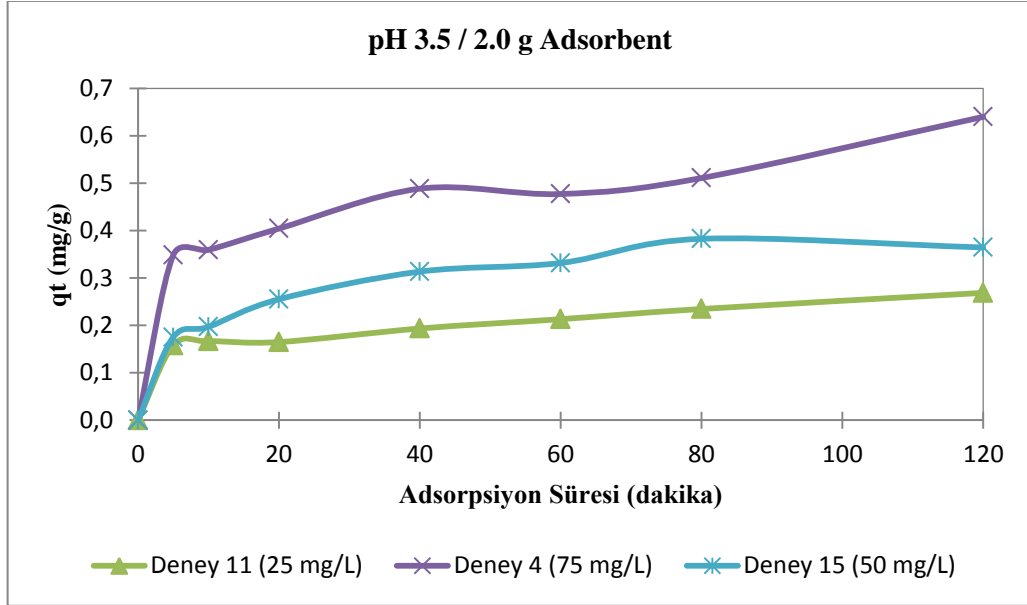
Şekil 9. 39 Bentazon'un kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 2, 8 ve 18. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



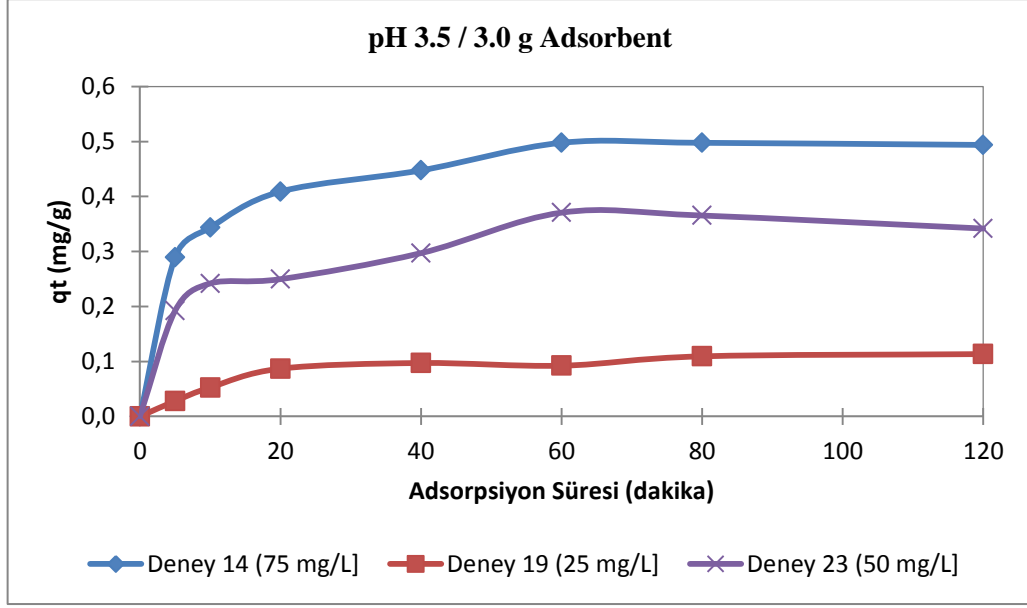
Şekil 9. 40 Bentazon'un kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 24. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



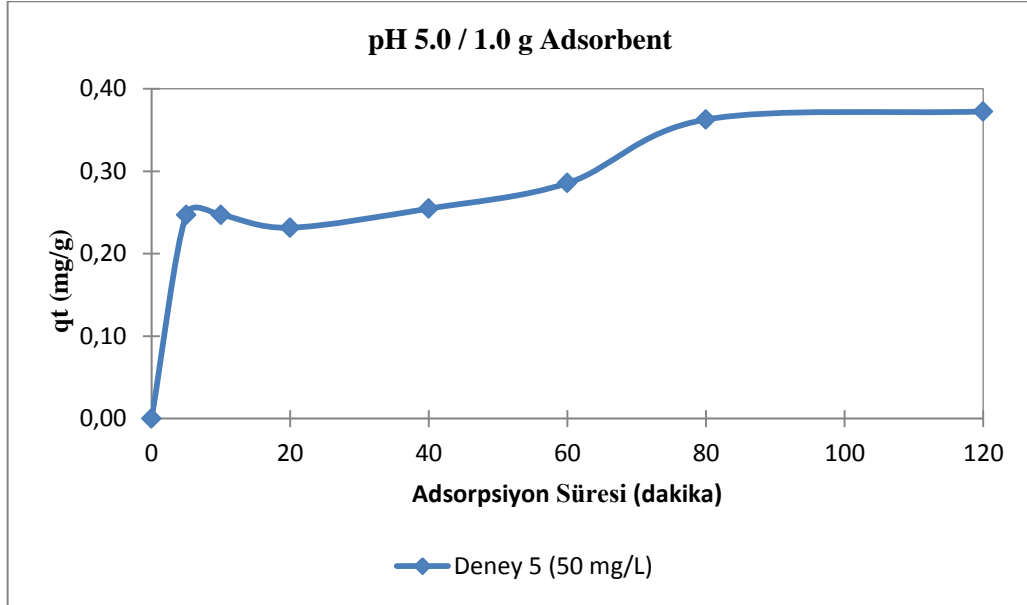
Şekil 9. 41 Bentazon'un kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 10, 21 ve 27. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



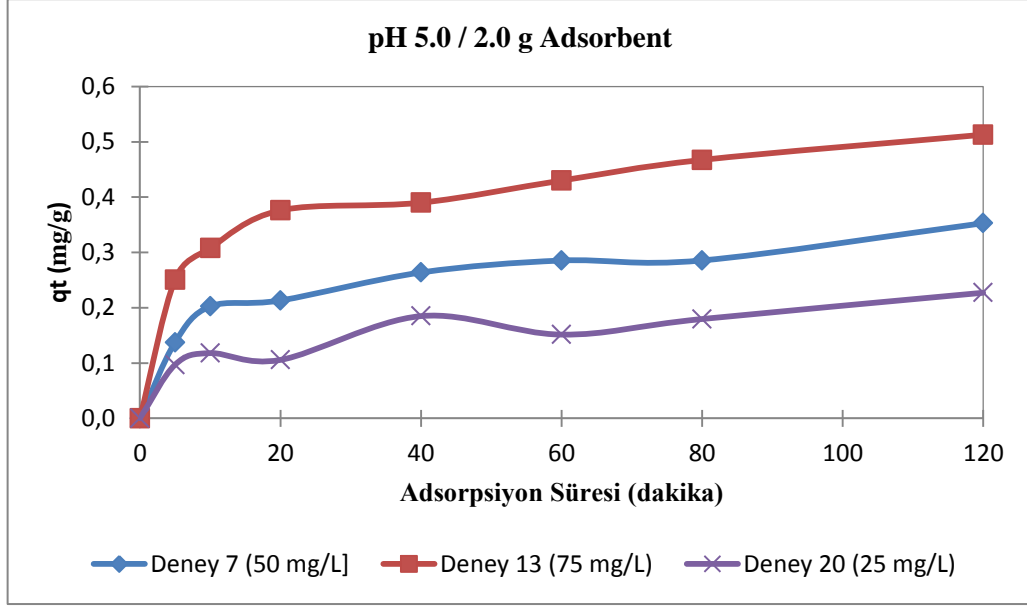
Şekil 9. 42 Bentazon'un kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 11, 4 ve 15. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



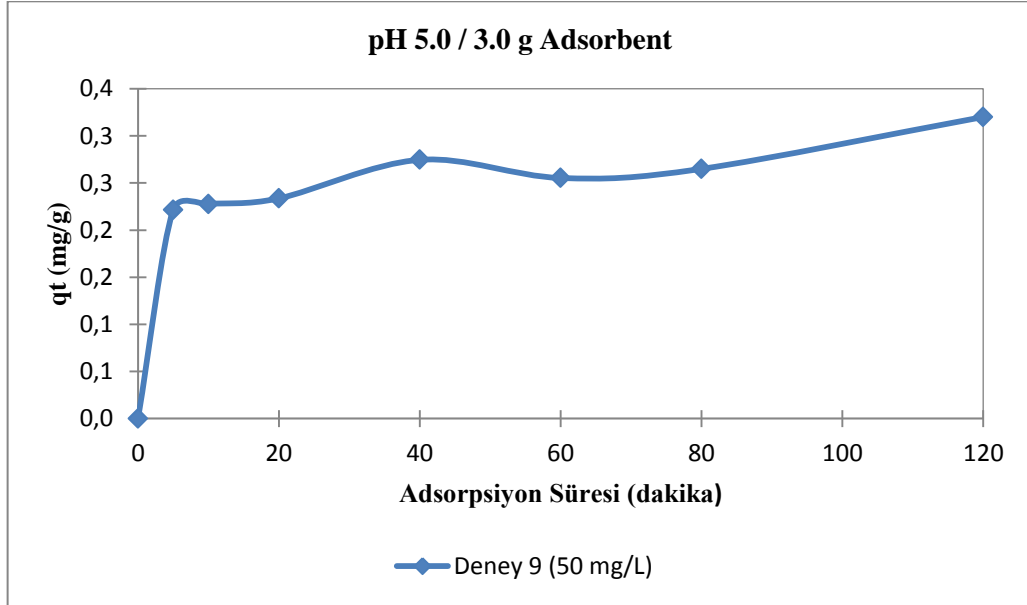
Şekil 9. 43 Bentazon'un kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 14, 19 ve 23. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



Şekil 9. 44 Bentazon'un kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 5. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri grafiği



Şekil 9. 45 Bentazon'un kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 7, 13 ve 20. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



Şekil 9. 46 Bentazon'un kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 9. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri

Gerçekleştirilen modelleme çalışmaları sonucunda Yalancı 2. Mertebe Kinetik modelin deneysel verilere diğer modellerden daha yüksek oranda uyumluluk gösterdiği ve Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyon kinetiğinin Yalancı 2. Mertebe kinetik modeli ile ifade edilebileceği belirlenmiştir. Yalancı 2. Mertebe Kinetik modeli için elde edilen denklem sabitleri ve istatistiksel veriler Çizelge 9.19'de verilmiştir. Ayrıca, çalışmada deneysel verilere uygunluğu incelenen diğer tüm modeller için elde edilen denklem sabitleri ve istatistiksel veriler Çizelge EK-B.6-B.10'da verilmiştir.

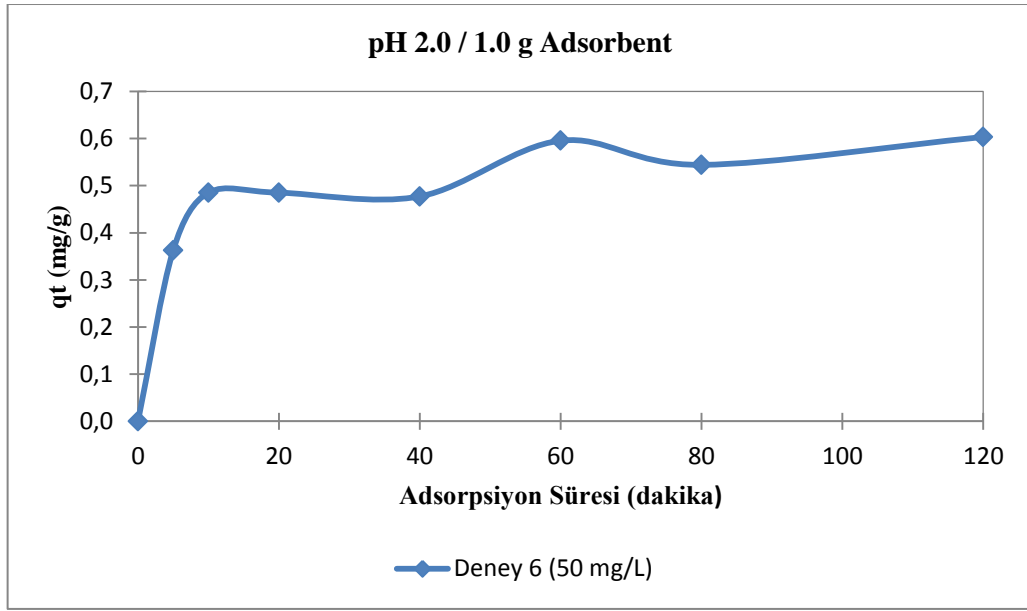
Çizelge 9. 19 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Yalancı 2. Mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

					<b>Yalancı 2. Mertebe Kinetik Modeli</b>			
					<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>q<sub>e</sub> deneysel (mg/g)</b>	<b>q<sub>e</sub> teorik (mg/g)</b>	<b>k<sub>2</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	1.43703	1.48468	0.11442	2.02	0.99787
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	0.43356	0.43122	3.39670	3.98	0.99930
		<b>50</b>	<b>2</b>	0.78173	0.79411	0.85592	2.59	0.99899
		<b>75</b>	<b>8</b>	0.57646	1.20193	0.37917	4.39	0.99343
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	0.61650	0.60203	2.39106	6.33	0.99655
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	0.52941	0.55236	0.07623	28.8	0.94473
		<b>50</b>	<b>10</b>	0.90037	0.93758	0.04137	6.70	0.99074
		<b>75</b>	<b>21</b>	1.76887	1.89901	0.04483	2.73	0.99366
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>11</b>	0.26863	0.27636	0.33080	24.5	0.98922
		<b>50</b>	<b>15</b>	0.36443	0.39841	0.26913	8.90	0.99702
		<b>75</b>	<b>4</b>	0.63997	0.61726	0.20849	13.4	0.98391
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	0.11340	0.12606	0.55558	36.9	0.99489
		<b>50</b>	<b>23</b>	0.35358	0.36606	0.48136	12.5	0.99493
		<b>75</b>	<b>14</b>	0.49383	0.51807	0.41821	3.00	0.99942
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	0.59800	0.64928	0.05227	59.9	0.76105
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	0.22711	0.23394	0.26632	51.1	0.96756
		<b>50</b>	<b>7</b>	0.35290	0.36370	0.21985	18.7	0.98919
		<b>75</b>	<b>13</b>	0.51292	0.53254	0.19939	8.29	0.99539
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	0.32000	0.32067	0.47056	24.9	0.98510

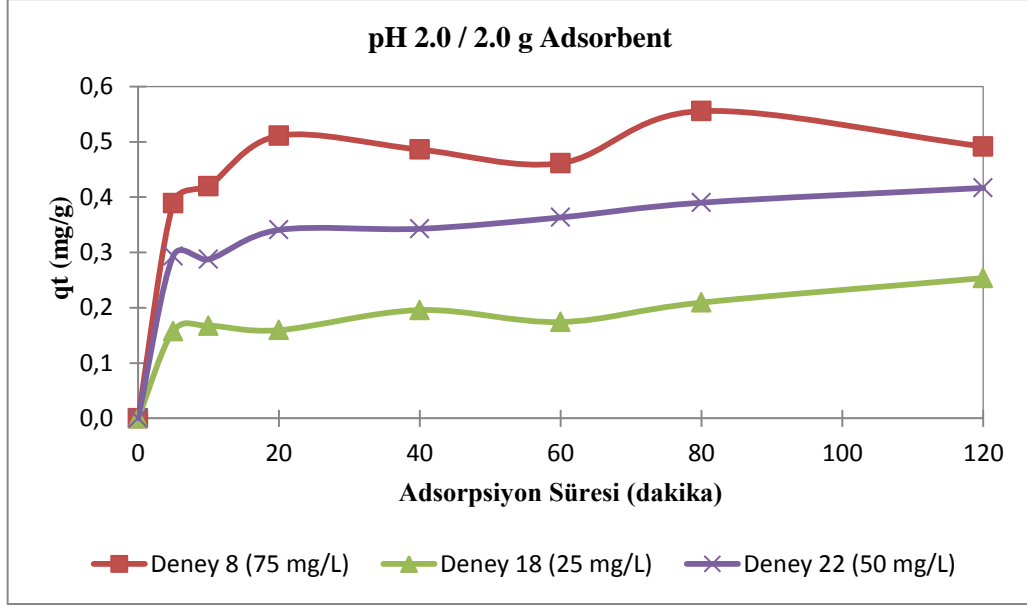


### 9.2.3. Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için adsorpsiyon kinetiğinin incelenmesi

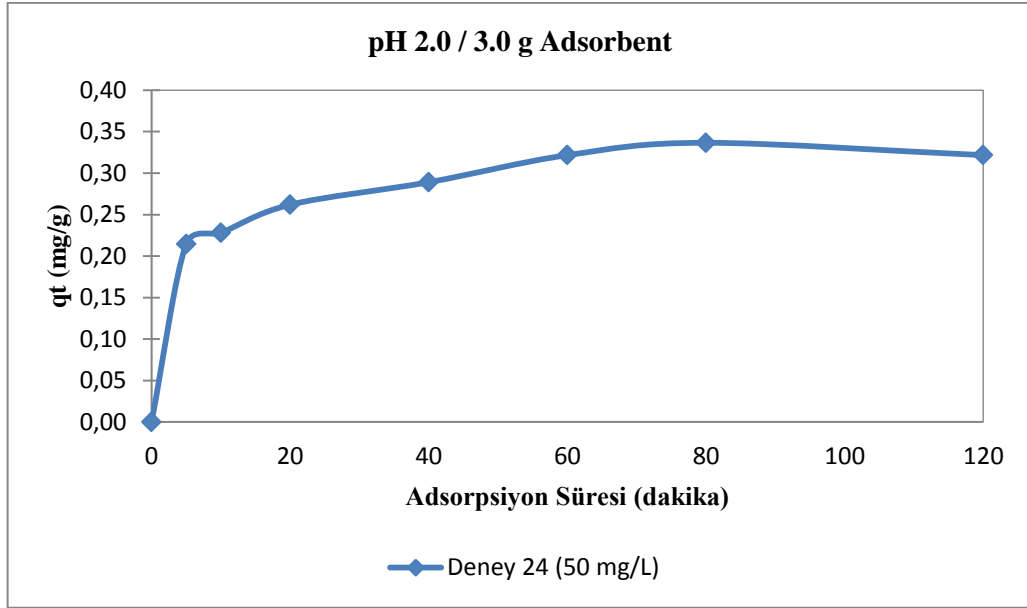
Metalaxyl'in badem kabuğuna adsorpsiyonu için Box-Behnken deneysel tasarımı ile belirlenen şartlarda, 120 dakika süreyle gerçekleştirilen deneyler, pH ve adsorbent konsantrasyonlarına göre sınıflandırılmış ve değişen pestisit konsantrasyonlarında zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri grafiksel olarak Şekil 9.47-9.55'de sunulmuştur.



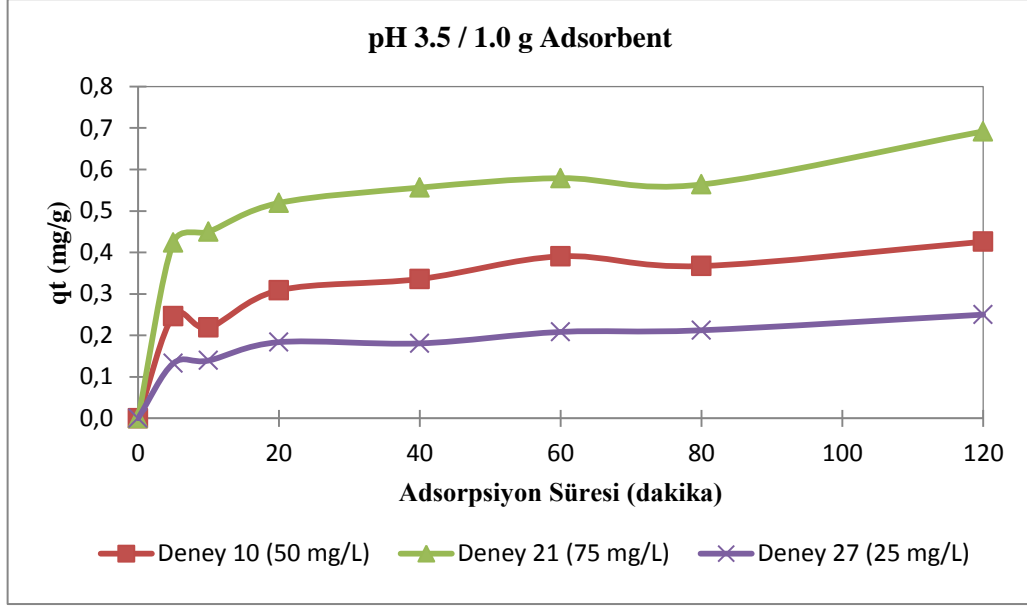
Şekil 9. 47 Metalaxyl'in badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 6. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



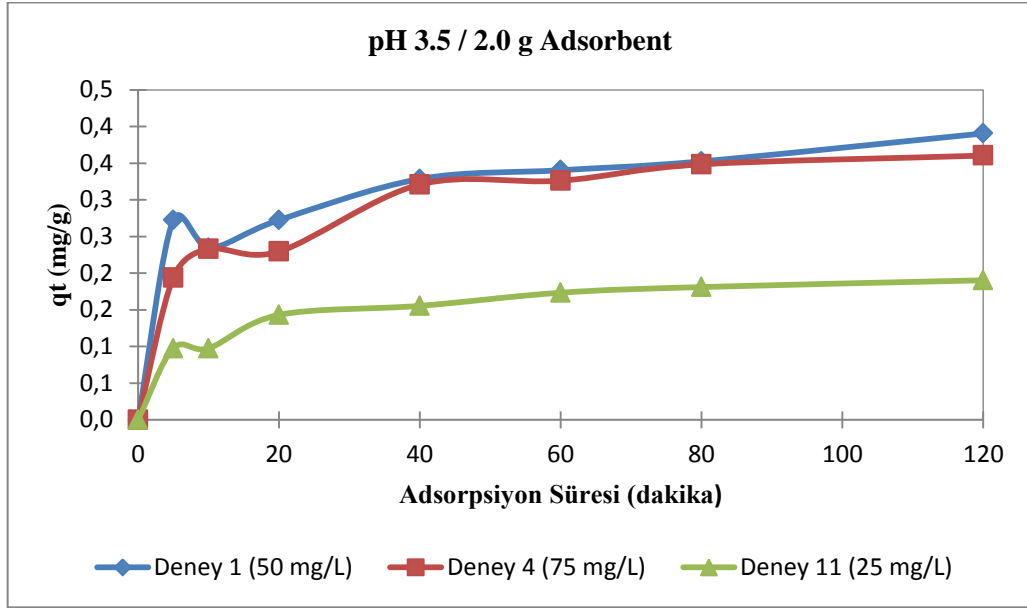
Şekil 9. 48 Metalaxyl'in badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 8, 18 ve 22. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



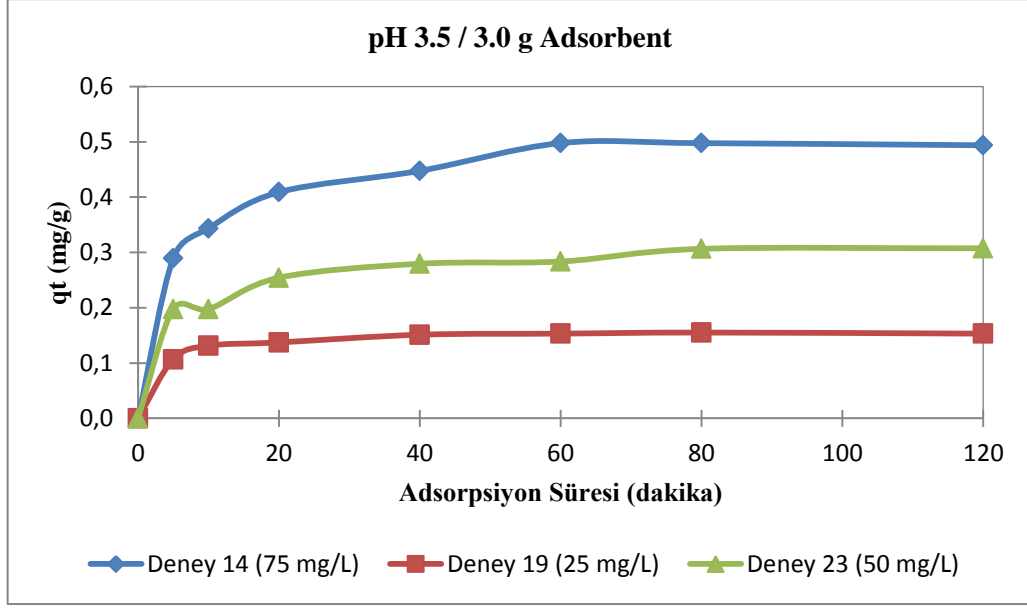
Şekil 9. 49 Metalaxyl'in badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 24. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



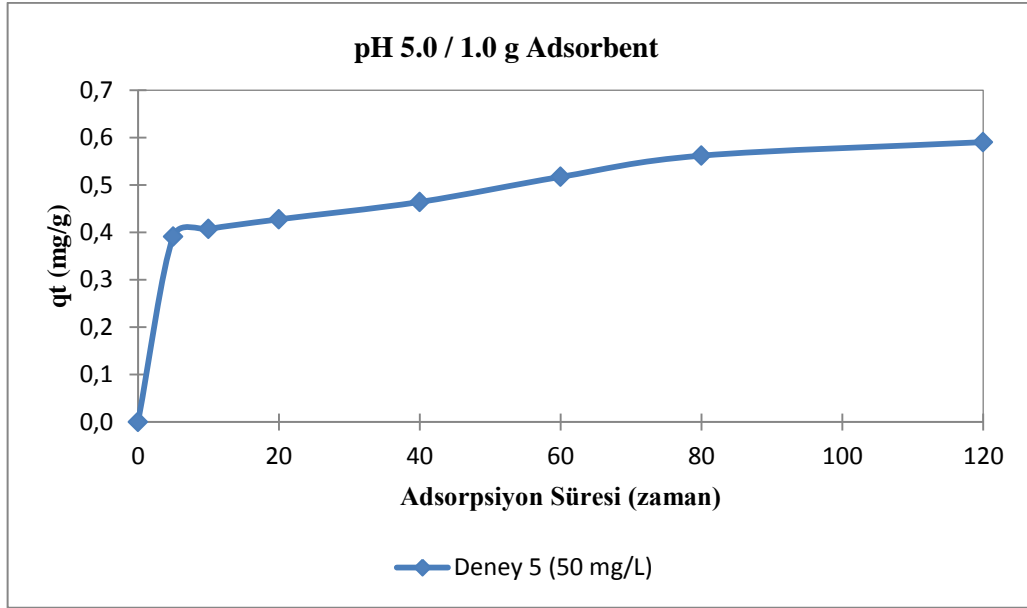
Şekil 9. 50 Metalaxyl'in badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 10, 21 ve 27. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



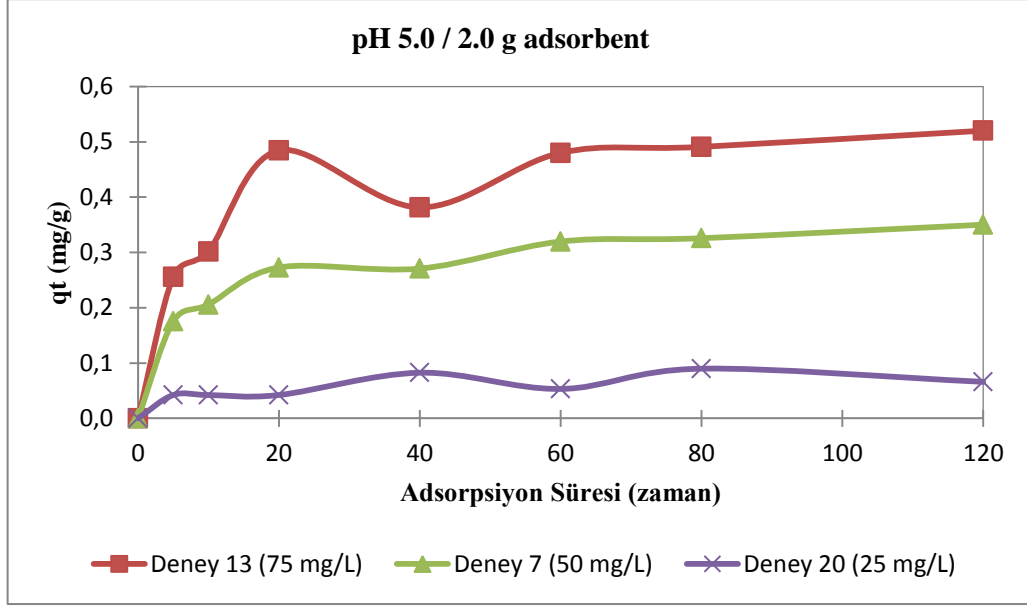
Şekil 9. 51 Metalaxyl'in badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 1, 4 ve 11. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



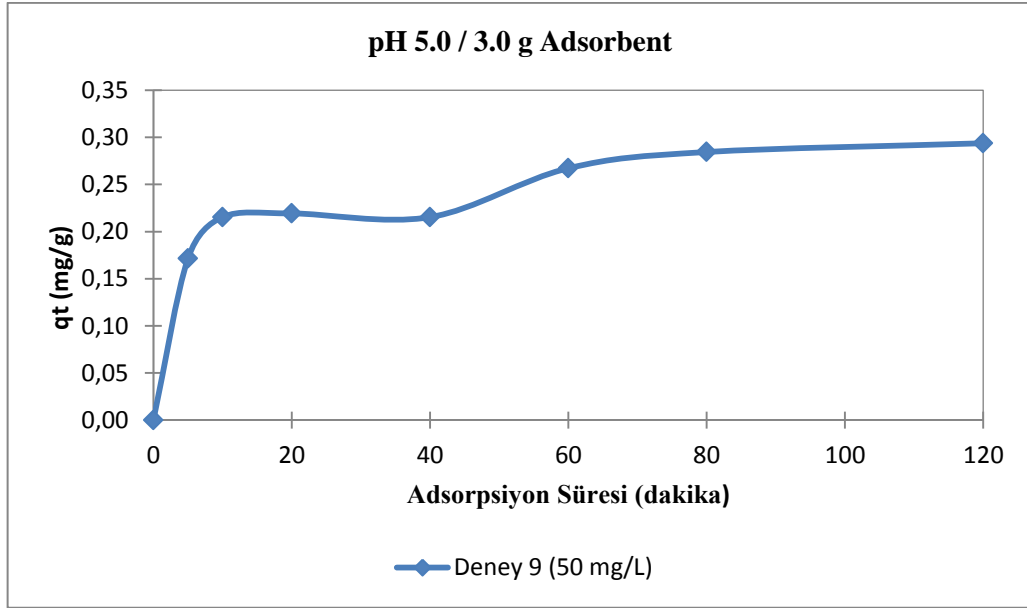
Şekil 9. 52 Metalaxyl'in badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 14, 19 ve 23. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



Şekil 9. 53 Metalaxyl'in badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 5. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



Şekil 9. 54 Metalaxyl'in badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 13, 7 ve 20. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



Şekil 9. 55 Metalaxyl'in badem kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 9. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri

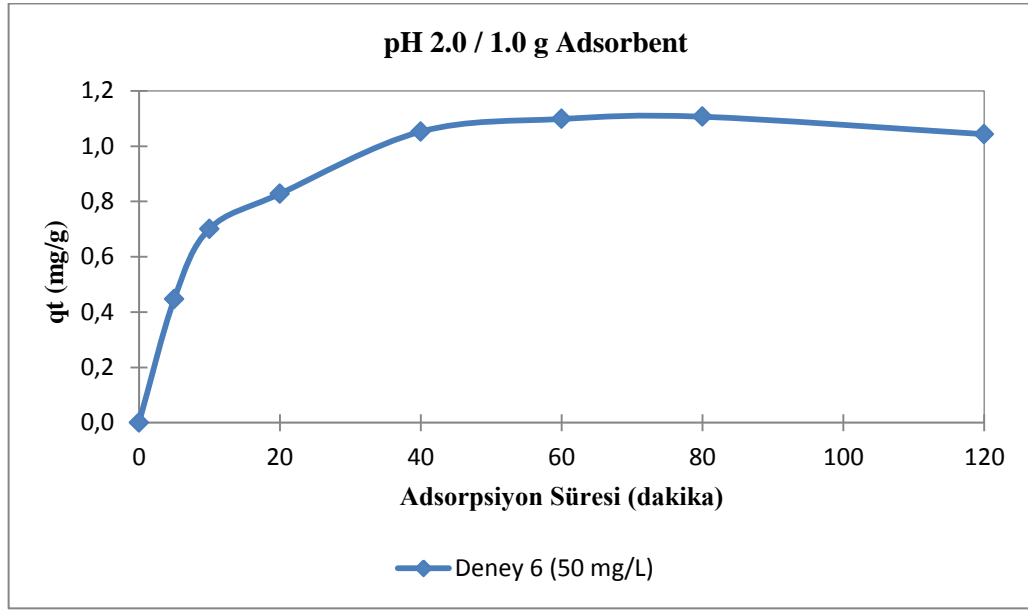
Gerçekleştirilen modelleme çalışmaları sonucunda Yalancı 2. Mertebe Kinetik modelin deneysel verilere diğer modellerden daha yüksek oranda uyumluluk gösterdiği ve Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyon kinetiğinin Yalancı 2. Mertebe kinetik modeli ile ifade edilebileceği belirlenmiştir. Yalancı 2. Mertebe Kinetik modeli için elde edilen denklem sabitleri ve istatistiksel veriler Çizelge 9.20'de verilmiştir. Ayrıca, uygunluğu incelenen tüm kinetik modeller için elde edilen denklem sabitleri ve istatistiksel veriler Çizelge EK-B.11-B.15'de verilmiştir.

Çizelge 9. 20 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Yalancı 2. Mertebe kinetik model sabitleri ve istatistiksel veriler

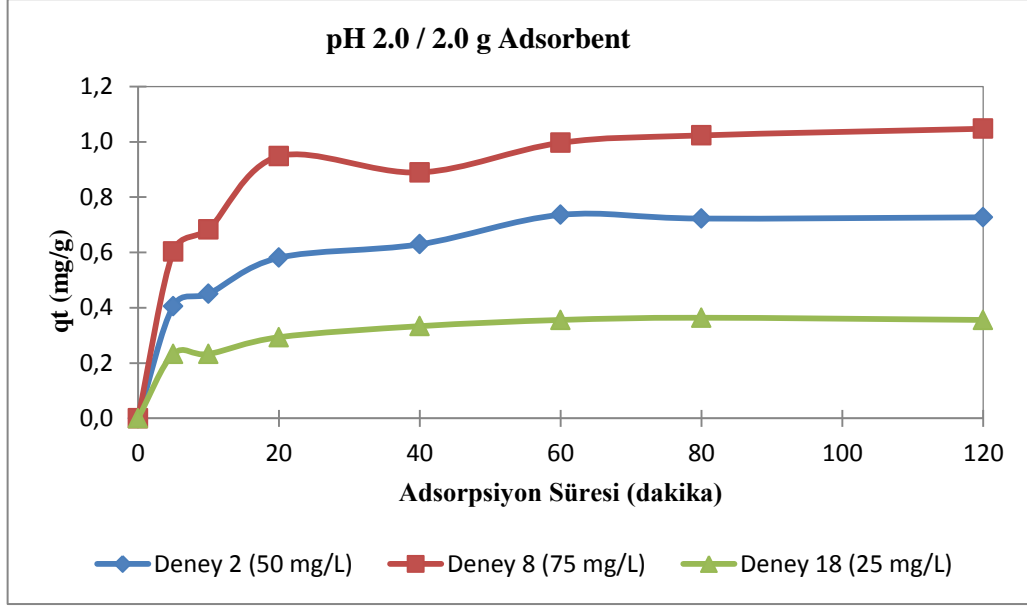
				<b>Yalancı 2. Mertebe Kinetik Modeli</b>				
				<b>Katsayılar</b>				
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>q<sub>e</sub> deneysel (mg/g)</b>	<b>q<sub>e</sub> teorik (mg/g)</b>	<b>k<sub>2</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	0.62450	0.61291	0.31276	7.10	0.99955
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	0.24153	0.25052	0.39286	40.2	0.97663
		<b>50</b>	<b>22</b>	0.41667	0.42342	0.41621	8.13	0.99719
		<b>75</b>	<b>8</b>	0.49165	0.50874	1.52563	8.77	0.99529
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	0.35559	0.33908	0.66753	7.37	0.99852
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	0.25000	0.25513	0.39577	23.9	0.99130
		<b>50</b>	<b>10</b>	0.42578	0.43980	0.25574	10.8	0.99468
		<b>75</b>	<b>21</b>	0.60740	0.68377	0.20372	9.46	0.99018
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>11</b>	0.19037	0.22250	0.45249	12.0	0.99861
		<b>50</b>	<b>1</b>	0.39063	0.40062	0.33479	9.52	0.99656
		<b>75</b>	<b>4</b>	0.36046	0.38165	0.32240	7.96	0.99781
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	0.15148	0.15901	1.87371	15.3	0.99860
		<b>50</b>	<b>23</b>	0.30751	0.31999	0.60115	5.40	0.99930
		<b>75</b>	<b>14</b>	0.49383	0.51807	0.41821	3.00	0.99942
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	0.59043	0.61043	0.22597	6.48	0.99629
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	0.07790	0.07366	2.13075	188	0.95696
		<b>50</b>	<b>7</b>	0.35016	0.36651	0.32521	9.04	0.99740
		<b>75</b>	<b>13</b>	0.52015	0.54260	0.23691	9.18	0.99414
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	0.29373	0.30651	0.42809	16.1	0.99427

#### 9.2.4. Metalaxyl'in kestane kabuđu ile adsorpsiyonuna ait adsorpsiyon kinetikleri

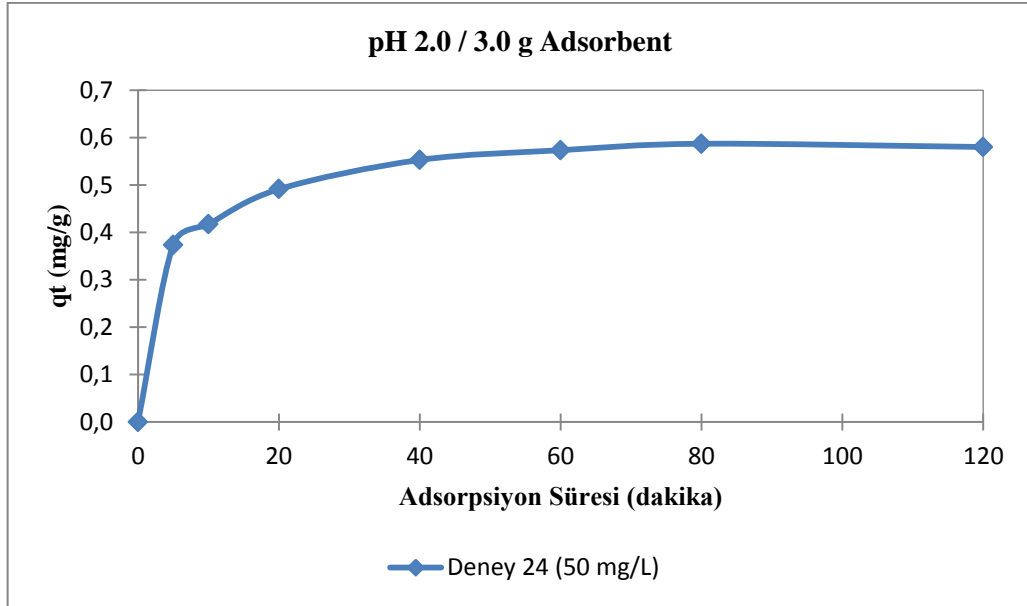
Metalaxyl'in kestane kabuđuna adsorpsiyonu iin Box-Behnken deneysel tasarımı ile belirlenen artlarda, 120 dakika sureyle gerekleřtirilen deneyler, pH ve adsorbent konsantrasyonlarına gore sınıflandırılmıř ve deđiřen pestisit konsantrasyonlarında zamana karřı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi deđerleri grafiksel olarak řekil 9.47-9.55'de sunulmuřtur.



řekil 9. 56 Metalaxyl'in kestane kabuđuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 6. deney iin zamana karřı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi deđerleri

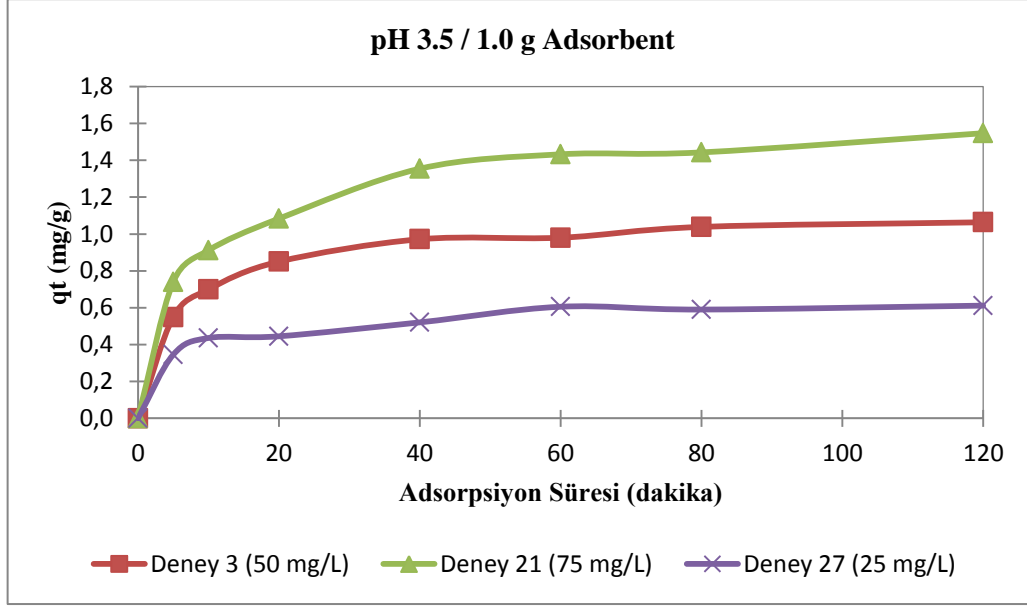


Şekil 9. 57 Metalaxyl'in kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 2, 8 ve 18. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri

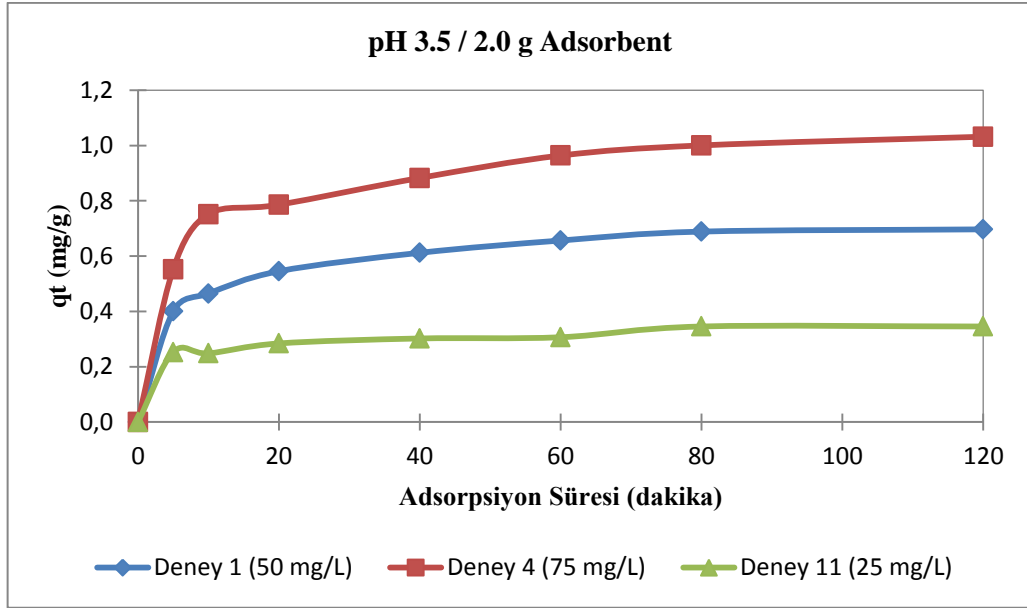


Şekil 9. 58 Metalaxyl'in kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 24. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri

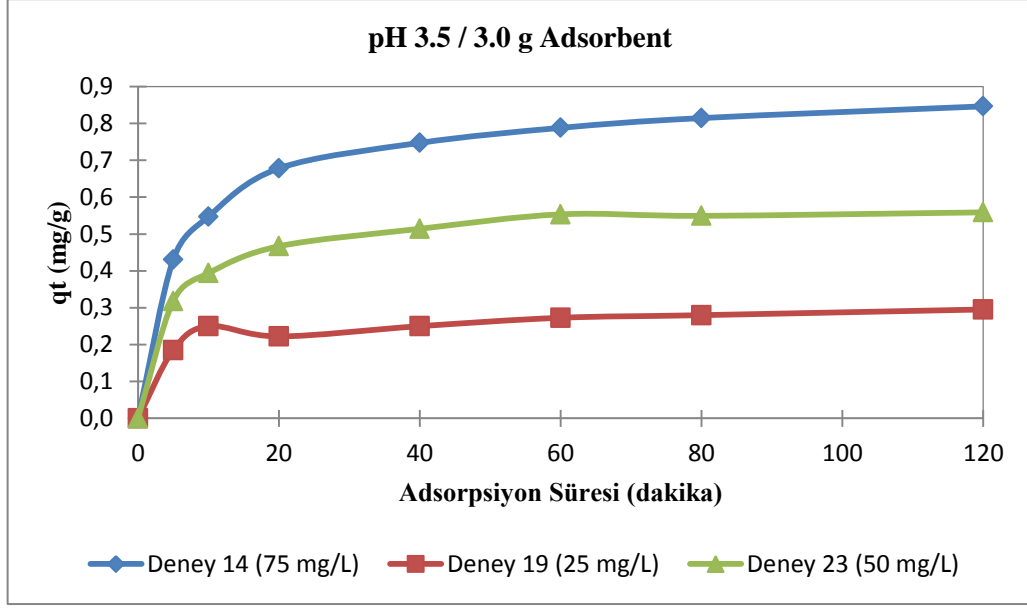




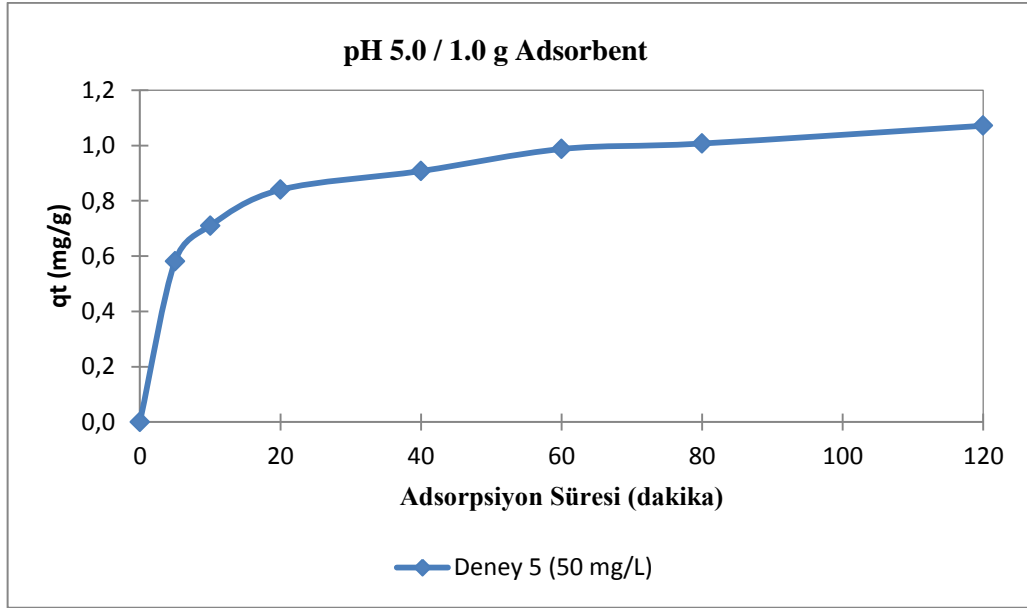
Şekil 9. 59 Metalaxyl'in kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 3, 21 ve 27. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



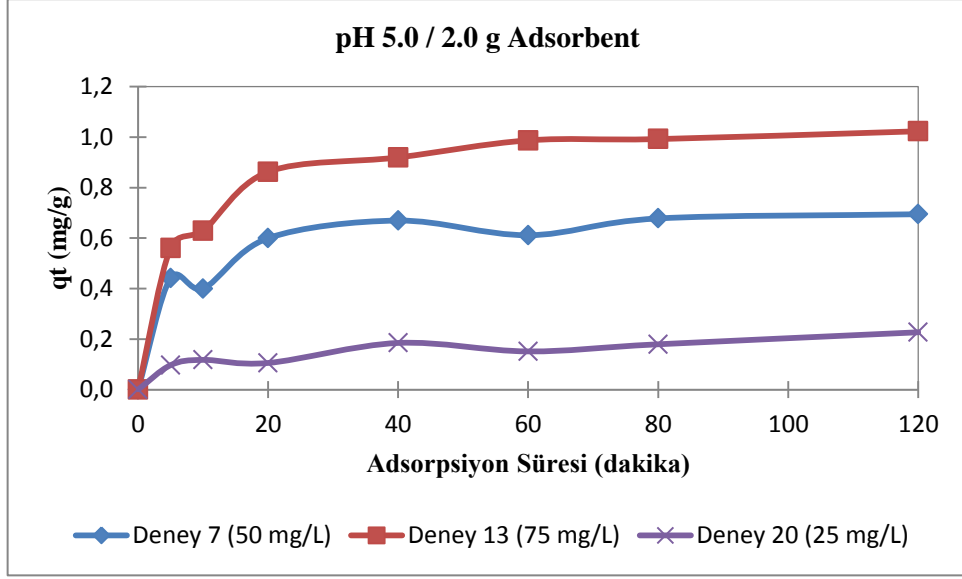
Şekil 9. 60 Metalaxyl'in kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 1, 4 ve 11. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



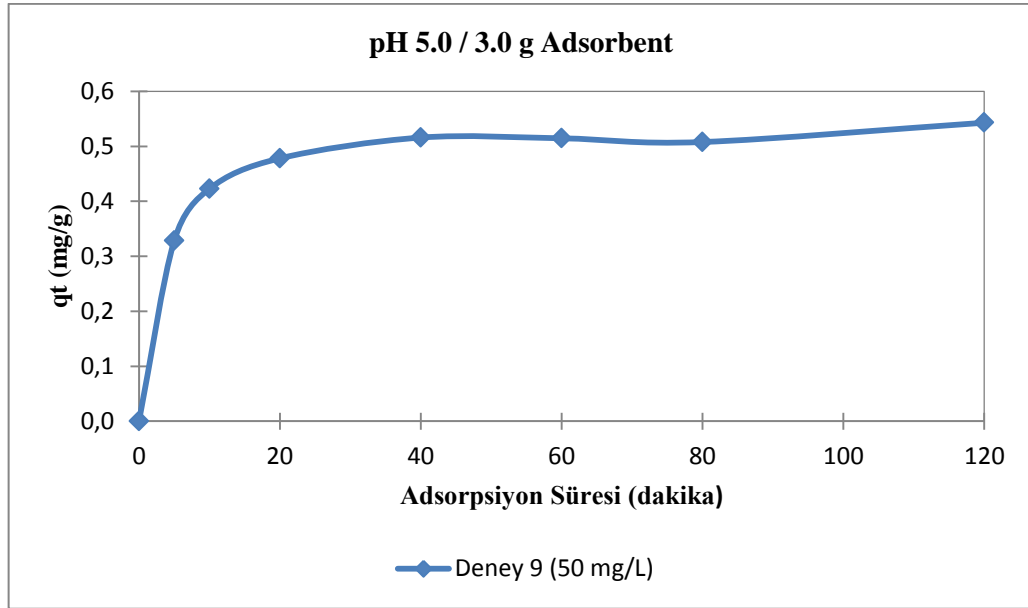
Şekil 9. 61 Metalaxyl'in kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 14, 19 ve 23. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



Şekil 9. 62 Metalaxyl'in kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 5. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



Şekil 9. 63 Metalaxyl'in kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 7, 13 ve 20. deneyler için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



Şekil 9. 64 Metalaxyl'in kestane kabuğuna adsorpsiyonunda Box-Behnken deneysel tasarımındaki 9. deney için zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri

Gerçekleştirilen modelleme çalışmaları sonucunda Yalancı 2. Mertebe Kinetik modelin deneysel verilere diğer modellerden daha yüksek oranda uyumluluk gösterdiği ve Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyon kinetiğinin Yalancı 2. Mertebe kinetik modeli ile ifade edilebileceği belirlenmiştir. Yalancı 2. Mertebe Kinetik modeli için elde edilen denklem sabitleri ve istatistiksel değerler Çizelge 9.21'de verilmiştir. Ayrıca, deneysel verilere uygunluğu incelenen diğer tüm modeller için elde edilen denklem sabitleri ve istatistiksel değerler Çizelge EK-B.16-B.20'de gösterilmiştir.

Çizelge 9. 21 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Yalancı 2. Mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

					<b>Yalancı 2. Mertebe Kinetik Modeli</b>			
					<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>q<sub>e</sub> deneysel (mg/g)</b>	<b>q<sub>e</sub> teorik (mg/g)</b>	<b>k<sub>2</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	1.08197	1.12922	0.16697	3.14	0.99701
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	0.35580	0.37398	0.60453	4.72	0.99926
		<b>50</b>	<b>2</b>	0.72695	0.76987	0.21573	2.87	0.99884
		<b>75</b>	<b>8</b>	1.04732	1.08630	0.17650	1.89	0.99900
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	0.58019	0.60342	0.44708	1.72	0.99974
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	0.61138	0.64079	0.25302	3.80	0.99859
		<b>50</b>	<b>3</b>	1.06365	1.11062	0.15109	0.95	0.99973
		<b>75</b>	<b>21</b>	1.54688	1.63031	0.07489	1.10	0.99922
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>11</b>	0.34540	0.35555	0.57974	8.32	0.99792
		<b>50</b>	<b>1</b>	0.69669	0.72948	0.23200	1.85	0.99956
		<b>75</b>	<b>4</b>	1.03177	1.07506	0.15117	1.63	0.99926
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	0.29527	0.30200	0.63945	8.94	0.99827
		<b>50</b>	<b>23</b>	0.55871	0.58124	0.38149	1.38	0.99985
		<b>75</b>	<b>14</b>	0.84632	0.88332	0.17998	1.06	0.99979
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	0.83334	1.10922	0.13958	1.75	0.99910
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	0.22711	0.23394	0.26632	51.1	0.96756
		<b>50</b>	<b>7</b>	0.72424	0.71766	0.26341	4.30	0.99774
		<b>75</b>	<b>13</b>	1.02300	1.06851	0.16679	0.97	0.99974
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	0.54295	0.57431	0.36236	6.04	0.99714

Bölüm 9.2’de yer alan, Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerinin badem ve kestane kabukları ile giderimi için gerçekleştirilen tüm adsorpsiyon işlemlerinde, adsorpsiyonun Yalancı 2. Mertebe kinetik modeli ile ifade edilebileceği belirlenmiştir. Gerçekleştirilmiş olan adsorpsiyon deneyleri sonucunda en yüksek adsorpsiyon kapasitesi değeri kestane kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için 1.89901 mg/g olarak elde edilmiştir. Diğer adsorbentler ile gerçekleştirilen pestisit adsorpsiyonları için elde edilen maksimum adsorpsiyon kapasite değerleri ( $q_e$ ) ve bu değerlerin elde edildiği deneysel koşullar Çizelge 9.22’de ayrıca verilmiştir.

Çizelge 9. 22 Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerinin badem ve kestane kabukları ile adsorpsiyonu için maksimum denge adsorpsiyon kapasiteleri ve bu değerlerin elde edildiği deneysel koşullar

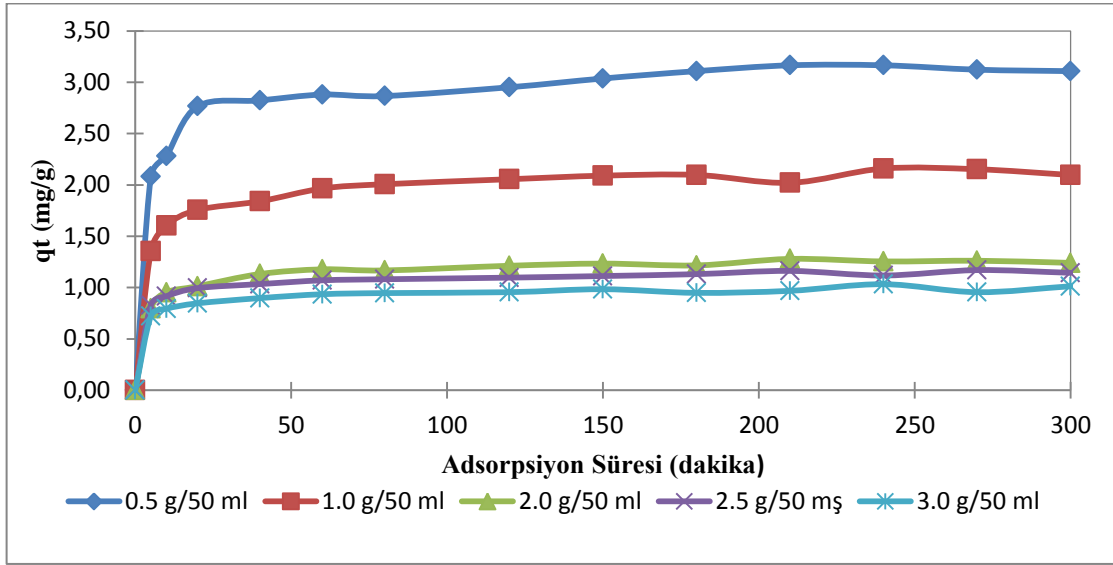
<b>Pestisit</b>	<b>Adsorbent</b>	<b>pH</b>	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Konsantrasyonu (mg/L)</b>	<b><math>q_e</math> (mg/g)</b>
<b>Bentazon</b>	<b>Badem Kabuğu</b>	2.0	1.0	50	1.48986
	<b>Kestane Kabuğu</b>	3.5	1.0	75	1.89901
<b>Metalaxyl</b>	<b>Badem Kabuğu</b>	3.5	1.0	75	0.68377
	<b>Kestane Kabuğu</b>	3.5	1.0	75	1.63031

### 9.3. Adsorpsiyon İzoterminin İncelenmesi

Çalışmanın bu bölümünde badem ve kestane kabuğu üzerine Bentazon ve Metalaxyl adsorpsiyonu için Box-Behnken deneysel tasarımı kullanılarak belirlenen optimum pH (2.00) ve pestisit konsantrasyonu (75 mg/L) değerlerinde farklı adsorbent konsantrasyonlarında (0.5, 1.0, 2.0, 2.5 ve 3.0 g/50 ml), 25 °C’de gerçekleştirilen adsorpsiyon deneyleri sonucunda elde edilen denge verilerinin Langmuir, Freundlich, BET ve Temkin izoterm modellerine uygunluğu araştırılmıştır.

### 9.3.1. Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için adsorpsiyon izoterminin incelenmesi

Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için farklı adsorbent konsantrasyonlarında gerçekleştirilen deneyler sonucunda zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri Şekil 9.65'de sunulmuştur. Deneylere ait denge verileri ayrıca Çizelge 9.23'de gösterilmiştir.



Şekil 9. 65 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için farklı adsorbent konsantrasyonlarında zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri

Çizelge 9. 23 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen denge verileri

Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)	q <sub>e</sub> (mg/g)	C <sub>e</sub> (mg/L)
0.5	3.10837	43.91630
1.0	2.09722	33.05560
2.0	1.25117	24.95325
2.5	1.14398	17.80100
3.0	1.01286	14.22870

Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen denge verileri kullanılarak gerçekleştirilen modelleme çalışmaları sonucunda, Langmuir, Freundlich, BET ve

Temkin izoterm modelleri için elde edilen denklem katsayıları ve istatistik değerler sırası ile Çizelge 9.24-9.27’de verilmiştir.

Çizelge 9. 24 Bentazon’un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Langmuir izoterm modeli sonuçları

Katsayılar	Değerler
$Q_{max}$ (mg/g)	10.76
$K_L$ (L/mg)	$6.81 \cdot 10^{-3}$
$R_L$	0.95468
S	0.11162
$R^2$	0.93886

Çizelge 9. 25 Bentazon’un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Freundlich izoterm modeli sonuçları

Katsayılar	Değerler
$K_F$ ( $mg^{1-1/n} \cdot L^{1/n} \cdot g^{-1}$ )	0.06525
n	1.00870
S	0.16402
$R^2$	0.95381

Çizelge 9. 26 Bentazon’un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için BET izoterm modeli sonuçları

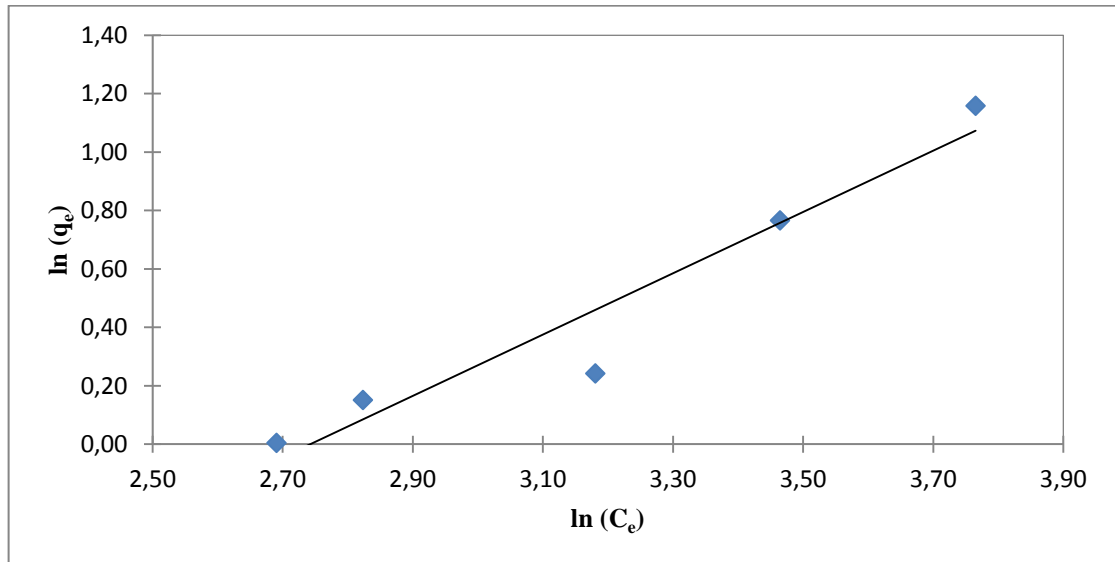
Katsayılar	Değerler
$Q_{max}$ (mg/g)	- 0.77917
$K_B$	0.98210
S	0.06896
$R^2$	0.98090

Çizelge 9. 27 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Temkin izoterm modeli sonuçları

Katsayılar	Değerler
<b>b (dm<sup>3</sup>/mg)</b>	7.23*10 <sup>-4</sup>
<b>A (L/g)</b>	0.10595
<b>S</b>	0.39368
<b>R<sup>2</sup></b>	0.92252

İzoterm modelleri için elde edilen veriler incelendiğinde, BET izoterm modeli için elde edilen regresyon katsayısı (R<sup>2</sup>) değerinin diğer izoterm modellerinden daha yüksek olduğu görülmektedir. Ancak, model için elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerinin negatif olması BET izoterm modelinin bu adsorpsiyon prosesi için uygun olmadığını göstermektedir.

Diğer izoterm modelleri için elde edilen veriler incelendiğinde badem kabukları ile Bentazon adsorpsiyonunun Freundlich izoterm modeline diğer modellerden daha yüksek oranda uyumluluk gösterdiği açıktır. Badem kabuklarıyla gerçekleştirilen Bentazon adsorpsiyonu için elde edilen denge verilerinin Freundlich izoterm modeline uygunluğu grafiksel olarak Şekil 9.66'da ayrıca gösterilmiştir.



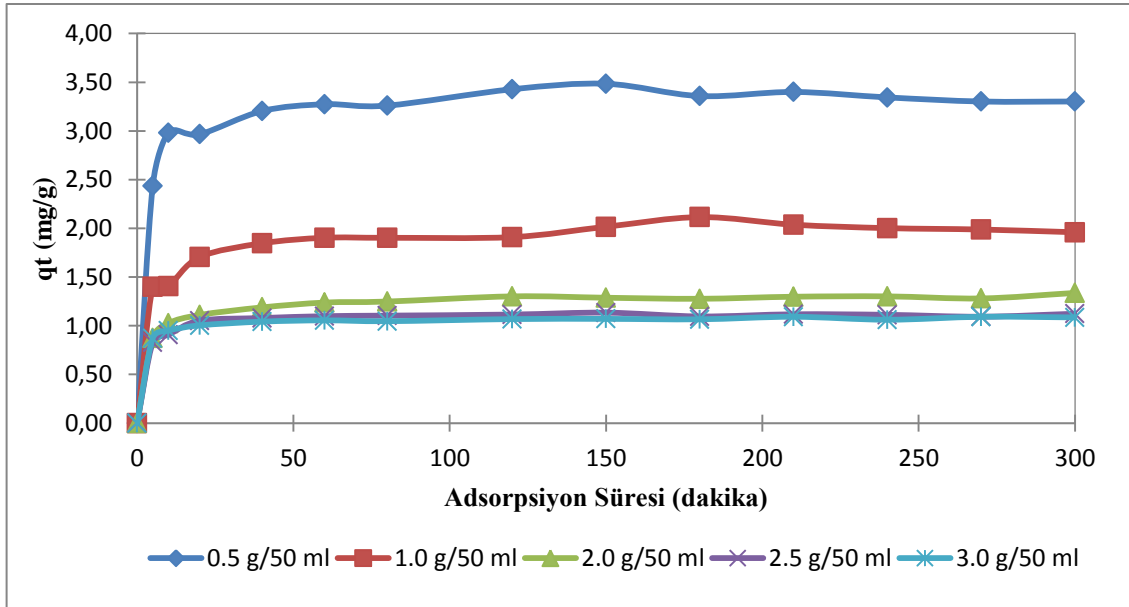
Şekil 9. 66 Bentazon'un badem kabukları ile adsorpsiyonu için Freundlich izotermi grafiği



Farklı badem kabuğu konsantrasyonlarında gerçekleştirilen Bentazon adsorpsiyonu deneyleri için zamana karşı elde edilen kinetik verilerin adsorpsiyon kinetiği modellerine uygunluğu ayrıca incelenmiş ve Bölüm 9.2.1’de elde edilen sonuçlara benzer şekilde adsorpsiyon kinetiğinin Yalancı 2. Mertebe Kinetik modeline uygunluk gösterdiği belirlenmiştir. Yalancı 2. Mertebe Kinetik model ve uygunluğu incelenen diğer kinetik modeller için elde edilen denklem sabitleri ve istatistiksel veriler Ekler bölümünde Çizelge EK-C.1-C.6’da verilmiştir.

### 9.3.2. Bentazon’un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için adsorpsiyon izoterminin incelenmesi

Bentazon’un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için farklı adsorbent konsantrasyonlarında gerçekleştirilen deneyler sonucunda zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri Şekil 9.67’de sunulmuştur. Deneylere ait denge verileri Çizelge 9.28’de ayrıca gösterilmiştir.



Şekil 9. 67 Bentazon’un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için farklı adsorbent konsantrasyonlarında zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri

Çizelge 9. 28 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen denge verileri

<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>	<b>C<sub>e</sub> (mg/L)</b>
<b>0.5</b>	3.30224	41.97760
<b>1.0</b>	1.98113	35.37740
<b>2.0</b>	1.30896	22.64150
<b>2.5</b>	1.10840	19.58025
<b>3.0</b>	1.08592	9.84460

Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen denge verileri kullanılarak gerçekleştirilen modelleme çalışmaları sonucunda, Langmuir, Freundlich, BET ve Temkin izoterm modelleri için elde edilen denklem katsayıları ve istatistik değerler sırası ile Çizelge 9.29-9.32'de verilmiştir.

Çizelge 9. 29 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Langmuir izoterm modeli sonuçları

<b>Katsayılar</b>	<b>Değerler</b>
<b>Q<sub>max</sub> (mg/g)</b>	2.89950
<b>K<sub>L</sub> (L/mg)</b>	0.05140
<b>R<sub>L</sub></b>	0.42927
<b>S</b>	0.11162
<b>R<sup>2</sup></b>	0.77691

Çizelge 9. 30 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Freundlich izoterm modeli sonuçları

<b>Katsayılar</b>	<b>Değerler</b>
<b>K<sub>F</sub> (mg<sup>1-1/n</sup>*L<sup>1/n</sup>*g<sup>-1</sup>)</b>	0.17167
<b>n</b>	1.40745
<b>S</b>	0.28454
<b>R<sup>2</sup></b>	0.85375

Çizelge 9. 31 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için BET izoterm modeli sonuçları

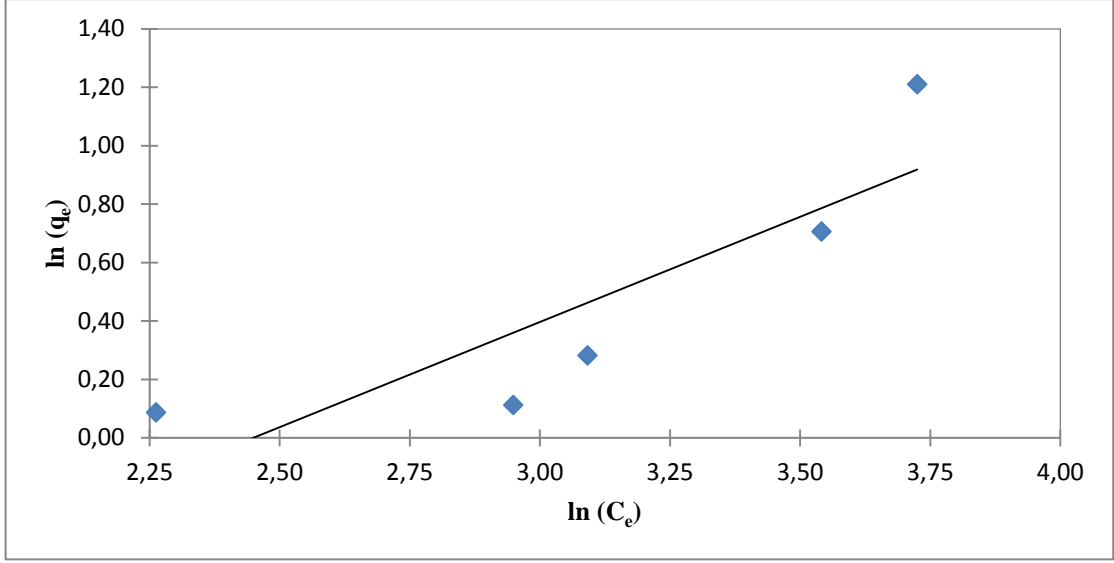
Katsayılar	Değerler
$Q_{max}$ (mg/g)	- 0.77324
$K_B$	0.98253
S	0.06670
$R^2$	0.98132

Çizelge 9. 32 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Temkin izoterm modeli sonuçları

Katsayılar	Değerler
B (dm <sup>3</sup> /mg)	5.33*10 <sup>-4</sup>
A (L/g)	0.16436
S	0.64717
$R^2$	0.80131

İzoterm modelleri için elde edilen veriler incelendiğinde, BET izoterm modelini için elde edilen regresyon katsayısı ( $R^2$ ) değerinin diğer izoterm modellerinden daha yüksek olduğu görülmektedir. Ancak, model için elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerinin negatif olması BET izoterm modelinin bu adsorpsiyon prosesi için uygun olmadığını göstermektedir.

Diğer modeller için elde edilen istatistiksel veriler karşılaştırıldığında Freundlich izoterm modelinin kestane kabuklarıyla Bentazon adsorpsiyonu için en uygun izoterm modeli olduğu açıkça görülmektedir. Elde edilen denge verilerinin Freundlich izoterm modeline uygunluğu grafiksel olarak Şekil 9.68'de ayrıca gösterilmiştir.

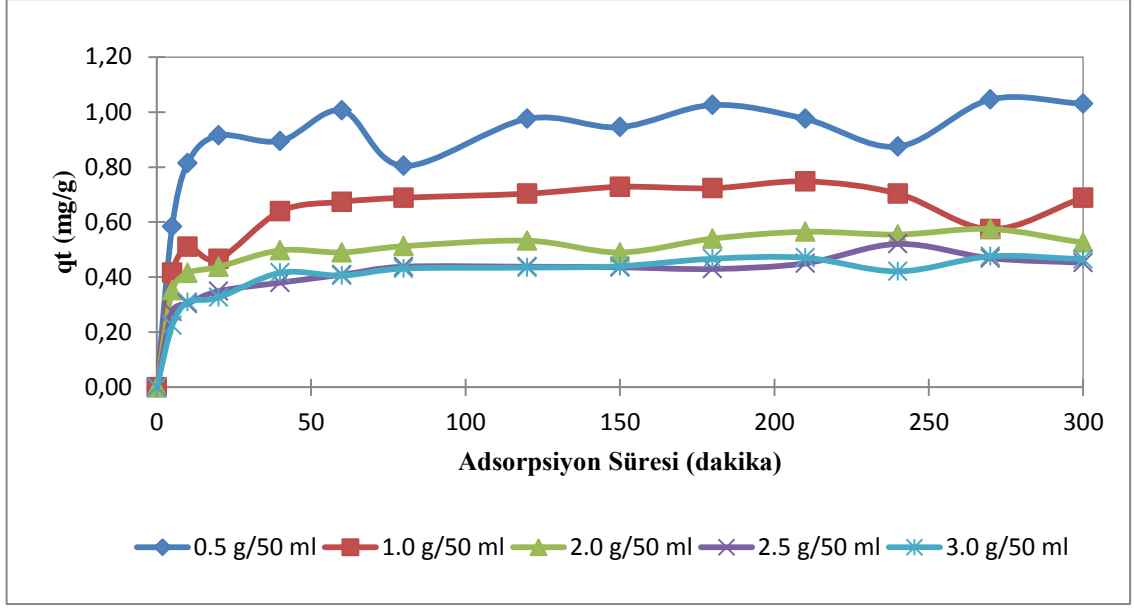


Şekil 9. 68 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Freundlich izoterm modeli grafiği

Farklı kestane kabuğu konsantrasyonlarında gerçekleştirilen Bentazon adsorpsiyonu deneyleri için zamana karşı elde edilen kinetik verilerin adsorpsiyon kinetiği modellerine uygunluğu ayrıca incelenmiş ve Bölüm 9.2.2'de elde edilen sonuçlara benzer şekilde adsorpsiyon kinetiğinin Yalancı 2. Mertebe Kinetik modeline uygunluk gösterdiği belirlenmiştir. Yalancı 2. Mertebe Kinetik model ve uygunluğu incelenen diğer kinetik modeller için elde edilen denklem sabitleri ve istatistiksel veriler Ekler bölümünde Çizelge EK-C.7-C.12'de verilmiştir.

### 9.3.3. Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için adsorpsiyon izoterminin incelenmesi

Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için farklı adsorbent konsantrasyonlarında gerçekleştirilen deneyler sonucunda zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri Şekil 9.69'da sunulmuştur. Deneylere ait denge verileri Çizelge 9.33'de ayrıca gösterilmiştir.



Şekil 9. 69 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için farklı adsorbent konsantrasyonlarında zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri

Çizelge 9. 33 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen denge verileri

Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)	$q_e$ (mg/g)	$C_e$ (mg/L)
0.5	1.18686	63.13140
1.0	0.68858	61.22850
2.0	0.55000	53.00000
2.5	0.45248	52.37600
3.0	0.46333	47.07880

Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen denge verileri kullanılarak gerçekleştirilen modelleme çalışmaları sonucunda, Langmuir, Freundlich, BET ve Temkin izoterm modelleri için elde edilen denklem katsayıları ve istatistik değerler sırası ile Çizelge 9.34-9.37'de verilmiştir.

Çizelge 9. 34 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Langmuir izoterm modeli sonuçları

<b>Katsayılar</b>	<b>Değerler</b>
<b>Q<sub>max</sub> (mg/g)</b>	- 0.41440
<b>K<sub>L</sub> (L/mg)</b>	- 0.01074
<b>R<sub>L</sub></b>	0.33970
<b>S</b>	0.30865
<b>R<sup>2</sup></b>	0.88053

Çizelge 9. 35 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Freundlich izoterm modeli sonuçları

<b>Katsayılar</b>	<b>Değerler</b>
<b>K<sub>F</sub> (mg<sup>1-1/n</sup>*L<sup>1/n</sup>*g<sup>-1</sup>)</b>	7.52*10 <sup>-6</sup>
<b>n</b>	0.35385
<b>S</b>	0.23196
<b>R<sup>2</sup></b>	0.86204

Çizelge 9. 36 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için BET izoterm modeli sonuçları

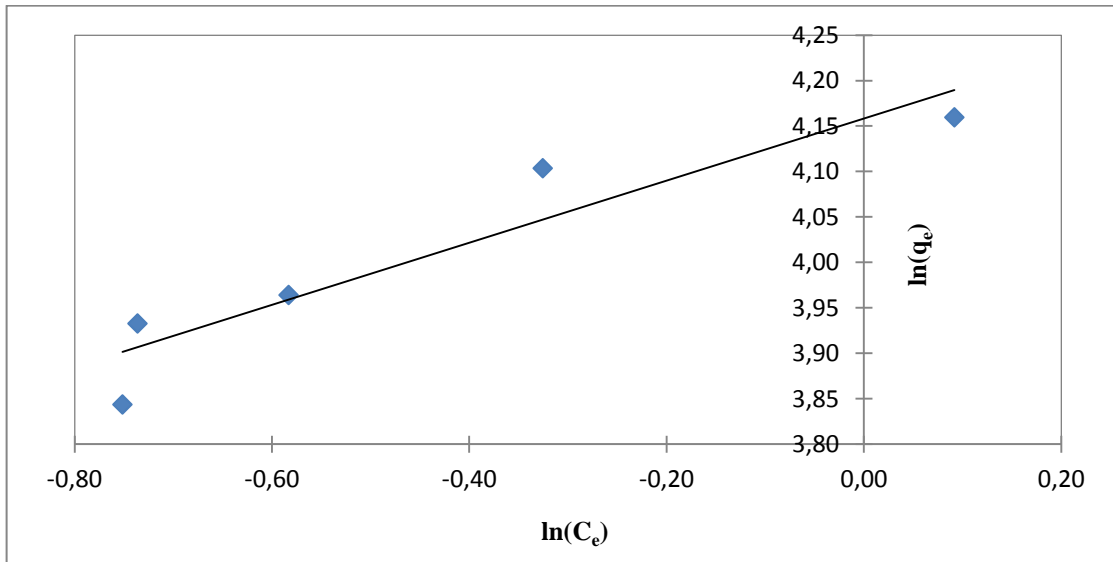
<b>Katsayılar</b>	<b>Değerler</b>
<b>Q<sub>max</sub> (mg/g)</b>	- 0.16920
<b>K<sub>B</sub></b>	0.98719
<b>S</b>	0.25821
<b>R<sup>2</sup></b>	0.92196

Çizelge 9. 37 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Temkin izoterm modeli sonuçları

Katsayılar	Değerler
<b>B (dm<sup>3</sup>/mg)</b>	8.29*10 <sup>-4</sup>
<b>A (L/g)</b>	0.02515
<b>S</b>	0.20337
<b>R<sup>2</sup></b>	0.81587

İzoterm modelleri için elde edilen veriler incelendiğinde, en yüksek regresyon katsayısı (R<sup>2</sup>) değerlerinin BET ve Langmuir izoterm modelleri için elde edildiği görülmektedir. Ancak, her iki model için elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerlerinin negatif olması BET ve Langmuir izoterm modellerinin bu adsorpsiyon prosesi için uygun olmadığını göstermektedir.

Freundlich ve Temkin izoterm modelleri için elde edilen istatistiksel veriler karşılaştırıldığında ise Freundlich izoterm modelinin kestane kabuklarıyla Bentazon adsorpsiyonu için daha uygun olduğu açıkça görülmektedir. Elde edilen denge verilerinin Freundlich izoterm modeline uygunluğu grafiksel olarak Şekil 9.70'de ayrıca gösterilmiştir.

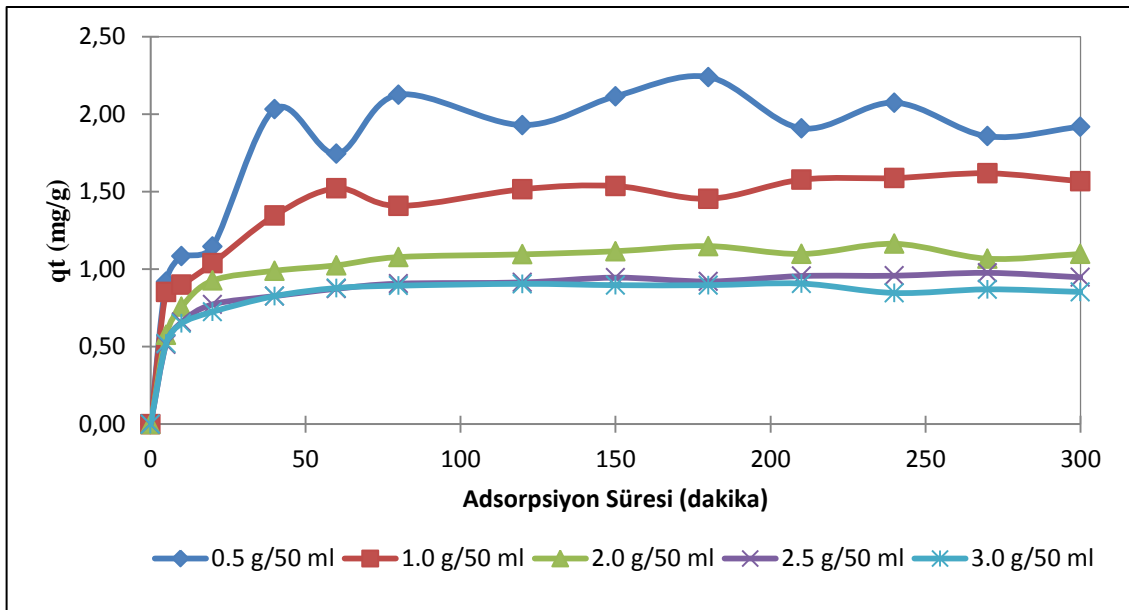


Şekil 9. 70 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Freundlich izoterm modeli grafiği

Farklı badem kabuğu konsantrasyonlarında gerçekleştirilen Metalaxyl adsorpsiyonu deneyleri için zamana karşı elde edilen kinetik verilerin adsorpsiyon kinetiği modellerine uygunluğu ayrıca incelenmiş ve Bölüm 9.2.3’de elde edilen sonuçlara benzer şekilde adsorpsiyon kinetiğinin Yalancı 2. Mertebe Kinetik modeline uygunluk gösterdiği belirlenmiştir. Yalancı 2. Mertebe Kinetik model ve uygunluğu incelenen diğer kinetik modeller için elde edilen denklem sabitleri ve istatistiksel veriler Ekler bölümünde Çizelge EK-C.13-C.18’de verilmiştir.

### 9.3.4. Metalaxyl’in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için adsorpsiyon izoterminin incelenmesi

Metalaxyl’in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için farklı adsorbent konsantrasyonlarında gerçekleştirilen deneyler sonucunda zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri Şekil 9.71’de sunulmuştur. Deneylere ait denge verileri Çizelge 9.38’de ayrıca gösterilmiştir.



Şekil 9. 71 Metalaxyl’in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için farklı adsorbent konsantrasyonlarında zamana karşı elde edilen adsorpsiyon kapasitesi değerleri



Çizelge 9. 38 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu sonucu elde edilen denge verileri

<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>	<b>C<sub>e</sub> (mg/L)</b>
<b>0.5</b>	1.91885	55.81150
<b>1.0</b>	1.56680	43.66440
<b>2.0</b>	1.09775	31.09020
<b>2.5</b>	0.96164	26.91780
<b>3.0</b>	0.88830	21.70260

Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için elde edilen denge verileri kullanılarak gerçekleştirilen modelleme çalışmaları sonucunda, Langmuir, Freundlich, BET ve Temkin izoterm modelleri için elde edilen denklem katsayıları ve istatistik değerler sırası ile Çizelge 9.39-9.42'de verilmiştir.

Çizelge 9. 39 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Langmuir izoterm modeli sonuçları

<b>Katsayılar</b>	<b>Değerler</b>
<b>Q<sub>max</sub> (mg/g)</b>	7.24665
<b>K<sub>L</sub> (L/mg)</b>	6.10*10 <sup>-3</sup>
<b>R<sub>L</sub></b>	0.94062
<b>S</b>	0.05655
<b>R<sup>2</sup></b>	0.98855

Çizelge 9. 40 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Freundlich izoterm modeli sonuçları

<b>Katsayılar</b>	<b>Değerler</b>
<b>K<sub>F</sub> (mg<sup>1-1/n</sup>*L<sup>1/n</sup>*g<sup>-1</sup>)</b>	0.05860
<b>n</b>	1.15654
<b>S</b>	0.05168
<b>R<sup>2</sup></b>	0.99076

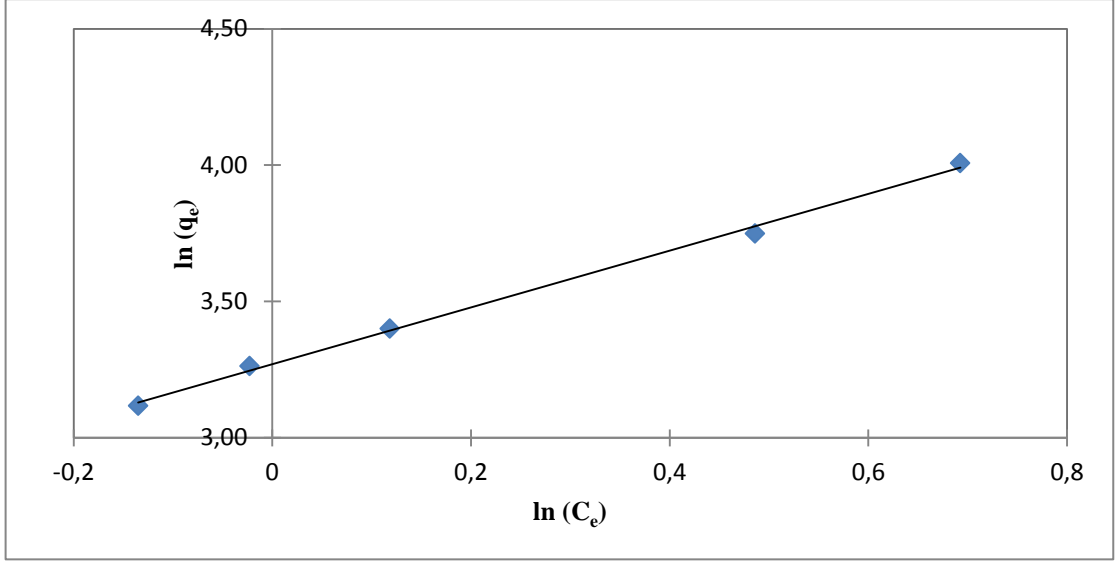
Çizelge 9. 41 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için BET izoterm modeli sonuçları

Katsayılar	Değerler
$Q_{max}$ (mg/g)	- 0.63861
$K_B$	0.98753
S	0.05560
$R^2$	0.98479

Çizelge 9. 42 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Temkin izoterm modeli sonuçları

Katsayılar	Değerler
B (dm <sup>3</sup> /mg)	4.62*10 <sup>-4</sup>
A (L/g)	0.09097
S	0.09698
$R^2$	0.98170

İzoterm modeller için elde edilen istatistiksel veriler incelendiğinde kestane kabuklarıyla Bentazon adsorpsiyonunun Freundlich izoterm modeline diğer modellerden daha yüksek oranda uyumluluk gösterdiği açıkça görülmektedir. Elde edilen denge verilerinin Freundlich izoterm modeline uygunluğu grafiksel olarak Şekil 9.72'de ayrıca gösterilmiştir.



Şekil 9. 72 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Freundlich izoterm modeli grafiği

Farklı kestane kabuğu konsantrasyonlarında gerçekleştirilen Metalaxyl adsorpsiyonu deneyleri için zamana karşı elde edilen kinetik verilerin adsorpsiyon kinetiği modellerine uygunluğu ayrıca incelenmiş ve Bölüm 9.4.4'de elde edilen sonuçlara benzer şekilde adsorpsiyon kinetiğinin Yalancı 2. Mertebe Kinetik modeline uygunluk gösterdiği belirlenmiştir. Yalancı 2. Mertebe Kinetik model ve uygunluğu incelenen diğer kinetik modeller için elde edilen denklem sabitleri ve istatistiksel veriler Ekler bölümünde Çizelge EK-C.19-C.24'de verilmiştir.

Bölüm 9.3'de gerçekleştirilmiş olan çalışmalar sonucunda Bentazon ve Metalaxyl'in badem ve kestane kabuğu ile adsorpsiyonlarının Freundlich izoterm modeli ile ifade edilebileceği belirlenmiştir. Elde edilen bu sonuçlar adsorpsiyon işleminde kullanılan adsorbanların yüzeyinde farklı adsorpsiyon noktalarının bulunduğunu, bu noktaların heterojen olarak dağıldığını ve adsorpsiyon işlemlerinin çok tabakalı gerçekleştiğini göstermektedir.

#### 9.4. Elde edilen sonuçların literatürde yer alan verilerle karşılaştırılması

Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerinin badem ve kestane kabukları ile adsorpsiyonu için elde edilen sonuçların, literatürde yer alan benzer çalışmalardan elde edilen veriler ile karşılaştırılması Çizelge 4.43'de sunulmuştur.

Çizelge 9. 43 Elde edilen sonuçların literatürde yer alan verilerle karşılaştırılması

Pestisit	Pestisit Derişimi	Adsorbent	Deneysel Koşullar	% Maks. Ads.	Freundlich Ads. İzoterm Katsayısı ( $K_F$ ) ( $\text{mg}^{1-1/n} \text{l}^{1/n} \text{g}^{-1}$ )	Kinetik Model	Maks. qe (mg/g)	Kaynak
Bentazon	75 mg/L	Badem Kabuğu	0.5-3.0 g/50ml adsorbent pH 2.00	80.347	0.05641	Yalancı 2. Merbete Kinetik	1.48986	Bu Çalışma
		Kestane Kabuğu		87.190	0.17140		1.89901	
Metalaxyl	75 mg/L	Badem Kabuğu	25 °C 300 dakika ads. süresi	37.752	$2.18 \cdot 10^{-5}$		0.77388	
		Kestane Kabuğu		69.900	0.04368		1.63031	
Carbofuran	10-100 mg/L	Kestane Kabuğu	4 g/L adsorbent 30 dakika ads. süresi pH 6.0 30 ± 2 °C	99 ± %1	4.72 ± 0.7	Yalancı 1. Merbete Kinetik	-	[9]
Metil Paration							7.78 ± 0.5	
Pentaklorofen ol	100 µg/L	Badem Kabuğu	0.10 – 100 g/L, adsorbent 24 saat ads. süresi, pH 2.0 30 °C	% 93 ± 0.14	0.075 ± 0.081	-	5.0 µg/g	[109]
Bentazon	25-250 mg/L	Hurma Çekirdeği Aktif Karbonu	1 g/L adsorbent pH 5.5 30 °C 36 saat (bentazon) 22 saat (carbofuran) ads. süresi	% 90 (25 mg/L) % 65 (250 mg/L)	0.01303	-	145 mg/g (25 mg/L) 15 mg/g (250 mg/L)	[111]
Metalaxyl	100, 200, 300 ve 400 mg/L	Lewatit OC 1163 Organik Polimer Reçine	0-100 g/L adsorbent 25 g/L optimum adsorbent pH 5.96-6.54, 4 saat ads. süresi	% 96 (100 mg/L) % 97 (200 mg/L) % 97.7 (300 mg/L) % 98.1 (400 mg/L)	0.269	-	-	[113]

Çizelge 9.43 Elde edilen sonuçların literatürde yer alan verilerle karşılaştırılması  
(devamı)

Pestisit	Pestisit Derişimi	Adsorbent	Deneysel Koşullar	% Maks. Ads.	Freundlich Ads. İzoterm Katsayısı $K_F$ ( $\text{mg}^{1-1/n} \text{g}^{1/n} \text{g}^{-1}$ )	Kinetik Model	Maks. $q_e$ (mg/g)	Kaynak
Bentazon	1, 10, 1000, 2500, 5000 mg/L	Söğüt Talaşı	pH 5.0-7.7 1:10 (katı/sıvı) oranında adsorbent 24 saat adsorpsiyon süresi 25 °C	-	0.00220	-	-	[112]
		Bahçe Atık Gübresi			0.00245			
		Kumlu Balçık Kili			0.00057			
		İnek Gübresi			0.00436			
		Torf Karışımı	pH 5.0-7.7 1:25 (katı/sıvı) oranında adsorbent 24 saat adsorpsiyon süresi 25 °C		0.00927			
		Saman			0.00254			
		H. Cevizi Talaşı			0.00708			
Metalaxyl	1, 10, 1000, 2500, 5000 mg/L	Söğüt Talaşı	pH 5.0-7.7 1:10 (katı/sıvı) oranında adsorbent 24 saat adsorpsiyon süresi 25 °C	-	0.00229	-	-	
		Bahçe Atık Gübresi			0.01659			
		Kumlu Balçık Kili			0.00691			
		İnek Gübresi			0.00425			
		Torf Karışımı	pH 5.0-7.7 1:25 (katı/sıvı) oranında adsorbent 24 saat adsorpsiyon süresi 25 °C		0.05883			
		Saman			0.00658			
		H. Cevizi Talaşı			0.01066			
Metalaxyl	200-800 mg/L	Mezafor Silika Nanoparç.	3.33 g/L adsorbent 25 ± 2 °C 24 saat adsorpsiyon süresi	% 14 (700 mg/L)	10 <sup>-5</sup>	-	-	[114]

Çizelge 9. 43. Elde edilen sonuçların literatürde yer alan verilerle karşılaştırılması (devamı)

Pestisit	Pestisit Derişimi	Adsorbent	Deneysel Koşullar	% Maks. Ads.	Fruendlich Ads. İzoterm Katsayısı ( $K_F$ ) ( $\text{mg}^{1-1/n} \text{l}^{1/n} \text{g}^{-1}$ )	Kinetik Model	Maks. $q_e$ (mg/g)	Kaynak
Metalaxyl	5, 10, 15, 20 ve 25 mg/L	Montmorillionite	5 g/L adsorbent, $20 \pm 2$ °C, 24 saat ads. süresi	-	1.27 ± 0.00	-	-	[115]
		İllite			2.49 ± 0.76			
		Kaolinite			0.05 ± 0.01			
		Muscovite			1.08 ± 1.10			
		Sepiolite			5.02 ± 3.00			
		Palygoskite			14.1 ± 6.74			
Metalaxyl	5, 10, 15, 20 ve 25 mg/L	OB-Montmorillionite	5 g/L adsorbent, $20 \pm 2$ °C, 24 saat ads. süresi	-	191 ± 6.00	-	-	
		OB-İllite			74.1 ± 1.86			
		OB-Kaolinite			2.12 ± 1.86			
		OB-Muscovite			-2.32 ± 4.67			
		OB-Sepiolite			25.2 ± 1.70			
		OB-Palygoskite			20.2 ± 9.40			

### SONUÇ VE ÖNERİLER

Dünya üzerinde pestisit üretimi ve tüketimi, artan insan nüfusu ve yiyecek ihtiyacıyla birlikte artmıştır. Artan pestisit üretimiyle birlikte, pestisit endüstrisi atık sularının bilinçsiz ve dikkatsiz şekilde çevreye salınımı sonucunda pestisitler doğal ve içme su kaynaklarına bulaşarak insanlar, hayvanlar ve bitkiler için büyük tehdit oluşturmaktadırlar. Dünyada, son yıllarda, çevre kirliliğinin büyük bir sorun haline gelmesi, artan küresel ısınma ile su kaynaklarının öneminin artması ve bu konularda artan toplum bilinci ile atık sulardan kirletici madde giderimi araştırmacıların ilgisini çeken ve üzerinde çok çalışılan bir konu haline gelmiştir.

Bu çalışmada, Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerinin sulu çözeltilerden giderimi için badem ve kestane kabuğu tarımsal atıklarının adsorbent olarak kullanılabilirliği incelenmiştir. Box-Behnken Deneysel Tasarım yöntemi uygulanarak, her bir pestisit ve adsorbent için, pH (2.0, 3.5 ve 5.0), adsorbent konsantrasyonu (1.0, 2.0 ve 3.0 g/50 ml), pestisit konsantrasyonu (25, 50 ve 75 mg/L) ve adsorpsiyon süresi (40, 80 ve 120 dakika) parametrelerinin adsorpsiyon üzerindeki etkileri incelenmiş ve prosesin optimizasyonu gerçekleştirilmiştir. Ayrıca adsorpsiyon kinetiğinin ve izotermünün belirlenebilmesi için deneysel çalışmalar yapılmış ve elde edilen verilerin literatürde yer alan kinetik ve izoterm modellerine uygunluğu incelenmiştir. Çalışmada elde edilen sonuçlar aşağıda kısaca özetlenmiştir:

- 1- Box-Behnken yöntemi ile gerçekleştirilmiş olan deneysel tasarım çalışmaları sonucunda Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerinin badem ve kestane kabukları ile giderimi için proses ekonomisi baz alınarak optimum proses parametreleri; pH

2.0, 3 g/50ml adsorbent konsantrasyonu ve 75 mg/L pestisit konsantrasyonu ve 40 dakika adsorpsiyon süresi olarak belirlenmiştir. Belirlenen optimum proses koşullarında badem ve kestane kabukları ile sırası ile % 70.336 ve % 85.092 Bentazon ve % 33.288 ve % 66.084 Metalaxyl giderimi sağlanmıştır.

- 2- Deneysel tasarım çalışmaları sonucunda herbir adsorpsiyon prosesi için proses parametrelerinin ve bu parametrelerin birbirleriyle etkileşimlerinin adsorpsiyon üzerindeki etkilerini gösteren aşağıdaki model denklemler elde edilmiştir.

***Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyon için:***

$$\% \text{ Ads} = + 155.652 - 63.159*A + 26.717*B - 0.652*C - 0.09396*D - 0.8833*A*B + 0.11267*A*C - 0.01708*A*D + 0.068*B*C - 0.015*B*D - 0.003025*C*D + 6.2426*A^2 - 5.03*B^2 + 0.00297*C^2 + 0.00269*D^2$$

***Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için:***

$$\% \text{ Ads} = + 188.784 - 61.345*A - 10.448*B - 1.3146*C + 0.0728*D - 0.8667*A*B + 0.02867*A*C + 0.04208*A*D + 0.1997*B*C - 0.05563*B*D + 0.00325*C*D + 6.419*A^2 + 3.452*B^2 + 0.0085*C^2 - 0.002935*D^2$$

***Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için:***

$$\% \text{ Ads} = - 0.10231 - 8.407*A + 16.65*B - 0.2317*C + 0.33188*D - 1.36667*A*B - 0.00067*A*C + 0.01833*A*D - 0.008*B*C - 0.02625*B*D - 0.00875*C*D + 1.224*A^2 - 0.15833*B^2 + 0.002493*C^2 - 0.00145*D^2$$

***Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için:***

$$\% \text{ Ads} = + 34.838 - 4.037*A + 11.80*B - 0.27033*C + 0.20896*D - 0.91667*A*B + 0.002*A*C - 0.01208*A*D + 0.066*B*C + 0.00625*B*D + 0.000225*C*D + 0.8537*A^2 - 0.1542*B^2 + 0.000493*C^2 - 0.00068*D^2$$

(A: pH, B: Adsorbent konsantrasyonu (g/50 ml), C: Pestisit konsantrasyonu (mg/L) D: Adsorpsiyon süresi (dakika) )

- 3- Gerçekleştirilen kinetik çalışmalar sonucunda elde edilen kinetik verilerin literatürde sıklıkla kullanılan; 1. Mertebe, 2. Mertebe, Yalancı 1. Mertebe, Yalancı 2. Mertebe, Elovich ve Partikül İçi Difüzyon kinetik modellerine uygunluğu incelenmiş ve Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerinin badem ve kestane kabukları ile adsorpsiyon kinetiğinin Yalancı 2.Mertebe kinetik modeli ile ifade edilebileceği belirlenmiştir. Ayrıca gerçekleştirilen deneysel çalışmalar



sonucunda maksimum adsorpsiyon kapasitesi deęerleri badem ve kestane kabukları ile Bentazon adsorpsiyonu için sırasıyla 1.48986 ve 1.89901 mg/g; Metalaxyl adsorpsiyonu için sırası ile 0.77388 ve 1.63031 mg/g olarak bulunmuştur.

- 4- Badem ve kestane kabuęu üzerine Bentazon ve Metalaxyl adsorpsiyonu için Box-Behnken deneysel tasarımı kullanılarak belirlenen optimum pH (2.00) ve pestisit konsantrasyonu (75 mg/L) deęerlerinde farklı adsorbent konsantrasyonlarında (0.5, 1.0, 2.0, 2.5 ve 3.0 g/50 ml), 25 °C'de geręekleştiren adsorpsiyon deneyleri sonucunda elde edilen denge verilerinin Langmuir, Freundlich, BET ve Temkin izoterm modellerine uygunluęu araştırılmıştır. Geręekleştirilmiş olan adsorpsiyon izotermi modelleme çalışmaları sonucunda elde edilen denklem katsayıları ve istatistiksel veriler göz önünde bulundurulduğunda, Bentazon ve Metalaxyl'in badem ve kestane kabuęu ile adsorpsiyonlarının Freundlich izoterm modeli ile ifade edilebileceęi belirlenmiştir. Freundlich izoterm sabiti deęerleri badem ve kestane kabukları ile Bentazon adsorpsiyonu için sırasıyla 0.06525 ve 0.17167 ( $\text{mg}^{1-1/n} \cdot \text{L}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ ); Metalaxyl adsorpsiyonu için sırası ile  $7.52 \cdot 10^{-6}$  ve 0.05860 ( $\text{mg}^{1-1/n} \cdot \text{L}^{1/n} \cdot \text{g}^{-1}$ ) olarak bulunmuştur.
- 5- Badem ve kestane kabuęu üzerine Bentazon ve Metalaxyl adsorpsiyonu için elde edilen sonuçlar karşılaştırıldığında kestane kabuęu ile adsorpsiyon proseslerinden elde edilen % giderim deęerlerinin, badem kabuęu ile adsorpsiyon proseslerinden elde edilen % giderim deęerlerinden daha yüksek olduęu görölmüştür. Ayrıca, badem ve kestane kabuęu ile Bentazon arasındaki affinitenin yüksek olduęu, Metalaxyl'in kestane kabuęu ile affinitesinin yüksek, badem kabuęu ile affinitesinin düşük olduęu sonucuna varılmıştır.
- 6- Optimizasyon, adsorpsiyon kinetięi ve adsorpsiyon izotermi çalışmaları sonucunda elde edilen sonuçlar literatürde yer alan benzer çalışmalardan elde edilen sonuçlar ile karşılaştırılmış ve kestane ve badem kabuęunun Bentazon ve Metalaxyl adsorpsiyonu için elverişli olduęu görölmüştür.

Çalışmadan elde edilen tüm bu sonuçlar; tarımsal atık olan badem ve kestane kabuklarının ucuz, kolay ulaşılabılır ve etkili adsorbentler olarak pestisit adsorpsiyonu için gelecek vaad ettięini ve atık su arıtımı için kullanılabileceęini göstermiştir.

**Bundan sonra gerekleřtirilecek olan alıřmalarda;**

- Tarımsal atık olan badem ve kestane kabukları ile insan ve evreye zararlı olan, atık su bünyelerine bulařmış diđer pestisitlerin veya toksik bileřiklerin sulu özeltiilerden giderimi arařtırılabilir.
- Farklı tarımsal atıklar ile Bentazon ve Metalaxyl pestisitlerinin sulu özeltiilerden giderimi alıřılabilir.
- Adsorpsiyon kapasitesini artırmak için badem ve kestane kabuklarına farklı ön işlemler uygulanarak, adsorpsiyon verimi incelenebilir.
- Sıcaklık, alkalama hızı vb. gibi farklı deneysel parametrelerin adsorpsiyon üzerine olan etkileri incelenebilir.
- Kesikli adsorpsiyon prosesine ek olarak adsorpsiyon kolonu gibi sürekli prosesler kullanılarak pestisit giderimi incelenebilir.

## KAYNAKLAR

---

- [1] Delen, N., (2008). Fungisitler, Nobel Yayın Dağıtım, Nobel Yayın No: 1360, Ankara.
- [2] Forget G., (1993). Balancing the Need for Pesticides with the Risk to Human Health. In: Impact of Pesticide Use on Health in Developing Countries, Eds. Forget G, Goodman T and de Villiers A IDRC, Ottawa: 2.
- [3] Igbedioh SO., (1991). “Effects of Agricultural Pesticides on Humans, Animals and Higher Plants in Developing Countries”, Arch Environ Health, 46: 218.
- [4] Jeyaratnam J., (1985). “Health Problems of Pesticide Usage in the Third World”, B M J 42:505.
- [5] WHO, (1990). Public Health Impact of Pesticides Used in Agriculture, World Health Organization, Geneva: 88.
- [6] Çalı, İ. Ö., (2007). “Domates (*Lycopersicon esculentum* Mill.) Bitkisinde Metalaxyl’in Stomalar Üzerine Etkisi”. Cumhuriyet Üniversitesi, Fen-Edebiyat Fakültesi, Fen Bilimleri Dergisi, 28(1):28-39.
- [7] Sürek, H., (2000). Rice Cultural Practice in Turkey, Thrace Agricultural Research Institute, Edirne.
- [8] Durmuşoğlu, E., Tiryaki, O. ve Canhilal R., “Türkiye’de Pestisit Kullanımı, Kalıntı ve Dayanıklılık Sorunları”, VII. Türkiye Ziraat Mühendisliği Teknik Kongresi, TMMOB Ziraat Mühendisleri Odası, Ankara, Bildiriler Kitabı 2:589-607, 11-15 Ocak 2010.
- [9] Memon, G. Z., Bhanger, M. I. ve Akhtar, M., (2007). “The Removal Efficiency of Chestnut Shells for Selected Pesticides from Aqueous Solutions”, Journal of colloid and interface science, 315(1):33-40.
- [10] Küden, A. B. ve Küden, A., (2000). Badem Yetiştiriciliği. TÜBİTAK-TARP Yayınları, 18.
- [11] Kestane Yetiştiriciliği, Bahçecilik, T.C. Milli Eğitim Bakanlığı, Ankara, 2013, [http://www.megep.meb.gov.tr/mte\\_program\\_modul/moduller\\_pdf/kestane%20yeti%C5%9Ftiricili%C4%9Fi.pdf](http://www.megep.meb.gov.tr/mte_program_modul/moduller_pdf/kestane%20yeti%C5%9Ftiricili%C4%9Fi.pdf), 10 Temmuz 2015.
- [12] Chestnut and Almond, Statistic Division, Food And Agriculture Organization of the United Nations, <http://faostat3.fao.org>, 10 Temmuz 2015.

- [13] Savaşkan, M., Taptık, Y. ve Ürgen, M., (2004). “Deney Tasarımı Yöntemi ile Matkap Uçlarında Performans Optimizasyonu”, İTÜ Mühendislik Dergisi, 3(6):117-128.
- [14] Şanyılmaz, M., (2006). Deney Tasarımı ve Kalite Geliştirme Faaliyetlerinde Taguchi Yöntemi ile Bir Uygulama, Fen Bilimleri Enstitüsü, Endüstri Mühendisliği Anabilim Dalı, Yüksek Lisans Tezi, Dumlupınar Üniversitesi, Kütahya.
- [15] Tiryaki, O., Canhilal, R. ve Horuz, S., (2010). “Tarım İlaçları Kullanımı ve Riskleri”, Erciyes Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi, 26(2):154-169.
- [16] Karakaya, M. ve Boyraz, N. (1992). “Gıda Kirlenmesinde Pestisitler ve Korunma Yolları”, Ekoloji Çevre Dergisi, 1(4):11-15.
- [17] Hening, J. C., Davis, A. C. ve Robinson, W. B. (1954). “Flavor and Color Evaluation of Canning Crops Grown on Soil Treated with Insecticides”, Food Technology, 8(5):227-229.
- [18] Öncüer C., Tarımsal Zararlılarla Savaş Yöntemleri ve İlaçları, İzmir, 1995.
- [19] Toros, S., Tarımsal Savaş Yöntemi ve İlaçları, Ankara, 1999.
- [20] Burçak, A., A., İlaç, Alet ve Toksikoloji Çalışma Grubu, TAGEM Sunumu, Bitki Sağlığı Araştırmaları Daire Başkanlığı, T.C. Gıda, Tarım ve Hayvancılık Bakanlığı,  
[https://www.tarim.gov.tr/TAGEM/Belgeler/SUNULAR/%C4%B0la%C3%A7,%20Alet%20ve%20Toksikoloji%20Ara%C5%9Ft%C4%B1rma%20%C3%87al%C4%B1%C5%9Fmalar%C4%B1\\_Dr.%20A.Alev%20Bur%C3%A7ak.pdf](https://www.tarim.gov.tr/TAGEM/Belgeler/SUNULAR/%C4%B0la%C3%A7,%20Alet%20ve%20Toksikoloji%20Ara%C5%9Ft%C4%B1rma%20%C3%87al%C4%B1%C5%9Fmalar%C4%B1_Dr.%20A.Alev%20Bur%C3%A7ak.pdf), 13 Temmuz 2015.
- [21] TMMBO Ziraat Mühendisleri Odası (2014), Dünyada ve Türkiye’de Pestisit Kullanımı Konferansı, Adana,  
[http://www.zmo.org.tr/genel/bizden\\_detay.php?kod=22979&tipi=2&sube=2](http://www.zmo.org.tr/genel/bizden_detay.php?kod=22979&tipi=2&sube=2), 13 Temmuz 2015.
- [22] Pesticide Usage, Statistic Division, Food and Agriculture Organization Of The United Nations,  
<http://faostat3.fao.org>, 16 Temmuz 2015.
- [23] Türkiye İstatistik Kurumu, Konularına Göre İstatistikler, Tarım, Bitkisel Üretim İstatistikleri, Tarımsal İlaç İstatistikleri, Tarımsal İlaç Kullanımı,  
[www.tuik.gov.tr](http://www.tuik.gov.tr), 16 Temmuz 2015.
- [24] Turabi, M.S., (2007) “Bitki Koruma Ürünlerinin Ruhsatlandırılması”, Tarım İlaçları Kongre ve Sergisi, TMMOB Zir. Müh Odası ve TMMOB Kimya Müh Odası, Bildiriler Kitabı, 50-61.
- [25] Dağ, S., (2000). “Türkiye’de Tarım İlaçları Endüstrisi ve Geleceği”, V. Türkiye Ziraat Mühendisliği Teknik Kongresi Bildirileri, 2. Cilt, TMMOB Ziraat Mühendisleri Odası, Ankara, 933-958.
- [26] Yılmaz, A., İnci, A., Tunçbilek, A.Ş., Yeşilöz, H., Koçak, O., Şirin, Ü., İça, A., Yıldırım, A., Demircioğlu, A. ve Düzlü, Ö., (2007). “Orta Kızılırmak Havzasında Simulium (Wilhelmia) lineatum (Diptera: Simuliidae) İstilasası”, Erciyes Üniversitesi Veteriner Fakültesi Dergisi, 4 (2):91-96.

- [27] Balıkesir Belediyesi,  
<http://balikesir.bel.tr/haberler/sivrisinek-ve-karasinekle-mucadele-basariyla-tamamlandi>, 22 Temmuz 2015.
- [28] Burhaniye Belediyesi,  
<http://www.burhaniye.bel.tr/haberler/haber-arsivi/384-sivrisinek-ile-mucadele-devam-ediyor.html>, 22 Temmuz 2015.
- [29] Environews Forum, (1999). Killer Environment, Environ Health Perspect, 107: A62
- [30] Aktar, W., Sengupta, D. ve Chowdhury, A., (2009). “Impact of Pesticides Use in Agriculture: Their Benefits and Hazards”, Interdisciplinary Toxicology, 2(1): 1-12.
- [31] Tiryaki, O. ve Baysoyu, D., (2007) “The Use of Radiotracer Techniques for QA/QC Principles in Pesticide Residue Analysis”, Ziraat Fakültesi, Ankara Üniversitesi, Tarım Bilimleri Dergisi 13 (2): 108-113.
- [32] U.S. Geological Survey. (1999). The Quality of Our Nation’s Waters Nutrients and Pesticides, Circular 1225. Reston VA: USGS,  
<http://water.usgs.gov/pubs/circ/circ1225/>, 23 Temmuz 2015.
- [33] US EPA., (2000). Reregistration Eligibility Science Chapter for Chlorpyrifos. Fate and Environmental Risk Assessment Chapter(Revised June),  
<http://www.epa.gov/pesticides/op/chlorpyrifos/efedrra1.pdf>, 23 Temmuz 2015.
- [34] U.S. EPA., Office of Prevention, Pesticides, and Toxic Substances, (1996). Reregistration Eligibility Decision (RED): Trifluralin, Washington, D.C., April.
- [35] Koyama J. (1996). “Vertebral Deformity Susceptibilities of Marine Fishes Exposed to Herbicide”, Bull Environ Contam Toxicol 56: 655–662.
- [36] Tanabe S., Gondaira F., Subramanian AN., Ramesh A., Mohan D., Kumaran P., Venugopalan V., K. ve Tatsukawa R., (1990). “Specific Pattern of Persistent Organochlorine Residues in Human Breast Milk from South India”, J. Agric Food Chem 38: 899–903.
- [37] Ambrosi D., Isensee A. ve Macchia J., (1978). “Distribution of Oxadiazon and Phoslone in an Aquatic Model Ecosystem”, American Chem Soci 26(1): 50–53.
- [38] U.S. Water News Online, (2000). Ecologist Says Effect of Herbicides on Aquatic Environment Needs Research,  
<http://www.uswaternews.com/archives/arcquality/tecosay7.html>, 1 Ağustos 2015.
- [39] Asteraki E., J., Hanks C., B. ve Clements R., O., (1992). “The Impact of the Chemical Removal of the Hedge-Based Flora on the Community Structure of Carabid Beetles (Col. Carabidae) and Spiders (Araneae) of the Field and Hedge Bottom”, J. Appl Ent 113: 398–406.

- [40] MacKinnon D., S. ve Freedman B., (1993). "Effects of Silvicultural Use of The Herbicide Glyphosate on Breeding Birds of Regenerating Clearcuts in Nova Scotia, Canada", *J. Appl Ecol* 30(3): 395–406.
- [41] Tiryaki, O. ve Temur, C., (2010). "The Fate of Pesticide in the Environment", *J. Biol. Environ. Sci*, 4(10): 29-38.
- [42] Güneş, Y. ve Talınlı, İ., (2010). "Pestisit Endüstrisi Zararlı Atıklarının Arıtılmasında İnhibisyon", *İTÜDERGİSİ/e*, 17(2).
- [43] Pesticides and Herbicides in Water,  
<http://imgarcade.com/1/pesticides-and-herbicides-in-water>, 3 Ağustos 2015.
- [44] Alexeeff, G. V., (1999). "Public Health Goal for Bentazon in Drinking Water".
- [45] WHO, (2004). "Bentazone in Drinking-water", Background Document for Development of WHO Guidelines for Drinking-water Quality.
- [46] United States Environmental Protection Agency (EPA) (1994), Reregistration Eligibility Decision, Bentazon, EPA 738-R-94-029.
- [47] Unger, T., A., (1996). "Pesticide Synthesis Handbook", William Andrew.
- [48] Omri, A., Wali, A. ve Benzina, M., (2012). "Adsorption of Bentazon on Activated Carbon Prepared from Lawsonia Inermis Wood: Equilibrium, Kinetic and Thermodynamic Studies", *Arabian Journal of Chemistry*.
- [49] Bentazon, Pesticide Information Profile, Pesticide Management Education Program, Extension Toxicology Network, Cornell University, Cooperative Extension,  
<http://pmep.cce.cornell.edu/profiles/extoxnet/24d-captan/bentazon-ext.html>, 4 Ağustos 2015.
- [50] Hofmann, H., Th., (1973). "Acute Oral Toxicity of 3-Isopropyl-1H-2,1,3-Benzothiadiazin-4(3H)-One2,2-dioxide to the Rat", Unpublished Report of BASF Medizinisch-Biologische Forschungslaboratorien Gewerbehygiene und Toxicologie, Submitted to WHO by BASF, Limburgerhof, Germany. (Cited in WHO/IPCS, 1992, 29).
- [51] Hartley, D. ve Kidds, H., (1987). "The Agrochemicals Handbook" 2nd ed. Lechworth, Herts, England: The Royal Society of Chemistry, (A):034.
- [52] Hildebrand, B. ve Kirsch P., (1982). "Report on the Study of the Acute Oral Toxicity in Rats of Reg. No. 51,929 - Bentazone, dated June 21, 1983", Unpublished Report of BASF Aktiengesellschaft, Crop Protection Division, Submitted to WHO by BASF, Limburgerhof, Germany. (Cited in WHO/IPCS, 1992, 29).
- [53] Toyoshima, S., Satoh, R., Satoh, K. ve Suzuki, N., (1978b). "Acute Oral, Subcutaneous and Intraperitoneal Toxicity Studies of Bentazone Acid in the Rat", Unpublished Report from the School of Medicine, Keio University, Japan, and the Japanese Experimental Medicine Institute, Submitted to WHO by BASF, Limburgerhof, Germany (cited in WHO/IPCS, 1992, 29).

- [54] Zeller, H. ve Birnstiel, H., (1969). "Acute Oral Toxicity of 3-isopropyl-1H-2,1,3-benzothiadiazin4(3H)-one-2,2-dioxide (Technical Grade) in Rabbits", Unpublished Report of BASF Gewerbe Hygienisch-Pharmacologisches Institut, Submitted to WHO by BASF, Limburgerhof, Germany. (Cited by Hartley and Kidds, 1987).
- [55] Zeller, H. ve Magoley, J., (1970). "Acute Oral Toxicity of 3-isopropyl-1H-2,1,3-benzothiadiazin4(3H)-one-2,2-dioxide to Cats", Unpublished Report of BASF Medizinisch-Biologische Forschungslaboratorien, Gewerbehygiene und Toxicologie. [Cited by Hartley and Kidds, 1987)].
- [56] Spencer, E.Y., (1982). "Guide to the Chemicals Used in Crop Protectio.", 7th ed. Publication 1093. Research Institute Agriculture, Ottawa, Canada, 38.
- [57] Toyoshima, S., Satoh, R., Satoh, K. ve Suzuki, N., (1978a). "Acute Oral, Subcutaneous and Intraperitoneal Toxicity Studies of Bentazone Acid in the Mouse", Unpublished Report from the School of Medicine, Keio University, Japan, and the Japanese Experimental Medicine Institute, Submitted to WHO by BASF, Limburgerhof, Germany (Cited in WHO/IPCS, 1992, 29).
- [58] Kirsch, P. ve Hildebrand, B., (1983). "Report on the Study of the Acute Intraperitoneal Toxicity in Rats of Reg. No. 51,929 – Bentazone", August 17, 1983. Unpublished Report of BASF Aktiengesellschaft, Crop Protection Division, submitted to WHO by BASF, Limburgerhof, Germany. (Cited in WHO/IPCS, 1992, 29)
- [59] EPA (1998). "Toxicological Review of Bentazon", In Support of Summary of the Integrated Risk Information System (IRIS).Wagner S.C., R.M. Zablutowicz, L.A. Gaston, M.A. Locke, and Kinsella (1996) Bentazon degradation in soil: Influence of tillage and history of bentazon application. J. Agr. Food Chem. 44: 1593-1598.
- [60] BASF AG, W. Germany (1986). "Statement on Select Toxicological Findings of the Herbicidal Active Ingredient – Bentazon", Department of Pesticide Regulation, Sacramento.
- [61] Metalaxyl, Pesticide Properties DataBase, University of Hertfordshire, <http://sitem.herts.ac.uk/aeru/ppdb/en/Reports/444.htm>, 10 Ađustos 2015.
- [62] Pesticide Residues in Food, Joint FAO/WHO Meeting on Pesticide Residues, 2002, <http://www.inchem.org/documents/jmpr/jmpmono/2002pr09.htm>, 10 Ađustos 2015.
- [63] Gerhartz, W., "Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry". 5th ed.Vol A1: Deerfield Beach, FL: VCH Publishers, 1985 to Present., p. VA12 100 (1989), <http://pubchem.ncbi.nlm.nih.gov/compound/metalaxyl>, 11 Ađustos 2015.
- [64] United States Environmental Protection Agency (EPA), (1994). Reregistration Eligibility Decision, Metalaxyl, EPA 738-R-94-013.

- [65] Metalaxyl, Pesticide Information Profile, Pesticide Management Education Program, Extension Toxicology Network, Cornell University, Cooperative Extension,  
<http://sitem.herts.ac.uk/aeru/ppdb/en/Reports/444.htm>, 12 Agustus 2015.
- [66] United States Environmental Protection Agency (EPA), (1990). Summary of State and Federal Drinking Water Standarts and Guidelines, EPA 570/R-90-019.
- [67] Metalaxyl, Hazardous Substances Data Bank, Toxicology Data Network, US. National Library of Medicine,  
<http://toxnet.nlm.nih.gov/cgi-bin/sis/search2/r?dbs+hsdb:@term+@DOCNO+7061>, 12 Agustus 2015.
- [68] Tan, L. S., (2007). “Nanofiltration Treatment for Pesticides Removal: A Case Study for Atrazine and Dimethoate” [SB951. T161 2007 frb] (Doctoral dissertation, Universiti Sains Malaysia).
- [69] Water Research Center, Ozonation In Water Treatment, (2012), <http://www.waterresearch.net/ozone.htm>, 14 Agustus 2015.
- [70] Southern Methodist University, (2012), Ozone,  
<http://smu.edu/catco/research/ozone-36.html>, 14 Agustus 2015.
- [71] United States Environmental Protection Agency, Perozone, 1999.
- [72] Reddy, P., V., L. ve Kim, K., H., (2015). “A Review of Photochemical Approaches for the Treatment of a Wide Range of Pesticides”, *Journal of Hazardous Materials*, 285: 325-335.
- [73] Hofman C., H., M., Caris, C., H., M. ve Harmsen, D., J., H. (2010). “Degradation of Priority Compounds by UV and UV Oxidation”, D 2.4.1.2b; Techneau.
- [74] Devipriya, S., ve Yesodharan, S., (2005). “Photocatalytic Degradation of Pesticide Contaminants in Water”. *Solar Energy Materials & Solar Cells*, (86): 309-348.
- [75] Pirkanniemi, K., ve Sillanpaa, M., (2002). “Heterogeneous Water Phase Catalysis as an Environmental Application: A Review”, *Chemosphere* (48): 1047–1060.
- [76] Daneshvar, N., Salari, D. ve Khataee, A.R., (2003). “Photocatalytic Degradation of Azo Dye Acid Red 14 in Water: Investigation of the Effect of Operational Parameters”, *J. Photochem. Photobiol. A* 157: 111–116.
- [77] Umar, M. ve Aziz, H., A., (2013). “Photocatalytic Degradation of Organic Pollutants in Water”, INTECH Open Access Publisher.
- [78] Singh B., K. ve Walker A., (2006). “Microbial Degradation of Organophosphorus Compounds”. *FEMS Microbiol. Rev.*, 30 (3): 428–471.
- [79] Vidali M., (2001). “Bioremediation, an Overview”, *Pure Appl. Chem.*, 73(7): 1163–1172.



- [80] Singleton I., (2004). "Microbial Metabolism of Xenobiotics: Fundamental and Applied Research", *Journal of Chemical Technology and Biotechnology*, DOI:10.1002/jctb. 280590104.
- [81] Blackburn J., W. ve Hafker W., R., (1993). "The Impact of Biochemistry, Bioavailability and Bioactivity on the Selection of Bioremediation Technologies, *Trends in Biotechnology*", 11(8): 328-333.
- [82] Dua M., Singh A., Sethunathan N. ve Johri A., K., (2002). "Biotechnology and Bioremediation: Successes and Limitations", *Appl Microbiol Biotechnol.* 59:143-152.
- [83] Ortiz-Hernández, M. L., Sánchez-Salinas, E., Dantán-González, E. ve Castrejón-Godínez, M. L. (2013). "Pesticide Biodegradation: Mechanisms, Genetics and Strategies to Enhance the Process", *Biodegradation-Life Science*, Intech-publishing, Rijeka, Croatia, 251-287.
- [84] Abraham W., R., Nogales B., Golyshin P., N., Pieper D., H. ve Timmis K., N., (2002). "Polychlorinated Biphenyl-degrading Microbial Communities and Sediments", *Curr Opin Microbiol* (5):246–253.
- [85] Briceño G., Palma G. ve Duran N., (2007). "Influence of Organic Amendment on the Biodegradation and Movement of Pesticides", *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, (37):233-271.
- [86] Diez M., C., (2010). "Biological aspects involved in the degradation of organic pollutants", *J. Soil. Sci. Plant. Nutr.*, 10(3): 244–267.
- [87] Bass C. ve Field L., M., (2011). "Gene Amplification and Insecticide Resistance", *Pest Management Science*, 67(8): 886–890.
- [88] Scott C., Pandey G., Hartley C., J., Jackson C., J., Cheesman M., J., Taylor M., C., Pandey R., Khurana J., L., Teese M., Coppin C., W., Weir K., M., Jain R., K., Lal R., Russell R., J. ve Oakeshott J., G., (2008). "The Enzymatic Basis for Pesticide Bioremediation", *Indian J. Microbiol*, (48): 65-79.
- [89] Ramakrishnan B., Megharaj M., Venkateswarlu K., Sethunathan N. ve Naidu R., (2011). "Mixtures of Environmental Pollutants: Effects on Microorganisms and Their Activities in Soils Reviews of Environmental Contamination and Toxicology", (211): 63-120.
- [90] Musbah, I., Ciceron, D., Saboni, A. ve Alexandrova, S., (2013). "Retention of Pesticides and Metabolites by Nanofiltration by Effects of Size and Dipole Moment", *Desalination*, (313): 51-56.
- [91] Pradeep, T., Anshup ve Bootharaju M.S., (2014). "Detection and Extraction of Pesticides from Drinking Water Using Nanotechnologies", *Nanotechnology Applications for Clean Water: Solutions for Improving Water Quality*, (16): 241-270.
- [92] Savcı, S., (2010). Veteriner ve Beşeri Amaçlı Kullanılan Bazı Farmasötiklerin Canlı Aktif Çamur Tarafından Adsorpsiyonunun incelenmesi, Doktora Tezi, Çukurova Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Adana.
- [93] Salman, J. M. ve Hameed, B. H. (2010). "Effect of Preparation Conditions of Oil Palm Fronds Activated Carbon on Adsorption of Bentazon from Aqueous Solutions", *Journal of Hazardous Materials*, 175(1):133-137.

- [94] Miah, M.A., (2009). An Experimental Investigation on Heavy Metal Adsorption onto Dye-Loaded Zeolite Y, Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Anabilim Dalı, Doktora Tezi, Hacettepe Üniversitesi, Ankara.
- [95] Bakırcıoğlu, D., (2004). Piriñ Kabuđu ve Külü Üzerinde Bazı Eser Elementlerin Adsorpsiyonun ve Desorpsiyonun İncelenmesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Anabilim Dalı, Yüksek Lisans Tezi, Trakya Üniversitesi, Edirne.
- [96] Avcı, A., (2014). Çeşitli Adsorban Maddelerle İlaç Aktif Madde Adsorpsiyonunun İncelenmesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Mühendisliđi Anabilim Dalı, Temel İşlemler ve Termodinamik Programı, Yüksek Lisans Tezi, İstanbul Üniversitesi, İstanbul.
- [97] Türkyılmaz, A., (2011). Bazı Bitkisel Atıklardan Aktif Karbon Eldesi ve Yüzey Özellikleri, Fen Bilimleri Endüstrisi, Kimya Anabilim Dalı, Doktora Tezi, Balıkesir Üniversitesi, Balıkesir.
- [98] Akçay, D., (2011). Kitosan/Kil Kompozitin Hazırlanması ve Sulu Çözeltilerden Pestisit Adsorpsiyonu İçin Kullanılması, Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Anabilim Dalı, Doktora Tezi, İstanbul Üniversitesi, İstanbul.
- [99] Özdemir, Ö., (2007). Modifiye Edilmiş Zeolit Yataklı Reaktörde Tekstil Endüstrisi Boyahane Atıksularından Renk Gideriminin Araştırılması, Fen Bilimleri Enstitüsü, Çevre Mühendisliđi Anabilim Dalı, Doktora Tezi, İstanbul Teknik Üniversitesi, İstanbul.
- [100] Yoshizuka, K., Lou, Z. ve Inoue, K., (2000). "Silver-complexed Chitosan Microparticles for Pesticide Removal", *Reactive and Functional Polymers*, 44(1): 47-54.
- [101] Fomina, M. ve Gadd, G., M., (2014). "Biosorption: Current Perspectives on Concept, Definition and Application", *Bioresource Technology*, (160): 3-14.
- [102] Aksu, Z., (2005). "Application of Biosorption for the Removal of Organic Pollutants: A Review." *Process Biochemistry*, 40(3): 997-1026.
- [103] Dođan, N., (2005). Ağır Metal Gideriminde Tarımsal Atık Kullanımı, Fen Bilimleri Enstitüsü, Biyoloji Anabilim Dalı, Yüksek Lisans Tezi, İnönü Üniversitesi, Malatya.
- [104] Erkurt, F. E., (2015). "Reaktif Black 5 Boyar Maddesinin Aktif Karbon Üzerine Adsorpsiyonunun Kinetik ve Adsorpsiyon Modelleri Kullanılarak İncelenmesi", *Çukurova Üniversitesi, Mühendislik Mimarlık Fakültesi Dergisi*, 30(1): 257-269.
- [105] Gökçe, B. ve Taşgetiren, S., (2009). "Kalite için Deney Tasarımı", *Makine Teknolojileri Elektronik Dergisi*, 6(1): 71-83.
- [106] Eren, İ., (2006). Patateslerin Osmotik Dehidrasyonunun Response Surface Metodu Kullanılarak Optimizasyonu, Fen Bilimleri Enstitüsü, Gıda Mühendisliđi Anabilim Dalı, Yüksek Lisans Tezi, Ege Üniversitesi, İzmir.
- [107] Özler, C., (1997). Cevap Yüzeyi Yöntemlerinin Süreç İyileştirme Amacı ile Kullanılması Üzerine Bir Araştırma, Sosyal Bilimler Enstitüsü, Ekonometri Anabilim Dalı, Doktora Tezi, Dokuz Eylül Üniversitesi, İzmir.

- [108] Baş, C., (2010). Cevap Yüzeyi Tasarımları ve Sinir Ağları Yaklaşımı, Fen Bilimleri Enstitüsü, İstatistik Anabilim Dalı, Doktora Tezi, Ankara Üniversitesi, Ankara.
- [109] Estevinho, B. N., Ratola, N., Alves, A. ve Santos, L. (2006). "Pentachlorophenol Removal from Aqueous Matrices by Sorption with Almond Shell Residues", *Journal of Hazardous Materials*, 137(2): 1175-1181.
- [110] Salman, J., M. ve Mohammed, M., J., (2013). "Batch Study for Herbicide Bentazon Adsorption onto Branches of Pomegranates Trees Activated Carbon", *Desalination and Water Treatment*, 51(25-27): 5005-5008.
- [111] Salman, J. M., Njoku, V. O. ve Hameed, B. H. (2011). "Bentazon and Carbofuran Adsorption onto Date Seed Activated Carbon: Kinetics and Equilibrium", *Chemical Engineering Journal*, 173(2): 361-368.
- [112] De Wilde, Tineke, (2009). "Sorption Characteristics of Pesticides on Matrix Substrates Used in Biopurification Systems", *Chemosphere*, 75(1): 100-108.
- [113] Vergili, I., H. ve Barlas, H., (2009). "Removal of 2, 4-D, MCPA and Metalaxyl from Water Using Lewatit VP OC 1163 as Sorbent", *Desalination*, 249(3): 1107-1114.
- [114] Wanyika, H. (2013). "Sustained Release of Fungicide Metalaxyl by Mesoporous Silica Nanospheres", *Journal of Nanoparticle Research*, 15(8):1-9.
- [115] Sanchez-Martin, M. J., (2006). "Efficiency of Different Clay Minerals Modified with a Cationic Surfactant in the Adsorption of Pesticides: Influence of Clay Type and Pesticide Hydrophobicity", *Applied Clay Science*, 31(3): 216-228.
- [116] Gondar, D., López, R., Antelo, J., Fiol, S. ve Arce, F., (2013). "Effect of Organic Matter and pH on the Adsorption of Metalaxyl and Penconazole by Soils", *Journal of Hazardous Materials*, (260): 627-633.
- [117] Salman, J. M., Njoku, V. O. ve Hameed, B. H. (2011). "Adsorption of Pesticides from Aqueous Solution onto Banana Stalk Activated Carbon", *Chemical Engineering Journal*, 174(1): 41-48.
- [118] Hamilton, D. J., Ambrus, A., Dieterle, R. M., Felsot, A. S., Harris, C. A., Holland, P. T. ve Wong, S. S. (2003). "Regulatory Limits for Pesticide Residues in Water (IUPAC Technical Report)", *Pure and Applied Chemistry*, 75(8): 1123-1155.

## **OPTİMİZASYON VERİLERİ**

Çizelge EK-A.1’de Bentazon’un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 tarafından önerilen ekonomik bazlı optimum proses koşullarına, Çizelge EK-A.2’de Bentazon’un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 tarafından önerilen optimum proses koşullarına; Çizelge EK-A.3’de Bentazon’un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 tarafından önerilen ekonomik bazlı optimum koşullarına, Çizelge EK-A.4’de Bentazon’un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 tarafından önerilen optimum proses koşullarına ait veriler sunulmuştur.

Çizelge EK-A.5’de Metalaxyl’in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 tarafından önerilen ekonomik bazlı optimum proses koşullarına, Çizelge EK-A.6 Metalaxyl’in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 tarafından önerilen optimum proses koşullarına; Çizelge EK-A.7’de Metalaxyl’in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 tarafından önerilen ekonomik bazlı optimum koşullarına, Çizelge EK-A.8’de Metalaxyl’in adsorpsiyonunda kestane kabuğu için Design Expert 9.0 tarafından önerilen optimum proses koşullarına ait veriler sunulmuştur.

Çizelge EK-A. 1 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 programı tarafından ekonomik bazda önerilen diğer optimum proses koşulları

Optimum Koşul	pH	Adsorbent Kons. (g/50 ml)	Pestisit Kons. (mg/L)	Ads. Süresi (dak.)	% Ads.	İstenilirlik	
1	2.000	3.000	75.000	40.069	72.184	1.000	Seçildi
2	2.000	2.991	74.996	40.000	72.204	0.945	
3	2.000	2.976	75.000	40.000	72.209	0.943	
4	2.000	3.000	75.000	40.781	72.051	0.943	
5	2.018	3.000	75.000	40.043	71.593	0.942	
6	2.001	2.979	74.666	40.000	72.138	0.942	
7	2.000	2.958	75.000	40.000	72.216	0.942	
8	2.021	2.983	75.000	40.000	71.521	0.940	
9	2.000	3.000	74.998	41.563	71.916	0.940	
10	2.000	3.000	73.742	40.000	72.076	0.940	
11	2.000	2.936	75.000	40.000	72.226	0.939	
12	2.001	2.924	74.997	40.000	72.207	0.938	
13	2.000	2.997	73.252	40.000	72.033	0.937	
14	2.000	2.937	75.000	40.783	72.080	0.937	
15	2.049	3.000	74.761	40.000	70.580	0.936	
16	2.001	2.899	75.000	40.028	72.192	0.935	
17	2.000	3.000	72.490	40.000	71.963	0.934	
18	2.000	3.000	75.000	43.349	71.612	0.934	
19	2.004	2.974	73.065	40.000	71.907	0.934	
20	2.002	2.873	75.000	40.000	72.151	0.932	
21	2.000	3.000	75.000	43.855	71.528	0.932	
22	2.000	3.000	72.682	40.941	71.815	0.932	
23	2.077	2.995	74.979	40.000	69.707	0.932	
24	2.000	3.000	75.000	44.399	71.425	0.930	
25	2.091	3.000	75.000	40.007	69.252	0.930	
26	2.087	2.981	75.000	40.003	69.378	0.929	
27	2.000	2.868	75.000	41.129	72.005	0.928	
28	2.000	3.000	71.558	41.211	71.677	0.926	
29	2.000	2.940	71.762	40.002	71.939	0.925	
30	2.119	3.000	75.000	40.001	68.354	0.925	

Çizelge EK-A. 2 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 programı tarafından önerilen optimum proses koşulları

<b>Optimum Koşul</b>	<b>pH</b>	<b>Adsorbent Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Ads. Süresi (dak.)</b>	<b>% Ads.</b>	<b>İstenilirlik</b>
1	2.060	2.606	29.694	118.684	85.470	1.000
2	2.027	2.211	25.808	114.085	86.415	1.000
3	2.000	2.911	38.291	116.930	83.088	1.000
4	2.020	2.916	32.584	119.712	85.417	1.000
5	2.005	2.708	32.355	110.661	83.536	1.000
6	2.040	2.782	29.004	113.555	84.317	1.000
7	2.007	2.476	28.918	108.422	84.235	1.000
8	2.023	2.814	28.399	108.834	83.516	1.000
9	2.041	1.628	25.784	119.033	84.544	1.000
10	2.028	2.227	28.170	112.681	84.836	1.000
11	2.018	1.710	26.465	118.571	85.539	1.000
12	2.031	1.900	25.654	112.172	84.268	1.000
13	2.006	2.172	25.065	101.036	83.001	1.000
14	2.008	2.042	25.589	104.413	83.260	1.000
15	2.007	2.759	25.014	102.577	83.628	1.000
16	2.016	2.684	30.487	110.714	83.878	1.000
17	2.082	2.915	25.336	114.215	83.916	1.000
18	2.013	1.607	25.676	118.259	85.183	1.000
19	2.044	2.316	34.257	119.140	84.145	1.000
20	2.001	2.131	25.318	115.694	88.017	1.000
21	2.019	2.992	31.465	118.671	85.196	1.000
22	2.002	2.979	40.861	119.716	82.809	1.000
23	2.019	2.043	35.769	119.975	83.786	1.000
24	2.014	2.218	25.232	117.751	88.616	1.000
25	2.083	2.492	30.572	118.333	84.135	1.000
26	2.001	2.997	28.013	105.844	82.836	1.000
27	2.000	2.650	26.977	102.130	83.206	1.000
28	2.014	2.974	36.972	119.902	83.844	1.000
29	2.011	2.102	38.808	119.301	82.836	1.000

Çizelge EK-A. 3 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 programı tarafından ekonomik bazda önerilen diğer optimum proses koşulları

Optimum Koşul	pH	Adsorbent Kons. (g/50 ml)	Pestisit Kons. (mg/L)	Ads. Süresi (dak.)	% Ads.	İstenilirlik	
1	2.018	3.000	75.000	40.069	84.483	1.000	Seçildi
2	2.075	3.000	74.999	40.000	82.558	1.000	
3	2.027	3.000	75.000	40.000	84.156	1.000	
4	2.012	3.000	75.000	40.002	84.677	1.000	
5	2.135	3.000	74.999	40.001	80.556	1.000	
6	2.120	3.000	75.000	40.006	81.043	1.000	
7	2.099	3.000	74.995	40.000	81.742	1.000	
8	2.060	3.000	75.000	40.000	83.048	1.000	
9	2.196	3.000	75.000	40.187	78.600	0.999	
10	2.091	3.000	75.000	40.506	82.024	0.999	
11	2.174	3.000	75.000	40.602	79.306	0.998	
12	2.186	3.000	74.531	40.006	78.600	0.998	
13	2.028	2.980	75.000	40.000	83.722	0.998	
14	2.191	2.982	74.965	40.000	78.355	0.997	
15	2.059	2.960	75.000	40.000	82.244	0.996	
16	2.163	2.958	74.999	40.000	78.785	0.995	
17	2.196	3.000	75.000	41.780	78.600	0.995	
18	2.196	3.000	75.000	42.322	78.600	0.994	
19	2.000	2.993	73.684	40.000	84.117	0.994	
20	2.000	2.939	75.000	40.000	83.817	0.993	
21	2.154	2.936	74.999	40.000	78.601	0.993	
22	2.001	3.000	74.915	42.640	84.968	0.992	
23	2.000	2.931	75.000	40.000	83.637	0.992	
24	2.127	2.919	75.000	40.000	79.140	0.991	
25	2.196	3.000	75.000	43.947	78.600	0.989	
26	2.145	3.000	72.377	40.072	78.602	0.988	
27	2.000	2.999	75.000	44.331	85.024	0.988	
28	2.137	3.000	71.919	40.065	78.600	0.986	
29	2.147	2.925	75.000	42.447	78.600	0.985	
30	2.049	2.997	71.617	40.000	81.303	0.985	

Çizelge EK-A. 4 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 programı tarafından önerilen optimum proses koşulları

<b>Optimum Koşul</b>	<b>pH</b>	<b>Adsorbent Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Ads. Süresi (dak.)</b>	<b>% Ads.</b>	<b>İstenilirlik</b>
1	2.031	2.978	67.687	71.951	78.808	1.000
2	2.006	2.906	69.965	42.143	80.027	1.000
3	2.005	2.941	70.439	117.901	78.683	1.000
4	2.005	2.990	68.874	65.007	80.724	1.000
5	2.021	2.736	74.940	51.652	79.013	1.000
6	2.014	2.889	74.721	72.827	81.726	1.000
7	2.003	2.998	65.898	88.329	78.634	1.000
8	2.042	2.886	74.072	117.826	78.852	1.000
9	2.002	2.978	64.354	51.292	78.628	1.000
10	2.001	2.797	72.575	42.852	79.483	1.000
11	2.030	2.914	73.169	107.436	79.579	1.000
12	2.174	3.000	74.783	40.060	79.146	1.000
13	2.040	2.998	68.678	87.761	78.887	1.000
14	2.003	2.997	64.476	43.118	79.130	1.000
15	2.002	2.834	72.865	73.259	79.988	1.000
16	2.001	2.770	73.623	98.012	78.769	1.000
17	2.042	2.990	67.403	57.454	78.874	1.000
18	2.090	2.992	74.727	68.842	81.313	1.000
19	2.059	2.989	73.528	104.723	80.300	1.000
20	2.010	2.729	74.633	66.878	78.996	1.000
21	2.000	3.000	63.217	49.524	78.632	1.000
22	2.065	2.992	70.678	87.469	79.131	1.000
23	2.031	2.897	73.121	113.823	78.948	1.000
24	2.034	2.963	70.890	78.337	79.998	1.000
25	2.016	2.942	69.218	47.300	79.947	1.000
26	2.031	2.993	68.455	74.201	79.426	1.000
27	2.006	2.824	72.754	51.374	79.894	1.000
28	2.043	2.995	68.682	81.973	78.951	1.000
29	2.056	2.975	74.240	108.995	80.399	1.000



Çizelge EK-A. 5 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 programı tarafından ekonomik bazda önerilen diğer optimum proses koşulları

Optimum Koşul	pH	Adsorbent Kons. (g/50 ml)	Pestisit Kons. (mg/L)	Ads. Süresi (dak.)	% Ads.	İstenilirlik	
1	2.003	3.000	75.000	40.000	36.382	1.000	Seçildi
2	2.000	3.000	75.000	40.497	36.453	0.944	
3	2.000	3.000	74.483	40.000	36.504	0.944	
4	2.000	3.000	73.946	40.000	36.611	0.943	
5	2.001	3.000	73.949	40.356	36.641	0.943	
6	2.000	3.000	73.575	40.000	36.682	0.943	
7	2.000	3.000	73.299	40.002	36.738	0.942	
8	2.021	3.000	75.000	40.000	36.253	0.942	
9	2.000	3.000	75.000	42.116	36.622	0.942	
10	2.000	3.000	72.911	40.001	36.812	0.942	
11	2.000	2.988	74.818	40.005	36.304	0.941	
12	2.000	2.987	75.000	40.003	36.258	0.941	
13	2.000	3.000	72.247	40.006	36.938	0.941	
14	2.000	3.000	74.978	43.436	36.759	0.941	
15	2.038	3.000	74.997	40.000	36.139	0.940	
16	2.002	3.000	75.000	43.765	36.775	0.940	
17	2.051	3.000	75.000	40.000	36.050	0.939	
18	2.000	3.000	70.729	40.002	37.220	0.938	
19	2.000	3.000	70.508	40.000	37.256	0.938	
20	2.070	3.000	75.000	40.006	35.921	0.937	
21	2.001	2.974	74.962	40.001	36.105	0.937	
22	2.000	3.000	70.229	40.000	37.309	0.937	
23	2.000	3.000	75.000	46.126	37.005	0.937	
24	2.000	3.000	69.799	40.000	37.387	0.936	
25	2.022	2.975	74.999	40.001	35.967	0.935	
26	2.000	3.000	69.061	40.000	37.516	0.935	
27	2.005	2.966	75.000	40.007	35.981	0.935	
28	2.097	3.000	75.000	40.001	35.737	0.935	
29	2.000	3.000	73.529	47.048	37.392	0.934	
30	2.000	3.000	74.982	49.075	37.265	0.932	

Çizelge EK-A. 6 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 programı tarafından önerilen optimum proses koşulları

Optimum Koşul	pH	Adsorbent Kons. (g/50 ml)	Pestisit Kons. (mg/L)	Ads. Süresi (dak.)	% Ads.	İstenilirlik
1	2.062	2.943	57.229	101.739	40.405	1.000
2	2.054	2.978	33.273	60.344	42.267	1.000
3	2.244	2.921	25.663	101.815	42.029	1.000
4	2.001	2.996	60.311	56.955	40.420	1.000
5	2.133	2.868	37.494	109.643	41.279	1.000
6	2.168	2.884	40.479	85.977	41.550	1.000
7	2.000	3.000	50.000	80.000	42.788	1.000
8	2.001	2.902	55.964	81.082	41.009	1.000
9	2.041	2.840	26.746	67.845	41.429	1.000
10	2.048	2.991	28.262	98.488	43.812	1.000
11	2.222	2.956	34.973	78.801	42.115	1.000
12	2.040	2.979	62.459	84.383	40.527	1.000
13	2.026	2.896	28.336	53.010	40.776	1.000
14	2.293	2.893	26.016	91.341	41.570	1.000
15	2.021	2.795	32.904	76.685	41.558	1.000
16	2.076	2.949	46.373	87.962	42.233	1.000
17	2.362	2.955	31.043	99.122	41.707	1.000
18	2.094	2.949	43.966	63.228	41.499	1.000
19	2.344	2.839	30.872	103.672	40.587	1.000
20	2.374	2.968	28.651	112.380	41.389	1.000
21	2.067	2.930	27.678	102.867	42.999	1.000
22	2.055	2.789	25.947	96.354	41.777	1.000
23	2.456	2.925	35.672	79.335	40.560	1.000
24	2.173	2.939	45.069	76.911	41.535	1.000
25	2.320	2.983	40.699	119.749	40.443	1.000
26	2.030	2.923	27.014	79.000	43.022	1.000
27	2.494	2.911	28.011	107.721	40.553	1.000
28	2.216	2.780	26.149	78.700	40.442	1.000
29	2.426	2.983	26.019	119.799	40.913	1.000

Çizelge EK-A. 7 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 programı tarafından ekonomik bazda önerilen diğer optimum proses koşulları

Optimum Koşul	pH	Adsorbent Kons. (g/50 ml)	Pestisit Kons. (mg/L)	Ads. Süresi (dak.)	% Ads.	İstenilirlik	
1	2.009	3.000	75.000	40.000	64.033	1.000	Seçildi
2	2.059	3.000	75.000	40.005	63.853	0.946	
3	2.072	3.000	75.000	40.000	63.803	0.946	
4	2.000	3.000	75.000	41.810	64.364	0.945	
5	2.023	3.000	75.000	41.648	64.255	0.945	
6	2.004	3.000	75.000	42.112	64.397	0.945	
7	2.106	3.000	75.000	40.000	63.683	0.945	
8	2.117	3.000	75.000	40.000	63.643	0.944	
9	2.157	3.000	75.000	40.000	63.506	0.943	
10	2.180	3.000	75.000	40.002	63.428	0.942	
11	2.193	3.000	74.992	40.000	63.384	0.942	
12	2.216	3.000	75.000	40.001	63.305	0.941	
13	2.315	3.000	74.999	40.000	62.985	0.938	
14	2.000	3.000	73.020	40.001	64.035	0.938	
15	2.000	3.000	72.731	40.001	64.036	0.937	
16	2.000	3.000	74.860	46.466	65.108	0.937	
17	2.378	3.000	74.993	40.001	62.787	0.936	
18	2.391	2.999	75.000	40.032	62.743	0.936	
19	2.000	3.000	74.997	47.351	65.249	0.936	
20	2.415	3.000	74.996	40.000	62.677	0.936	
21	2.000	2.994	75.000	46.944	65.095	0.935	
22	2.425	3.000	74.999	40.319	62.699	0.935	
23	2.000	3.000	74.999	47.959	65.342	0.934	
24	2.000	3.000	74.997	48.451	65.418	0.933	
25	2.540	3.000	75.000	40.325	62.365	0.932	
26	2.567	3.000	75.000	40.000	62.240	0.931	
27	2.401	3.000	74.025	40.001	62.703	0.931	
28	2.000	2.998	71.430	40.000	63.994	0.930	
29	2.000	3.000	74.999	50.799	65.778	0.929	
30	2.702	3.000	74.982	49.075	61.883	0.932	

Çizelge EK-A. 8 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Design Expert 9.0 programı tarafından önerilen optimum proses koşulları

<b>Optimum Koşul</b>	<b>pH</b>	<b>Adsorbent Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Ads. Süresi (dak.)</b>	<b>% Ads.</b>	<b>İstenilirlik</b>
1	2.144	2.964	33.666	114.622	71.094	1.000
2	2.017	2.951	58.985	99.169	70.434	1.000
3	2.073	2.989	48.381	96.427	70.410	1.000
4	2.029	2.986	26.582	91.521	70.401	1.000
5	2.367	2.984	62.336	117.658	70.688	1.000
6	2.001	3.000	40.685	103.969	71.455	1.000
7	2.114	2.931	27.628	108.951	70.630	1.000
8	2.186	2.988	30.580	104.818	70.664	1.000
9	2.104	2.983	66.948	104.797	71.045	1.000
10	2.012	2.900	34.819	108.068	70.528	1.000
11	2.012	2.999	45.499	95.298	70.714	1.000
12	2.010	2.994	41.430	97.630	70.867	1.000
13	2.251	2.996	66.091	107.543	70.792	1.000
14	2.048	2.995	26.537	93.319	70.569	1.000
15	2.104	2.983	33.052	104.797	70.921	1.000
16	2.062	2.954	31.647	116.017	71.453	1.000
17	2.262	2.987	42.818	108.869	70.482	1.000
18	2.066	2.967	51.977	103.778	70.743	1.000
19	2.536	2.996	72.247	119.277	70.530	1.000
20	2.078	2.936	48.067	108.785	70.623	1.000
21	2.144	2.976	27.156	118.749	71.536	1.000
22	2.035	2.995	70.166	107.889	71.814	1.000
23	2.043	2.988	68.146	117.464	72.255	1.000
24	2.014	2.995	32.537	99.804	71.112	1.000
25	2.047	2.983	31.123	102.433	71.040	1.000
26	2.076	2.999	40.586	119.478	72.030	1.000
27	2.561	2.999	72.042	119.568	70.489	1.000
28	2.026	2.998	70.248	93.470	70.725	1.000
29	2.205	2.992	40.782	113.863	71.082	1.000

---

**ADSORPSİYON KİNETİĞİ MODELLERİNE AİT VERİLER**

Çizelge EK-B.1, Çizelge EK-B.2, Çizelge EK-B.3, Çizelge EK-B.4 ve Çizelge EK-B.5’de sırasıyla, Bentazon’un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için 1. Mertebe Kinetik, 2. Mertebe Kinetik, Yalancı 1. Mertebe Kinetik, Elovich Kinetik ve Partikül İçi Difüzyon Kinetik modelleri için elde edilen model sabitleri ve istatistiksel veriler sunulmuştur.

Çizelge EK-B.6, Çizelge EK-B.7, Çizelge EK-B.8, Çizelge EK-B.9 ve Çizelge EK-B.10’da sırasıyla, Bentazon’un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için 1. Mertebe Kinetik, 2. Mertebe Kinetik, Yalancı 1. Mertebe Kinetik, Elovich Kinetik ve Partikül İçi Difüzyon Kinetik modelleri için elde edilen model sabitleri ve istatistiksel veriler sunulmuştur.

Çizelge EK-B.11, Çizelge EK-B.12, Çizelge EK-B.13, Çizelge EK-B.14 ve Çizelge EK-B.15’de sırasıyla, Metalaxyl’in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için 1. Mertebe Kinetik, 2. Mertebe Kinetik, Yalancı 1. Mertebe Kinetik, Elovich Kinetik ve Partikül İçi Difüzyon Kinetik modelleri için elde edilen model sabitleri ve istatistiksel veriler sunulmuştur.

Çizelge EK-B.16, Çizelge EK-B.17, Çizelge EK-B.18, Çizelge EK-B.19 ve Çizelge EK-B.20’de sırasıyla Metalaxyl’in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için 1. Mertebe Kinetik, 2. Mertebe Kinetik, Yalancı 1. Mertebe Kinetik, Elovich Kinetik ve Partikül İçi Difüzyon Kinetik modelleri için elde edilen model sabitleri ve istatistiksel veriler sunulmuştur.

Çizelge EK-B. 1 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için 1. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>1. Mertebe Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>C<sub>0</sub> (mg/L)</b>	<b>k<sub>1</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	33.75792	0.00590	8.0551	0.61379
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	24.55765	0.18845	4.7153	0.79295
		<b>50</b>	<b>22</b>	33.42818	0.10755	8.7302	0.69852
		<b>75</b>	<b>8</b>	48.57703	0.00111	13.868	0.67195
		<b>50</b>	<b>22</b>	33.42818	0.10755	8.7302	0.69852
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	32.60530	0.01515	9.5611	0.69673
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	23.01243	0.00174	1.0984	0.83539
		<b>50</b>	<b>3</b>	43.80640	0.00193	3.5291	0.69260
		<b>75</b>	<b>21</b>	67.10825	0.00197	4.4169	0.76743
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>16</b>	21.49505	0.00589	2.1932	0.87996
		<b>50</b>	<b>15</b>	45.54822	0.00351	2.7278	0.90730
		<b>75</b>	<b>4</b>	68.34284	0.00240	4.0319	0.84680
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	21.99796	0.00261	1.6867	0.79492
		<b>50</b>	<b>23</b>	43.68249	0.00243	3.2594	0.78598
		<b>75</b>	<b>14</b>	60.79535	0.00369	7.4388	0.73429
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	48.21316	0.00081	1.1844	0.81923
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	23.68273	0.00080	0.8970	0.67551
		<b>50</b>	<b>7</b>	44.78053	0.00220	2.8443	0.80932
		<b>75</b>	<b>13</b>	73.17282	0.00143	2.2997	0.88638
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	47.60445	0.00221	2.4729	0.86000

Çizelge EK-B. 2 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için 2. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>2. Mertebe Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>C<sub>0</sub> (mg/L)</b>	<b>k<sub>2</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	30.26585	0.00015	0.0062	0.74670
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	7.7512	0.00144	0.0698	0.68655
		<b>50</b>	<b>22</b>	27.26910	0.00028	0.0087	0.82759
		<b>75</b>	<b>8</b>	38.99189	0.00020	0.0062	0.82624
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	24.06252	0.00038	0.0114	0.83625
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	23.00437	8.29*10 <sup>-5</sup>	0.0022	0.86926
		<b>50</b>	<b>3</b>	43.52200	5.25*10 <sup>-5</sup>	0.0017	0.81158
		<b>75</b>	<b>21</b>	66.38300	2.89*10 <sup>-5</sup>	0.0010	0.78461
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>16</b>	20.74430	0.00030	0.0067	0.90180
		<b>50</b>	<b>15</b>	45.03987	8.26*10 <sup>-5</sup>	0.0014	0.93573
		<b>75</b>	<b>4</b>	67.68536	3.58*10 <sup>-5</sup>	0.0001	0.86214
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	21.62240	0.00012	0.0037	0.82028
		<b>50</b>	<b>23</b>	43.48488	6.58*10 <sup>-5</sup>	0.0015	0.89142
		<b>75</b>	<b>14</b>	58.45400	5.71*10 <sup>-5</sup>	0.0021	0.77972
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	48.14640	1.70*10 <sup>-5</sup>	0.0005	0.81959
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	23.61532	3.32*10 <sup>-5</sup>	0.0017	0.66363
		<b>50</b>	<b>7</b>	44.37916	5.06*10 <sup>-5</sup>	0.0015	0.83798
		<b>75</b>	<b>13</b>	73.31679	2.35*10 <sup>-5</sup>	0.0005	0.89433
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	47.12535	4.67*10 <sup>-5</sup>	0.0336	0.85636

Çizelge EK-B. 3 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için yalancı 1. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>Yalancı 1. Mertebe Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>	<b>k<sub>1</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	1.33279	0.42423	0.0986	0.51274
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	0.50379	0.39351	0.0390	0.62647
		<b>50</b>	<b>22</b>	0.80446	0.24261	0.0544	0.84754
		<b>75</b>	<b>8</b>	1.23800	0.26997	0.0668	0.87649
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	0.58796	0.25355	0.0313	0.89184
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	0.22081	0.18587	0.0612	0.44628
		<b>50</b>	<b>3</b>	0.64753	0.12192	0.0687	0.90753
		<b>75</b>	<b>21</b>	0.87471	0.10325	0.0857	0.91630
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>16</b>	0.28194	0.06745	0.0350	0.91388
		<b>50</b>	<b>15</b>	0.39976	0.05161	0.0329	0.96656
		<b>75</b>	<b>4</b>	0.47255	0.06557	0.0428	0.95128
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	0.11808	0.09323	0.0083	0.96044
		<b>50</b>	<b>23</b>	0.23480	0.11133	0.0302	0.85124
		<b>75</b>	<b>14</b>	0.47569	0.14710	0.0347	0.92883
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	0.25513	0.05511	0.0369	0.88534
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	0.07091	0.09323	0.0169	0.64173
		<b>50</b>	<b>7</b>	0.29867	0.10702	0.0559	0.69377
		<b>75</b>	<b>13</b>	0.31690	0.03306	0.0259	0.97449
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	0.18355	0.04110	0.0153	0.97711



Çizelge EK-B. 4 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Elovich kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>Elovich Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b><math>\alpha</math></b>	<b><math>\beta</math></b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	15580	11.88440	0.0427	0.92832
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	736211	41.96535	0.0398	0.60400
		<b>50</b>	<b>22</b>	34.65175	12.46648	0.0130	0.99189
		<b>75</b>	<b>8</b>	218.7094	9.34722	0.0291	0.97768
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	56.96935	18.60479	0.0128	0.98288
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	0.22103	25.21750	0.0464	0.73447
		<b>50</b>	<b>3</b>	0.42500	8.2450	0.0599	0.93060
		<b>75</b>	<b>21</b>	0.56050	6.28100	0.0711	0.94309
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>16</b>	0.06466	15.39420	0.0256	0.95483
		<b>50</b>	<b>15</b>	0.06190	9.94343	0.0143	0.99375
		<b>75</b>	<b>4</b>	0.11418	9.45022	0.0363	0.96526
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	0.05741	43.99960	0.0069	0.97224
		<b>50</b>	<b>23</b>	0.14032	22.57220	0.0128	0.97490
		<b>75</b>	<b>14</b>	0.20595	9.93340	0.0502	0.96134
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	0.05561	17.21615	0.0306	0.92259
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	41.39030	0.02476	0.9024	0.70203
		<b>50</b>	<b>7</b>	0.21697	18.70533	0.0377	0.87363
		<b>75</b>	<b>13</b>	0.02806	11.32856	0.0215	0.98240
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	0.01700	18.2436	0.0192	0.96375

Çizelge EK-B. 5 Bentazon'un badem kabuğu ile adsorpsiyonu için partikül içi difüzyon kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>Partikül İçi Difüzyon Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>c</b>	<b>k<sub>p</sub></b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	0.61586	0.09637	0.3370	0.75072
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	0.24335	0.03418	0.0398	0.60400
		<b>50</b>	<b>22</b>	0.32628	0.06184	0.1806	0.80579
		<b>75</b>	<b>8</b>	0.52728	0.09222	0.2912	0.78292
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	0.24652	0.04405	0.1367	0.78807
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	0.07930	0.01969	0.0626	0.78077
		<b>50</b>	<b>3</b>	0.16732	0.05908	0.1145	0.89886
		<b>75</b>	<b>21</b>	0.22287	0.07798	0.1504	0.89963
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>16</b>	0.05601	0.02224	0.0460	0.88708
		<b>50</b>	<b>15</b>	-0.04239	0.09457	0.0471	0.95692
		<b>75</b>	<b>4</b>	0.07532	0.04513	0.0612	0.94650
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	0.02755	0.01071	0.0184	0.91820
		<b>50</b>	<b>23</b>	0.05591	0.02206	0.0321	0.93907
		<b>75</b>	<b>14</b>	0.15335	0.03996	0.0897	0.87077
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	0.03683	0.02406	0.0390	0.92604
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	0.01841	0.00618	0.0179	0.80738
		<b>50</b>	<b>7</b>	0.07346	0.02765	0.0508	0.90783
		<b>75</b>	<b>13</b>	0.00139	0.03184	0.0310	0.97131
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	0.00284	0.01907	0.0279	0.93826

Çizelge EK-B. 6 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için 1. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>1. Mertebe Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>C<sub>0</sub> (mg/L)</b>	<b>k<sub>1</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	37.03508	0.00665	6.6941	0.74455
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	15.32978	0.01114	5.1967	0.59062
		<b>50</b>	<b>2</b>	31.88706	0.00785	9.4315	0.58642
		<b>75</b>	<b>8</b>	49.46761	0.00853	14.220	0.61448
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	31.08825	0.01451	10.439	0.62899
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	22.56010	0.00370	1.2969	0.92261
		<b>50</b>	<b>10</b>	46.63171	0.00314	1.9736	0.94196
		<b>75</b>	<b>21</b>	63.15267	0.00517	6.7240	0.85029
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>11</b>	20.77321	0.00366	2.0688	0.80314
		<b>50</b>	<b>15</b>	44.33778	0.00265	3.0874	0.82569
		<b>75</b>	<b>4</b>	65.19562	0.00256	4.8439	0.80318
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	23.49318	0.00326	0.9561	0.94938
		<b>50</b>	<b>23</b>	40.81865	0.00434	5.0256	0.77159
		<b>75</b>	<b>14</b>	60.79535	0.00369	7.4277	0.73429
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	48.01651	0.00226	2.5210	0.86941
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	22.19525	0.00304	1.5706	0.85332
		<b>50</b>	<b>7</b>	45.15310	0.00222	2.5223	0.84554
		<b>75</b>	<b>13</b>	66.77150	0.00211	4.1528	0.80408
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	40.60559	0.00267	4.6228	0.67133

Çizelge EK-B. 7 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için 2. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>2. Mertebe Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>C<sub>0</sub> (mg/L)</b>	<b>k<sub>2</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	34.03047	0.00018	0.0049	0.85462
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	11.22397	0.00047	0.0271	0.62009
		<b>50</b>	<b>2</b>	26.05038	0.00018	0.0101	0.62883
		<b>75</b>	<b>8</b>	39.02696	0.00013	0.0089	0.54944
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	21.68050	0.00033	0.0169	0.66157
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	22.64091	0.00020	0.0027	0.95738
		<b>50</b>	<b>10</b>	46.36425	7.33*10 <sup>-5</sup>	0.0010	0.96227
		<b>75</b>	<b>21</b>	60.89850	8.61*10 <sup>-5</sup>	0.0020	0.88964
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>11</b>	20.39324	0.00019	0.0043	0.89180
		<b>50</b>	<b>15</b>	43.69532	5.95*10 <sup>-5</sup>	0.0017	0.85172
		<b>75</b>	<b>4</b>	64.51145	4.06*10 <sup>-5</sup>	0.0011	0.86141
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	23.42230	0.00016	0.0019	0.96707
		<b>50</b>	<b>23</b>	39.00329	0.00010	0.0035	0.79929
		<b>75</b>	<b>14</b>	58.45389	5.71*10 <sup>-5</sup>	0.0021	7797156
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	48.67300	6.07*10 <sup>-5</sup>	0.0016	0.86875
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	22.00620	0.00015	0.0034	0.89263
		<b>50</b>	<b>7</b>	44.80964	5.07*10 <sup>-5</sup>	0.0012	0.88756
		<b>75</b>	<b>13</b>	66.09970	3.18*10 <sup>-5</sup>	0.0009	0.84498
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	39.69566	6.38*10 <sup>-5</sup>	0.0025	0.74908

Çizelge EK-B. 8 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için yalancı 1. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>Yalancı 1. Mertebe Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>	<b>k<sub>1</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	1.30399	0.18428	0.1090	0.87485
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	0.42728	0.29036	0.0095	0.97416
		<b>50</b>	<b>2</b>	0.77086	0.28532	0.0372	0.88412
		<b>75</b>	<b>8</b>	1.16783	0.21927	0.1089	0.81224
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	0.58901	0.32486	0.0400	0.72581
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	0.40646	0.00573	0.0853	0.75226
		<b>50</b>	<b>10</b>	0.75332	0.03591	0.0622	0.96693
		<b>75</b>	<b>21</b>	1.62261	0.07581	0.2251	0.85302
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>11</b>	0.21611	0.19095	0.0366	0.58965
		<b>50</b>	<b>15</b>	0.34872	0.08672	0.0347	0.92051
		<b>75</b>	<b>4</b>	0.51100	0.15431	0.0805	0.69018
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	0.10610	0.07044	0.0075	0.97557
		<b>50</b>	<b>23</b>	0.33581	0.12435	0.0405	0.84345
		<b>75</b>	<b>14</b>	0.47569	0.14710	0.0347	0.92388
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	8.33490	0.00077	0.1591	0.74273
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	0.18323	0.08527	0.0351	0.74423
		<b>50</b>	<b>7</b>	0.29493	0.09840	0.0364	0.88076
		<b>75</b>	<b>13</b>	0.44499	0.12845	0.0471	0.87978
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	0.26684	0.30377	0.0315	0.54054

Çizelge EK-B. 9 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Elovich kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>Elovich Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b><math>\alpha</math></b>	<b><math>\beta</math></b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	5.84608	5.78553	0.0514	0.97358
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	4414.7	37.68693	0.0253	0.79953
		<b>50</b>	<b>2</b>	3258.8	19.61082	0.0467	0.81061
		<b>75</b>	<b>8</b>	112.5200	9.50683	0.1308	0.91368
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	2508.82	25.45935	0.0322	0.83988
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	0.09174	10.88362	0.0515	0.95183
		<b>50</b>	<b>10</b>	0.08892	5.27487	0.0417	0.98528
		<b>75</b>	<b>21</b>	0.65408	3.13492	0.1503	0.93734
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>11</b>	0.48036	30.48953	0.0181	0.91656
		<b>50</b>	<b>15</b>	0.15049	14.53153	0.0174	0.98057
		<b>75</b>	<b>4</b>	1.07327	21.43551	0.0844	0.90971
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	0.02070	38.41721	0.0094	0.96185
		<b>50</b>	<b>25</b>	0.44779	12.41054	0.0187	0.98369
		<b>75</b>	<b>14</b>	0.02300	142.6980	0.0183	0.97931
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	0.07546	8.39560	0.1835	0.63522
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	0.07567	27.18660	0.0244	0.88590
		<b>50</b>	<b>7</b>	0.13057	16.89210	0.0172	0.97485
		<b>75</b>	<b>13</b>	0.40437	12.96512	0.0158	0.98726
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	21.4677	39.58288	0.0195	0.85446

Çizelge EK-B. 10 Bentazon'un kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için partikül içi difüzyon kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>Partikül İçi Difüzyon Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>c</b>	<b>k<sub>p</sub></b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	0.45388	0.10843	0.2564	0.85939
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	0.19959	0.02895	0.1126	0.71469
		<b>50</b>	<b>2</b>	0.35419	0.05321	0.2000	0.72650
		<b>75</b>	<b>8</b>	0.49304	0.08443	0.3008	0.74462
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	0.27140	0.04125	0.1523	0.73263
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	0.05020	0.04082	0.0440	0.96506
		<b>50</b>	<b>10</b>	0.03742	0.07344	0.0349	0.99294
		<b>75</b>	<b>21</b>	0.32950	0.15022	0.2273	0.93456
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>11</b>	0.06690	0.01969	0.0375	0.90165
		<b>50</b>	<b>15</b>	0.07562	0.03225	0.0479	0.93677
		<b>75</b>	<b>4</b>	0.18381	0.08137	0.0417	0.69526
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	0.01518	0.01045	0.0159	0.93361
		<b>50</b>	<b>25</b>	0.05283	0.03520	0.0302	0.97746
		<b>75</b>	<b>14</b>	0.15335	0.03996	0.0897	0.87077
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	0.01425	0.05354	0.1407	0.83413
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	0.03630	0.01763	0.0276	0.93035
		<b>50</b>	<b>7</b>	0.06363	0.02809	0.0386	0.94504
		<b>75</b>	<b>13</b>	0.12069	0.04036	0.0686	0.91950
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	0.10914	0.02109	0.0613	0.80692

Çizelge EK-B. 11 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için 1. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>1. Mertebe Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>C<sub>0</sub> (mg/L)</b>	<b>k<sub>1</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	43.83974	0.00158	3.1107	0.67485
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	20.72309	0.00299	2.1422	0.7410
		<b>50</b>	<b>22</b>	41.59664	0.00237	4.1027	0.68609
		<b>75</b>	<b>8</b>	62.49942	0.00166	6.2909	0.55654
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	40.32298	0.00348	4.9242	0.71876
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	22.97226	0.00138	1.0079	0.79195
		<b>50</b>	<b>10</b>	46.42174	0.00116	1.8257	0.78062
		<b>75</b>	<b>21</b>	68.57652	0.00110	3.1385	0.71602
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>11</b>	21.97267	0.00261	1.6026	0.80983
		<b>50</b>	<b>1</b>	42.80670	0.00230	3.5584	0.73666
		<b>75</b>	<b>4</b>	68.76172	0.00140	3.2038	0.78202
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	19.69602	0.00285	2.6729	0.61932
		<b>50</b>	<b>23</b>	41.09077	0.00315	4.5403	0.72666
		<b>75</b>	<b>14</b>	60.79551	0.00369	7.4276	0.73430
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	44.37788	0.00159	2.7216	0.73024
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	23.68273	0.00080	0.8970	0.67551
		<b>50</b>	<b>7</b>	44.16880	0.00222	3.0217	0.78936
		<b>75</b>	<b>13</b>	65.87531	0.00215	5.1249	0.73885
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	41.96132	0.00284	4.0364	0.74740



Çizelge EK-B. 12 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için 2. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>2. Mertebe Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>C<sub>0</sub> (mg/L)</b>	<b>k<sub>2</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	43.40144	3.49*10 <sup>-5</sup>	0,0062	0.74838
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	20.38080	0.00015	0,0047	0.82539
		<b>50</b>	<b>22</b>	40.77276	5.46*10 <sup>-5</sup>	0,0219	0.75136
		<b>75</b>	<b>8</b>	61.37473	2.37*10 <sup>-5</sup>	0,0015	0.57765
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	38.88259	8.14*10 <sup>-5</sup>	0,0030	0.77635
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	22.8770	5.94*10 <sup>-5</sup>	0,0019	0.82599
		<b>50</b>	<b>10</b>	0.01631	9.17*10 <sup>-5</sup>	0,0078	0.43388
		<b>75</b>	<b>21</b>	68.33000	1.59*10 <sup>-5</sup>	0,0007	0.74115
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>11</b>	21.64569	0.00012	0,0034	0.84735
		<b>50</b>	<b>1</b>	42.16495	5.27*10 <sup>-5</sup>	0,0018	0.79565
		<b>75</b>	<b>4</b>	68.41722	2.02*10 <sup>-5</sup>	0,0007	0.80388
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	18.93840	0.00013	0,0065	0.65998
		<b>50</b>	<b>23</b>	39.87409	7.24*10 <sup>-5</sup>	0,0026	0.78155
		<b>75</b>	<b>14</b>	0.47569	0.14710	0,0035	0.92388
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	44.03186	3.53*10 <sup>-5</sup>	0,0013	0.77748
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	23.01265	3.32*10 <sup>-5</sup>	0,0017	0.66363
		<b>50</b>	<b>7</b>	43.64124	4.98*10 <sup>-5</sup>	0,0015	0.82832
		<b>75</b>	<b>13</b>	65.04406	3.23*10 <sup>-5</sup>	0,0012	0.76510
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	41.10721	6.68*10 <sup>-5</sup>	0,0022	0.81194

Çizelge EK-B. 13 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için yalancı 1. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>Yalancı 1. Mertebe Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>	<b>k<sub>1</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	0.54426	0.21387	0.0516	0.82234
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	0.19786	0.26615	0.0344	0.46345
		<b>50</b>	<b>22</b>	0.36636	0.25342	0.0390	0.65854
		<b>75</b>	<b>8</b>	0.49668	0.26901	0.0387	0.77693
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	0.30759	0.17760	0.0310	0.81161
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	0.20987	0.13917	0.0271	0.80391
		<b>50</b>	<b>10</b>	0.37847	0.12337	0.0510	0.78642
		<b>75</b>	<b>21</b>	0.58075	0.20544	0.0659	0.73779
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>11</b>	0.17480	0.10120	0.0179	0.90362
		<b>50</b>	<b>1</b>	0.33359	0.21928	0.0516	0.51332
		<b>75</b>	<b>4</b>	0.32921	0.12086	0.0408	0.83058
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	0.15013	0.22967	0.0064	0.94519
		<b>50</b>	<b>23</b>	0.28774	0.16125	0.0276	0.84411
		<b>75</b>	<b>14</b>	0.47569	0.14710	0.0347	0.92388
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	0.51004	0.22948	0.0659	0.63603
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	0.04433	0.58495	0.0019	0.43196
		<b>50</b>	<b>7</b>	0.31478	0.12183	0.0303	0.90372
		<b>75</b>	<b>13</b>	0.47462	0.13047	0.0554	0.87458
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	0.25776	0.19349	0.0321	0.75378

Çizelge EK-B. 14 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için Elovich kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>Elovich Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b><math>\alpha</math></b>	<b><math>\beta</math></b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	1.00602	1.56180	0.0405	0.89466
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	1.94184	41.43921	0.0103	0.80621
		<b>50</b>	<b>22</b>	9.71569	25.67131	0.0159	0.95206
		<b>75</b>	<b>8</b>	447.068	27.05550	0.0398	0.76234
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	1.37247	24.57056	0.0125	0.97208
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	0.25326	28.90955	0.0129	0.95950
		<b>50</b>	<b>10</b>	0.41656	16.24233	0.0270	0.94483
		<b>75</b>	<b>21</b>	4.13412	13.78774	0.0328	0.94189
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>11</b>	0,10625	31.01012	0.0086	0.97863
		<b>50</b>	<b>1</b>	2.05509	23.23770	0.0253	0.90730
		<b>75</b>	<b>4</b>	0.31718	17.89307	0.0184	0.96786
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	8.23364	69.14243	0.0067	0.93982
		<b>50</b>	<b>23</b>	0.96074	25.30188	0.0121	0.97213
		<b>75</b>	<b>14</b>	1.00504	14.26981	0.0183	0.97931
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	3.74620	15.57643	0.0261	0.95206
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	1.1*10 <sup>11</sup>	806.9692	0.0014	0.74869
		<b>50</b>	<b>7</b>	0.27062	18.25255	0.0136	0.98122
		<b>75</b>	<b>13</b>	0.49759	12.59642	0.0541	0.88078
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	0.90476	27.87317	0.0177	0.93169

Çizelge EK-B. 15 Metalaxyl'in badem kabuğu ile adsorpsiyonu için partikül içi difüzyon kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>Partikül İçi Difüzyon Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>c</b>	<b>k<sub>p</sub></b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	0.20387	0.04377	0.1189	0.82562
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	0.07125	0.01704	0.0421	0.84903
		<b>50</b>	<b>22</b>	0.14094	0.02963	0.0780	0.83302
		<b>75</b>	<b>8</b>	0.21836	0.03553	0.1265	0.74403
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	0.10716	0.02555	0.0608	0.85706
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	0.05968	0.01891	0.0341	0.91058
		<b>50</b>	<b>10</b>	0.10414	0.03330	0.0618	0.90611
		<b>75</b>	<b>21</b>	0.20781	0.04838	0.1165	0.85522
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>11</b>	0.04265	0.01591	0.0258	0.92576
		<b>50</b>	<b>1</b>	0.11735	0.02857	0.0664	0.86321
		<b>75</b>	<b>4</b>	0.09019	0.02945	0.0531	0.91071
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	0.06199	0.01121	0.0351	0.78532
		<b>50</b>	<b>23</b>	0.09690	0.02397	0.0553	0.86463
		<b>75</b>	<b>14</b>	0.15335	0.03996	0.0897	0.87077
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	0.18282	0.04326	0.1005	0.86326
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	0.02302	0.00282	0.0127	0.66311
		<b>50</b>	<b>7</b>	0.08505	0.02827	0.0502	0.91307
		<b>75</b>	<b>13</b>	0.13637	0.04159	0.0940	0.86934
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	0.08606	0.02228	0.0495	0.87242

Çizelge EK-B. 16 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için 1. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>1. Mertebe Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>C<sub>0</sub> (mg/L)</b>	<b>k<sub>1</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	41.14250	0.00048	5.3885	0.77238
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	18.53476	0.00752	3.4581	0.75360
		<b>50</b>	<b>2</b>	38.26592	0.00809	6.4584	0.79946
		<b>75</b>	<b>8</b>	56.26932	0.00672	10.150	0.74439
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	35.19746	0.01334	8.2689	0.76281
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	19.63174	0.00524	2.8019	0.76910
		<b>50</b>	<b>3</b>	40.64662	0.00417	4.9864	0.76413
		<b>75</b>	<b>21</b>	62.88678	0.00408	6.4897	0.81233
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>11</b>	18.11294	0.00584	3.4592	0.69538
		<b>50</b>	<b>1</b>	38.12096	0.00685	6.2337	0.78102
		<b>75</b>	<b>4</b>	57.25642	0.00647	9.3460	0.77108
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	16.99411	0.01085	4.2780	0.72053
		<b>50</b>	<b>23</b>	36.23222	0.01155	7.7257	0.77823
		<b>75</b>	<b>14</b>	56.10779	0.01134	1.6610	0.81385
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	40.56521	0.00402	4.8555	0.76413
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	22.19531	0.00304	1.5705	0.85336
		<b>50</b>	<b>7</b>	37.56057	0.00658	6.8219	0.73751
		<b>75</b>	<b>13</b>	57.68089	0.00673	9.4915	0.77423
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	34.99500	0.00999	8.1364	0.73156

Çizelge EK-B. 17 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için 2. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>2. Mertebe Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>C<sub>0</sub> (mg/L)</b>	<b>k<sub>2</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	38.79312	0.00011	0.0040	0.77905
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	16.52241	0.00038	0.0120	0.82091
		<b>50</b>	<b>2</b>	34.41400	0.00021	0.0058	0.85504
		<b>75</b>	<b>8</b>	51.08037	0.00011	0.0037	0.81229
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	27.76786	0.00034	0.0099	0.84287
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	18.52992	0.00026	0.0077	0.83894
		<b>50</b>	<b>3</b>	38.94780	9.82*10 <sup>-5</sup>	0.0032	0.81753
		<b>75</b>	<b>21</b>	60.86443	6.50*10 <sup>-5</sup>	0.0018	0.85923
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>11</b>	16.68693	0.00030	0.0100	0.81224
		<b>50</b>	<b>1</b>	34.99928	0.00018	0.0047	0.86372
		<b>75</b>	<b>4</b>	52.96990	0.00011	0.0030	0.85941
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	20.30191	0.00086	0.0252	0.84157
		<b>50</b>	<b>23</b>	29.98001	0.00030	0.0083	0.85345
		<b>75</b>	<b>14</b>	48.19321	0.00021	0.0002	0.90299
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	39.06258	0.00001	0.0029	0.83308
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	22.00620	0.00015	0.0034	0.89263
		<b>50</b>	<b>7</b>	34.10783	0.00017	0.0057	0.79796
		<b>75</b>	<b>13</b>	52.71873	0.00011	0.0034	0.83374
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	29.78054	0.00027	0.0078	0.84996

Çizelge EK-B. 18 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için yalancı 1. mertebe kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>Yalancı 1. Mertebe Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>	<b>k<sub>1</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	1.07175	0.09675	0.0519	0.98193
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	0.34346	0.15353	0.0337	0.84562
		<b>50</b>	<b>2</b>	0.69510	0.06226	0.0623	0.90832
		<b>75</b>	<b>8</b>	0.98604	0.15108	0.0747	0.92022
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	0.56005	0.17136	0.0407	0.90139
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	0.56514	0.15141	0.0582	0.85477
		<b>50</b>	<b>3</b>	1.00165	0.12872	0.0599	0.95846
		<b>75</b>	<b>21</b>	1.42956	0.10335	0.1189	0.93529
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>11</b>	0.31299	0.26011	0.0327	0.65181
		<b>50</b>	<b>1</b>	0.64978	0.14490	0.0549	0.90009
		<b>75</b>	<b>4</b>	0.94888	0.15365	0.0776	0.90828
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	0.26598	0.23928	0.0251	0.79144
		<b>50</b>	<b>23</b>	0.53555	0.14803	0.0315	0.95053
		<b>75</b>	<b>14</b>	0.79134	0.12719	0.0481	0.95806
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	0.97738	0.14474	0.0758	0.91892
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	0.18323	0.08527	0.0351	0.74423
		<b>50</b>	<b>7</b>	0.65388	0.14467	0.0715	0.83286
		<b>75</b>	<b>13</b>	0.97276	0.12769	0.0668	0.94445
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	0.52088	0.18091	0.0290	0.94263

Çizelge EK-B.19 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için Elovich kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>Elovich Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b><math>\alpha</math></b>	<b><math>\beta</math></b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	0.54085	4.88511	0.0892	0.94565
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	1.00126	20.82199	0.0554	0.96409
		<b>50</b>	<b>2</b>	0.76103	8.73169	0.0331	0.97503
		<b>75</b>	<b>8</b>	2.36553	7.03470	0.0254	0.94331
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	2.73327	13.77708	0.0196	0.97797
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	1.02959	11.60151	0.0252	0.97430
		<b>50</b>	<b>3</b>	1.17772	6.12770	0.0368	0.98454
		<b>75</b>	<b>21</b>	0.88376	3.80008	0.0402	0.99280
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>11</b>	10.29290	30.78748	0.0129	0.95399
		<b>50</b>	<b>1</b>	1.15694	0.23200	1.8541	0.99556
		<b>75</b>	<b>4</b>	1.78577	6.95261	0.0341	0.98291
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	5.06918	34.14865	0.0648	0.90406
		<b>50</b>	<b>23</b>	1.18002	12.77831	0.0212	0.97793
		<b>75</b>	<b>14</b>	0.86544	7.64493	0.0260	0.98789
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	1.61732	6.62859	0.0185	0.99535
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	0.07567	27.18657	0.0244	0.88590
		<b>50</b>	<b>7</b>	1.80645	10.84827	0.0552	0.90399
		<b>75</b>	<b>13</b>	1.23539	6.42231	0.0483	0.97129
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	3.08146	15.6070	0.0271	0.95067



Çizelge EK-B. 20 Metalaxyl'in kestane kabuğu ile adsorpsiyonu için partikül içi difüzyonu kinetik modeli sabitleri ve istatistiksel veriler

				<b>Partikül İçi Difüzyon Kinetik Modeli</b>			
				<b>Katsayılar</b>			
<b>pH</b>	<b>Ads. Kons. (g/50 ml)</b>	<b>Pestisit Kons. (mg/L)</b>	<b>Deney</b>	<b>c</b>	<b>k<sub>p</sub></b>	<b>S</b>	<b>R<sup>2</sup></b>
<b>2.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>6</b>	0.26249	0.09533	0.1914	0.89265
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>18</b>	0.11434	0.02856	0.0664	0.86330
		<b>50</b>	<b>2</b>	0.19953	0.06055	0.0331	0.97503
		<b>75</b>	<b>8</b>	0.32310	0.08221	0.1939	0.86005
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>24</b>	0.19818	0.04539	0.1135	0.84647
<b>3.5</b>	<b>1</b>	<b>25</b>	<b>27</b>	0.17666	0.04881	0.1021	0.88497
		<b>50</b>	<b>3</b>	0.29447	0.08658	0.1760	0.98454
		<b>75</b>	<b>21</b>	0.35527	0.12930	0.9235	0.92352
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>11</b>	0.12430	0.02486	0.0687	0.82101
		<b>50</b>	<b>1</b>	0.20250	0.05573	0.1153	0.88696
		<b>75</b>	<b>4</b>	0.29972	0.08144	0.1730	0.88196
	<b>3</b>	<b>25</b>	<b>19</b>	0.10314	0.02121	0.0588	0.82012
		<b>50</b>	<b>23</b>	0.17428	0.04469	0.1024	0.86624
		<b>75</b>	<b>14</b>	0.22912	0.06885	0.1365	0.89477
<b>5.0</b>	<b>1</b>	<b>50</b>	<b>5</b>	0.30165	0.08419	0.1722	0.88925
	<b>2</b>	<b>25</b>	<b>20</b>	0.03630	0.01763	0.0276	0.93035
		<b>50</b>	<b>7</b>	0.21470	0.05419	0.1318	0.85299
		<b>75</b>	<b>13</b>	0.28957	0.08338	0.1752	0.88416
	<b>3</b>	<b>50</b>	<b>9</b>	0.18796	0.04188	0.1088	0.83710

**ADSORPSİYON İZOTERMİ DENEYLERİNE AİT KİNETİK  
MODEL VERİLERİ**

Çizelge EK-C.1-C.20’de farklı badem ve kestane kabuğu konsantrasyonlarında Bentazon ve Metalaxyl adsorpsiyonu deneyleri için 1. Mertebe Kinetik, 2. Mertebe Kinetik, Yalancı 1. Mertebe Kinetik, Elovich Kinetik ve Partikül İçi Difüzyon Kinetik modelleri için elde edilen model sabitleri ve istatistiksel veriler sunulmuştur.

Çizelge EK-C. 1 Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için 1. mertebe kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b>k<sub>1</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	0.00106	0.00193	0.00299	0.00438	0.00524
<b>C<sub>0</sub> (mg/L)</b>	54.5341	48.2068	44.1224	38.8620	38.1027
<b>S</b>	6.86881	9.12311	10.6616	12.2882	12.7268
<b>R<sup>2</sup></b>	0.61105	0.63450	0.64933	0.61996	0.62418

Çizelge EK-C. 2 Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için 2. mertebe kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b>k<sub>2</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	0.0000174	0.0000357	0.0000608	0.0001012	0.0001253
<b>C<sub>0</sub> (mg/L)</b>	52.5559	44.1351	37.6412	29.9570	27.8999
<b>S</b>	0.00199	0.00346	0.00521	0.00763	0.00996
<b>R<sup>2</sup></b>	0.69038	0.74774	0.78677	0.82311	0.80867

Çizelge EK-C. 3 Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için yalancı 1. mertebe kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b>k<sub>1</sub></b> <b>(dak<sup>-1</sup>)</b>	0.18919	0.18329	0.17892	0.23891	0.24999
<b>q<sub>e</sub></b> <b>(mg/g)</b>	2.99940	2.02740	1.20329	1.09937	0.95124
<b>S</b>	0.17033	0.12176	0.07095	0.05835	0.05443
<b>R<sup>2</sup></b>	0.87557	0.87386	0.88137	0.83252	0.80765

Çizelge EK-C. 4 Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için yalancı 2. mertebe kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b>k<sub>2</sub></b> <b>(dak<sup>-1</sup>)</b>	0.06224	0.09457	0.16715	0.19601	0.23622
<b>q<sub>e</sub></b> <b>(mg/g)</b>	3.10837	2.09722	1.25177	1.14398	1.01286
<b>S</b>	0.87284	1.74343	2.06544	2.73023	5.39360
<b>R<sup>2</sup></b>	0.99967	0.99939	0.99970	0.99957	0.99874

Çizelge EK-C. 5 Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için Elovich kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b><math>\alpha</math> (mg/g*dak)</b>	406.676	113327.3	77.3544	1614.44	1553.51
<b><math>\beta</math> (g/mg)</b>	4.08465	13.1849	9.50644	13.4196	15.6256
<b>S</b>	0.09849	0.38526	0.03736	0.02186	0.02625
<b>R<sup>2</sup></b>	0.96019	0.75753	0.96856	0.97824	0.95872

Çizelge EK-C. 6 Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için partikül içi difüzyon kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b><math>k_p</math> (mg/g*dak)</b>	0.10983	0.17553	0.04507	0.03780	0.03270
<b>c (mg/g)</b>	1.62309	1.17983	0.63805	0.62876	0.54571
<b>S</b>	0.57774	0.06173	0.22863	0.21926	0.19120
<b>R<sup>2</sup></b>	0.74612	0.96915	0.75793	0.71414	0.70996

Çizelge EK-C. 7 Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için 1. mertebe kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b>k<sub>1</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	0.00010	0.00170	0.00325	0.00378	0.17152
<b>C<sub>0</sub> (mg/L)</b>	50.7762	48.8210	41.7652	37.0332	72.81720
<b>S</b>	8.06857	8.97173	11.41017	13.0410	10.9731
<b>R<sup>2</sup></b>	0.50652	0.60799	0.61883	0.54303	0.78629

Çizelge EK-C. 8 Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için 2. mertebe kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b>k<sub>2</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	0.000017	0.00003	0.00007	0.000072	0.00019
<b>C<sub>0</sub> (mg/L)</b>	48.5060	44.9471	34.4092	27.3812	17.9509
<b>S</b>	0.00256	0.00341	0.00615	0.00930	0.01692
<b>R<sup>2</sup></b>	0.57733	0.68942	0.76533	0.64297	0.78127

Çizelge EK-C. 9 Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için yalancı 1. mertebe kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b>k<sub>1</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	0.25324	0.18578	0.20038	0.23966	0.31858
<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>	3.30335	1.94424	1.26247	1.09955	1.05911
<b>S</b>	0.12873	0.13745	0.06318	0.03888	0.03246
<b>R<sup>2</sup></b>	0.89733	0.81065	0.89249	0.91518	0.87218

Çizelge EK-C. 10 Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için yalancı 2. mertebe kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b>k<sub>2</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	0.45226	0.16583	0.19237	0.70308	0.44715
<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>	3.30224	1.98113	1.30896	1.10840	1.08592
<b>S</b>	0.17033	0.12176	0.07095	0.05835	0.05443
<b>R<sup>2</sup></b>	0.87557	0.87386	0.88137	0.83252	0.80765

Çizelge EK-C. 11 Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için Elovich kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b><math>\alpha</math> (mg/g*dak)</b>	1.79018	256.1830	343.0295	28947.0	623733.0
<b><math>\beta</math> (g/mg)</b>	0.04815	6.28729	10.2973	16.3056	22.1971
<b>S</b>	14.4575	0.08208	0.03984	0.04545	0.02287
<b>R<sup>2</sup></b>	0.89319	0.93688	0.95869	0.88141	0.93874

Çizelge EK-C. 12 Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Bentazon adsorpsiyonu için partikül içi difüzyon kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b><math>k_p</math> (mg/g*dak)</b>	5.34953	0.07069	0.04486	0.03451	0.03160
<b>c (mg/g)</b>	-14.8198	1.05619	0.69953	0.66178	0.66428
<b>S</b>	8.36878	0.38098	0.24887	0.23474	0.23003
<b>R<sup>2</sup></b>	0.96654	0.73805	0.72824	0.65484	0.62932



Çizelge EK-C. 13 Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için 1. mertebe kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b>k<sub>1</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	0.00027	0.00035	0.00064	0.00079	0.00103
<b>C<sub>0</sub> (mg/L)</b>	68.4993	65.8961	60.8411	61.2277	58.9347
<b>S</b>	2.36072	3.39408	4.77441	4.79133	5.89356
<b>R<sup>2</sup></b>	0.63628	0.57557	0.62516	0.69521	0.69104

Çizelge EK-C. 14 Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için 2. mertebe kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b>k<sub>2</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	0.000039	0.000049	0.000009	0.000012	0.000017
<b>C<sub>0</sub> (mg/L)</b>	68.3476	65.5076	60.0125	60.3330	57.4074
<b>S</b>	0.00050	0.00077	0.00117	0.00120	0.00165
<b>R<sup>2</sup></b>	0.65162	0.57537	0.67549	0.74782	0.73958

Çizelge EK-C. 15 Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için yalancı 1. mertebe kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b>k<sub>1</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	0.17580	0.13591	0.18506	0.13649	0.11042
<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>	0.98060	0.67693	0.52155	0.43815	0.44013
<b>S</b>	0.11792	0.07277	0.03821	0.04232	0.03221
<b>R<sup>2</sup></b>	0.71582	0.76902	0.82147	0.80482	0.91223

Çizelge EK-C. 16 Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için yalancı 2. mertebe kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b>k<sub>2</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	0.07330	0.34627	0.31061	0.24865	0.28621
<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>	1.18686	0.68858	0.55000	0.45248	0.46535
<b>S</b>	22.0943	8.10823	14.2925	21.0119	2.12004
<b>R<sup>2</sup></b>	0.97576	0.99839	0.99727	0.99566	0.99735

Çizelge EK-C. 17 Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için Elovich kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b><math>\alpha</math> (mg/g*dak)</b>	32.1698	13472.3	32.8924	0.75910	1.34766
<b><math>\beta</math> (g/mg)</b>	10.8993	38.3936	21.8413	0.26545	18.54197
<b>S</b>	0.11145	0.14002	0.02196	1.37904	0.02493
<b>R<sup>2</sup></b>	0.75129	0.73887	0.94478	0.96670	0.94840

Çizelge EK-C. 18 Farklı konsantrasyonlarda badem kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için partikül içi difüzyon kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b><math>k_p</math> (mg/g*dak)</b>	0.03884	0.06806	0.01978	0.05223	0.01892
<b>c (mg/g)</b>	0.49781	0.34178	0.27514	3.22305	0.19762
<b>S</b>	0.20310	0.06405	0.09896	1.45132	0.07768
<b>R<sup>2</sup></b>	0.74810	0.82671	0.76243	0.96922	0.82054

Çizelge EK-C. 19 Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için 1. mertebe kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b>k<sub>1</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	0.00069	0.00133	0.00242	0.00286	0.00373
<b>C<sub>0</sub> (mg/L)</b>	63.4017	57.4081	48.5561	47.3902	42.3793
<b>S</b>	5.05154	6.50948	9.79574	9.92737	12.1233
<b>R<sup>2</sup></b>	0.64267	0.71926	0.66582	0.69319	0.61816

Çizelge EK-C. 20 Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için 2. mertebe kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b>k<sub>2</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	0.000099	0.000022	0.000044	0.000056	0.000065
<b>C<sub>0</sub> (mg/L)</b>	62.2699	55.3112	42.9319	41.4043	32.2148
<b>S</b>	0.00134	0.00197	0.00444	0.00452	0.00882
<b>R<sup>2</sup></b>	0.63056	0.77370	0.73374	0.80558	0.62962

Çizelge EK-C. 21 Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için yalancı 1. mertebe kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b>k<sub>1</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	0.06999	0.09325	0.12530	0.13291	0.14753
<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>	1.99604	1.50738	1.08416	0.91731	0.86983
<b>S</b>	0.20280	0.13395	0.05517	0.05153	0.04463
<b>R<sup>2</sup></b>	0.89570	0.87926	0.95020	0.93302	0.93242

Çizelge EK-C. 22 Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için yalancı 2. mertebe kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b>k<sub>2</sub> (dak<sup>-1</sup>)</b>	0.14799	0.07117	0.23205	0.16722	2.07145
<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>	1.91885	1.56680	1.09775	0.96164	0.88829
<b>S</b>	5.83166	3.17480	4.93921	2.85538	5.69597
<b>R<sup>2</sup></b>	0.99420	0.99885	0.99867	0.99967	0.99893

Çizelge EK-C. 23 Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için Elovich kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b><math>\alpha</math> (mg/g*dak)</b>	2.05773	3.10690	7.53432	7.16605	34.3539
<b><math>\beta</math> (g/mg)</b>	3.55424	5.14745	8.38094	10.0073	12.6743
<b>S</b>	0.23799	0.08310	0.06420	0.03764	0.05786
<b>R<sup>2</sup></b>	0.85305	0.95533	0.93194	0.96485	0.88346

Çizelge EK-C. 24 Farklı konsantrasyonlarda kestane kabuğu ile Metalaxyl adsorpsiyonu için partikül içi difüzyon kinetik modeli sonuçları

	<b>Adsorbent Konsantrasyonu (g/50 ml)</b>				
	<b>0.5</b>	<b>1.0</b>	<b>2.0</b>	<b>2.5</b>	<b>3.0</b>
<b><math>k_p</math> (mg/g*dak)</b>	0.08834	0.06675	0.04363	0.0374	0.03168
<b>c (mg/g)</b>	0.80842	0.64456	0.52297	0.44193	0.46038
<b>S</b>	0.40446	0.25428	0.20391	0.16544	0.17664
<b>R<sup>2</sup></b>	0.78976	0.83989	0.78360	0.79957	0.72647

## ÖZGEÇMİŞ

---

### KİŞİSEL BİLGİLER

**Adı Soyadı** : Barış DİLER  
**Doğum Tarihi ve Yeri** : 08.08.1990 - İstanbul  
**Yabancı Dili** : İngilizce  
**E-posta** : [bdiler7@gmail.com](mailto:bdiler7@gmail.com)

### ÖĞRENİM DURUMU

Derece	Alan	Okul/Üniversite	Mezuniyet Yılı
Y.Lisans	Kimya Mühendisliği	Yıldız Teknik Üniversitesi	2015
Lisans	Kimya Mühendisliği	Anadolu Üniversitesi	2013
Lise	Fen	Sefaköy Lisesi	2008

### İŞ TECRÜBESİ

Yıl	Firma/Kurum	Görevi
2013	İsfalt San. Tic. A.Ş	Üretim Stajyeri
2012	Eczacıbaşı Hijyen San. ve Tic. A.Ş	Laboratuvar Stajyeri

## YAYINLARI

### Bildiri:

1. Diler, B. ve Apar, D., K., (2015). "Optimization of Adsorption of Bentazon on Chestnut Shell Using Box-Behnken Design", International Conference on Chemical, Civil and Environmental Engineering (CCEE-2015), Haziran 2015, Istanbul, Türkiye, 95.
2. Diler, B. ve Apar, D., K., (2015). "Bentazonun Badem Kabuğuna Adsorpsiyonunun Box-Behnken Deneysel Tasarımı Kullanılarak Optimizasyonu", 27.Ulusal Kimya Kongresi, 23-28 Ağustos 2015, Çanakkale, Türkiye, 839.
3. Diler, B. ve Apar, D., K., (2015). "Optimization of Removal of Metalaxyl from Aqueous Solutions by Adsorption on Almond Shell", 10th European Congress of Chemical Engineering (ECCE10), 27 September-1 October 2015, Nice, France, 1657.