

**T.C.**  
**KAFKAS ÜNİVERSİTESİ**  
**FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**  
**KİMYA ANABİLİM DALI**

**0°C SICAKLIKTA NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O ÜÇLÜ SU-TUZ SİSTEMİNİN**  
**İZOTERMİK YÖNTEMLE ÇÖZÜNÜRLÜĞÜNÜN VE FAZ**  
**DENGELERİNİN ARAŞTIRILMASI**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ**

**Kimyager N.Nubar ÜSTEBAY**

**DANIŞMAN**  
**Prof. Dr. Vahit ALIŞOĞLU**

**MAYIS-2007**  
**KARS**

Nubar Üstebay'in Prof. Dr. Vahit Alişođlu'nun danışmanlığında yüksek lisans tezi olarak hazırladığı "0°C Sıcaklıkta NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O Üçlü Su-Tuz Sisteminin İzotermik yöntemle Çözünürlüğünün ve Faz Dengelerinin Araştırılması" adlı bu çalışma, yapılan tez savunması sınavı sonunda jüri tarafından Lisansüstü Eğitim Yönetmeliđi uyarınca değerlendirilerek oy ile kabul edilmiştir.

.... /..... /200.

	<b>Adı ve Soyadı</b>	<b>imza</b>
Başkan	: Prof. Dr. Vahit ALİŞOĐLU	
Üye	: Yrd. Doç. Dr. Hüseyin GEY	
Üye	: Yrd. Doç. Dr. M. Ali KIRPIK	

Bu tezin kabulü, Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulu'nun .... /..... /..... gün ve ..... /..... sayılı kararıyla onaylanmıştır.

Prof. Dr. Vahit ALİŞOĐLU  
Enstitü Müdürü

## **ÖZET**

NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü su-tuz sisteminde 0°C sıcaklıkta izotermik yöntemle çözünürlük, yoğunluk, viskozite, iletkenlik, tuzluluk ve faz dengeleri araştırılmıştır.

NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin basit ötonik sistem türüne ait olduğu ve ötonik noktanın bileşimi (%kütle olarak) %12,66 NaCl, %31,26 CuCl<sub>2</sub> ve %56,08 H<sub>2</sub>O olduğu saptanmıştır.

Sistemin bu ötonik noktasında sıvı faz ile NaCl ve CuCl<sub>2</sub>.2H<sub>2</sub>O kristalhidratlarının dengede buldukları tespit edilmiştir.

**Anahtar Kelimeler: NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O Üçlü Su-Tuz Sistemi, Üçlü Sistemler, Çözünürlük, Ötonik Nokta, Faz Dengeleri,**

## **ABSTRACT**

Solubility, density, viscosity, conductivity salty, and phases in the equilibrium in the NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O was investigated by the isothermal method at 0°C.

For the NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O system, the invariant ternair point have been determined, of wich composition is as following:

NaCl % 12,66, CuCl<sub>2</sub> %31,26 and H<sub>2</sub>O %56,08.

In this ternair point of system, crystallohydrates, CuCl<sub>2</sub>.2H<sub>2</sub>O,NaCl, with liquid phase was established to be equilibrium.

**Keywords: Ternary Systems, Solubility, Invariant Point, Phase Equilibrium**

## ÖNSÖZ

Bu yüksek lisans tezi, Kafkas Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Kimya Anabilim Dalı, Anorganik Kimya Bilim Dalı yüksek lisans programında yapılmıştır.

Bu tezde;  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cu}^{+2}/\text{Cl}^-$ ,  $\text{H}_2\text{PO}_2^- // \text{H}_2\text{O}$  dörtlü karşılıklı su-tuz sisteminin bünyesinde yer alan  $\text{NaCl-CuCl}_2\text{-H}_2\text{O}$  üçlü sisteminde fizikokimyasal analiz yöntemleri kullanılarak  $0^\circ\text{C}$  sıcaklıkta karşılıklı çözünürlük ve faz dengeleri araştırılmıştır.

Bu çalışmanın bütün aşamalarında yardım ve desteğini esirgemeyip bana yol gösteren, değerli hocam ve tez danışmanım Sayın Prof. Dr. Vahit ALİŞOĞLU'na ve Uzm. Vedat ADIGÜZEL'e;

Çalışmamın çeşitli aşamalarında yardımlarını esirgemeyen Arş. Gör. Füreyla Elif ÖZTÜRKKAN'a

Ertunç YARDIMCIEL, Duygu TANRIKULU, Kemal ÜSTEBAY, Mehmet ÜSTEBAY ve değerli arkadaşlarıma teşekkürlerimi sunarım.

Eğitim hayatım boyunca beni her anlamda destekleyen aileme ömrüm boyunca yanımda olmaları dileğiyle teşekkürü borç bilirim.

Haziran 2007

N. Nubar ÜSTEBAY

## İÇİNDEKİLER

	Sayfa No
ÖZET .....	III
ABSTRACT.....	IV
ÖNSÖZ.....	V
İÇİNDEKİLER.....	VI
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	IX
ÇİZELGELER DİZİNİ.....	X
1. GİRİŞ.....	1
2. SU-TUZ SİSTEMLERİNİN ARAŞTIRILMASINDA KULLANILAN FİZİKOKİMYASAL YÖNTEMLER.....	3
2.1. İzotermal yöntem.....	3
2.2. Müşahide-politermal (MP) yöntem.....	5
2.3. Diğer yöntemler.....	6
2.3.1. Termogravimetri (TG) yöntemi.....	6
2.3.2. Elektrik iletkenliği yöntemi.....	6
3. AX-BX-H <sub>2</sub> O ÜÇLÜ SİSTEMLERİN ÇÖZÜNÜRLÜK DİYAGRAMLARININ GÖSTERİLMESİ YÖNTEMLERİ.....	7
3.1. Gibss yöntemi.....	7
3.2. Rozeboum yöntemi.....	8
3.3. Schreinemakhers.....	9
3.4. Yeneke-Le Chatelier yöntemi.....	10
4. AX-BX-H <sub>2</sub> O ÜÇLÜ SU-TUZ SİSTEMLERİN FAZ DİYAGRAMLARI.....	11
4.1. AX-BX-H <sub>2</sub> O üçlü su-tuz sisteminde hidratlar ve çift tuz oluşmamış.....	11
4.2. AX-BX-H <sub>2</sub> O üçlü su-tuz sisteminde b (AX) tuzu hem hidrat hem de hidratsız iki faz oluşturmuş.....	12
4.3. AX-BX-H <sub>2</sub> O üçlü su-tuz sisteminde b (AX) tuzu hidrat oluşturmuş.....	12
4.4. AX-BX-H <sub>2</sub> O üçlü su-tuz sisteminde b (AX) ve c (BX) tuzları çift tuz oluşturmuştur.....	13
4.5. AX-BX-H <sub>2</sub> O üçlü su-tuz sisteminde b (AX) ve c (BX)	

tuzların meydana getirdikleri çift tuz hidrat oluşturmuş.....	13
<b>4.6. AX-BX-H<sub>2</sub>O üçlü su-tuz sisteminde b (AX) ve c (BX)</b>	
tuzların meydana getirdikleri çift tuz ve b (AX) tuzu hidratlar	
oluşturmuşla.....	13
<b>5. BAKIR(II) TUZLARININ ELDE EDİLİŞ YÖNTEMLERİ</b>	
<b>VE ÖZELLİKLERİ.....</b>	16
<b>5.1. Bakır (II) Klorür-CuCl<sub>2</sub>.....</b>	16
<b>5.2. Bakır(II) Nitrat-Cu(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>.....</b>	17
<b>5.3. Bakır(II) sülfat-CuSO<sub>4</sub>.....</b>	18
<b>5.4. Bakır(II) Oksit-CuO.....</b>	19
<b>5.5. Bakır(II) Hidroksit-Cu(OH)<sub>2</sub>.....</b>	20
<b>6. BAKIR(II) TUZLARINI İHTİVA EDEN SU-TUZ SİSTEMLERİ.....</b>	21
<b>6.1. (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.MnO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.CuSO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-H<sub>2</sub>O üçlü</b>	
su-tuz sistemi.....	21
<b>6.2. MnSO<sub>4</sub>-CuSO<sub>4</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü su tuz sistemi.....</b>	21
<b>6.3. (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.MnO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.CuSO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-H<sub>2</sub>O üçlü</b>	
su-tuz sistemi.....	21
<b>6.4. (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.MnSO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.FeSO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-</b>	
<b>(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.CuSO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-H<sub>2</sub>O dördümlü su-tuz sistemi.....</b>	22
<b>7. BAKIR(II) İYONUNUN ANALİZ YÖNTEMLERİ.....</b>	23
<b>7.1 Bakırın Etilendiaminle Tayini.....</b>	23
<b>7.2. Suda Çözünen Bileşiklerde Bakır Tayini .....</b>	23
<b>7.3. Bakır(II) iyonunun kompleksometri yöntemiyle tayini.....</b>	24
<b>8. KLOR İYONUNUN ANALİZ YÖNTEMLERİ.....</b>	25
<b>8.1. Volhard yöntemi ile klorür (Cl<sup>-</sup>) analizi.....</b>	25
<b>8.2. Mhor metodu ile klorür (Cl<sup>-</sup>) tayini.....</b>	26
<b>8.3. Fajans metodu ile klorür (Cl<sup>-</sup>) tayini.....</b>	27
<b>9. MATERYAL VE YÖNTEM.....</b>	29
<b>9.1. Sistemin araştırılmasında kullanılan tuzlar ve araçlar.....</b>	29
<b>9.2. Yöntem.....</b>	29
<b>9.2.1. Viskozimetre yöntemi.....</b>	29
<b>9.2.2. Piknometre yöntemi.....</b>	30
<b>9.2.3. İletkenlik yöntemi.....</b>	30
<b>9.2.4. Tuzluluk yöntemi.....</b>	31

9.2.5. Klorür iyonu tayini.....	31
9.2.6. Bakır(II) iyonunun EDTA ile tayini.....	32
9.2.7. Katı fazın Schreinemakers'in "kalıklar" yöntemiyle tayin edilmesi.....	32
<b>10.BULGULAR.....</b>	<b>35</b>
10.1. NaCl-CuCl <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O Üçlü Sistemin 0°C Sıcaklıkta Çözünürlüğü, Yoğunluğu, Viskozitesi, İletkenliği, Tuzluluğu Ve Faz Dengeleri.....	35
<b>11.SONUÇ VE YORUM.....</b>	<b>45</b>
<b>12.KAYNAKLAR.....</b>	<b>50</b>
<b>ÖZGEÇMİŞ.....</b>	<b>53</b>



## ŞEKİLLER DİZİNİ

	Sayfa No
Şekil 1. Su-Tuz sisteminin izotermal yöntemle araştırılması için kullanılan düzenek.....	4
Şekil-2. Su-tuz sistemin MP yöntemle araştırılması için kullanılan düzenek.....	5
Şekil 3. AX-BX-H <sub>2</sub> O üçlü sistemin çözünürlüğünün Gibbs yöntemi ile gösterilmesi.....	7
Şekil 4. AX-BX-H <sub>2</sub> O üçlü sistemin çözünürlüğünün Rozeboum yöntemi ile gösterilmesi.....	8
Şekil 5. AX-BX-H <sub>2</sub> O üçlü sistemin çözünürlüğünün Schreinemakhers yöntemi ile gösterilmesi.....	9
Şekil 6. AX-BX-H <sub>2</sub> O üçlü sistemin çözünürlüğünün Yeneke-Le Schaatelier yöntemi ile gösterilmesi.....	10
Şekil 7. AX-BX-H <sub>2</sub> O üçlü su-tuz sisteminin faz diyagramları türleri.....	15
Şekil 8. Katı fazın bileşiminin Schreinemakhers'in "kalık" yöntemiyle tayini.....	33
Şekil 9. NaCl-CuCl <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O üçlü su-tuz sistemin 0°C sıcaklıktaki çözünürlüğü ve faz dengeleri diyagramı (Rozeboum yöntemi).....	36
Şekil 10. NaCl-CuCl <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O üçlü sistemin çözünürlüğünün Yeneke-Le Chatelier diyagramı.....	38
Şekil 11. NaCl-CuCl <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O üçlü sistemin yoğunluğunun Yeneke-Le Chatelier diyagramı.....	40
Şekil 12. NaCl-CuCl <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O üçlü sistemin viskozitesinin Yeneke-Le Chatelier diyagramı.....	41
Şekil 13. NaCl-CuCl <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O üçlü sistemin tuzluluğunun Yeneke-Le Chatelier diyagramı.....	42
Şekil 14. NaCl-CuCl <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O üçlü sistemin iletkenliğinin Yeneke-Le Chatelier diyagramı.....	43
Şekil 15. NaCl-CuCl <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O üçlü su-tuz sistemin 0°C sıcaklıktaki çözünürlüğü yoğunluğu, viskozitesi, tuzluluğu ve iletkenliği (beşi bir arada) sistemin bileşimi ile değişimlerinin Yeneke-Le Chatelier diyagramı.....	44

## ÇİZELGELER DİZİNİ

	Sayfa No
<b>Çizelge 1.</b> NaCl-CuCl <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O üçlü su-tuz sistemin 0°C sıcaklıktaki çözünürlüğü ve dengede bulunan katı fazların bileşimi.....	35
<b>Çizelge 2.</b> NaCl-CuCl <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O üçlü su-tuz sistemin 0°C sıcaklıktaki çözünürlüğü.....	37
<b>Çizelge 3.</b> NaCl-CuCl <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O üçlü su-tuz sistemin 0°C sıcaklıktaki yoğunluğu, viskozitesi, iletkenliği ve tuzluluğu.....	39

## 1.GİRİŞ

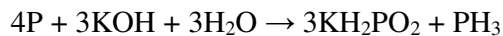
1913'de N. S. Kurnakov tarafından ortaya konulan fizikokimyasal analiz terimi, sistemin herhangi bir özelliğine dayanılarak (çözünürlük, viskozite, yoğunluk, iletkenlik vb. ) söz konusu sistemin bileşenlerinin birbirlerini karşılıklı etkileşimlerini ortaya çıkarmak için kullanılan araştırma yöntemlerinden meydana gelmiştir [1].

Fizikokimyasal analiz yöntemleriyle birçok göl, deniz ve yer altı su kaynaklarının ihtiva ettikleri tuzlar esasında kurulmuş olan üçlü, dördü ve beşli su-tuz sistemlerinin araştırılması yapılarak çizilen “Bileşim-Özellik” diyagramları esas alınıp birçok değerli kimyasal maddelerin elde edilişi, geri kazanılması, karışımlardan ayrılması ve teknolojik üretimi gerçekleştirilmiştir.

Hazar denizi Kara-Boğazgol sularından mirabilit kristal hidratın  $\text{Na}_2\text{SO}_4 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$  kristallerinin ayrılması,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Mg}^{+2} // \text{Cl}^-$ ,  $\text{SO}_4^{-2} // \text{H}_2\text{O}$  dördü karşılıklı su-tuz sisteminde çözünürlüğün ve denge fazlarının fizikokimyasal yöntemlerle araştırılması sonucu mümkün olmuştur [2].

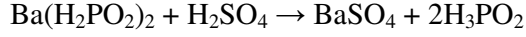
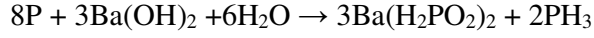
Ayrıca, kimya endüstrisinde Solvay teknolojik süreci adı ile bilinen sodanın  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  üretiminde son ürünün verimini yükseltebilmek için  $\text{Na}^+$ ,  $\text{NH}_4^+ // \text{Cl}^-$ ,  $\text{HCO}_3^- // \text{H}_2\text{O}$  dördü karşılıklı su-tuz sistemi üzerinde fizikokimyasal yöntemler kullanılarak bir araştırma gerçekleştirilmiştir [3].

Son araştırmalar fizikokimyasal analiz yöntemlerinin bir başka yönde kullanıldığını ortaya çıkarmıştır. Bilindiği gibi Anorganik Kimyada bazı elementlerin bazı kimyasal bileşiklerinin elde edilişi çok basamaklıdır ve bundan dolayı da pahalı olduklarından kullanım alanları pek gelişmemiştir. Hipofosfitler de böyle bileşiklerdir. Hipofosfitler, hipofosforöz asidin tuzları olmak üzere kuvvetli bazların sıcak çözeltileri ile fosforun karşılıklı etkileşmesi sonucu elde edilmektedir[4].



Bu yöntem hidroksitleri suda çözünebilir diğer elementler için de geçerlidir:  $\text{Ca}(\text{H}_2\text{PO}_2)_2$ ,  $\text{Ba}(\text{H}_2\text{PO}_2)_2$  ve  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_2$  gibi [5-10].

Cu(OH)<sub>2</sub> gibi hidroksitleri suda çözünmeyen elementlerin hipofosfitlerinin elde edilişi genel olarak çok basamaklı yöntemle gerçekleştirilir [11].



Bu şekilde, çok basamaklı yöntemlerle elde edilen hipofosfitler pahalı olup, kullanım alanları pek gelişmiş değildir. Bu sorunun ortadan kaldırılabilmesi için, daha kolay ve pratik olabilecek bir yöntemin hazırlanması gerekmektedir. Bunun için, NaH<sub>2</sub>PO<sub>2</sub> veya KH<sub>2</sub>PO<sub>2</sub> gibi ucuz hipofosfitler ile CuSO<sub>4</sub>, CuCl<sub>2</sub> ve Cu(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> gibi bakırın iyi çözünebilir ve ucuz olan tuzları arasındaki yer değiştirme tepkimelerine dayanan, daha kolay ve pratik olabilecek bir yöntem hazırlanabilir. Böyle bir yöntemin fizikokimyasal esaslarının hazırlanabilmesi için dörtlü karşılıklı A<sup>+</sup>, Cu<sup>+2</sup>//X<sup>-</sup>, H<sub>2</sub>PO<sub>2</sub><sup>-</sup>//H<sub>2</sub>O su-tuz sistemleri üzerinde fizikokimyasal analiz yöntemleri kullanılarak faz dengelerinin araştırılması yapılmıştır [12-20].

Önerilen bu tez çalışmasında A<sup>+</sup>, Cu<sup>+2</sup>//X<sup>-</sup>, H<sub>2</sub>PO<sub>2</sub><sup>-</sup>//H<sub>2</sub>O dörtlü karşılıklı su-tuz sistemlerinde kullanılacak bakır (II) tuzundan meydana getirilmiş olan NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü su-tuz sisteminin fizikokimyasal yöntemlerle çözünürlüğünün ve faz dengelerinin, sıvı fazların viskozitesinin, yoğunluğunun, iletkenliğinin ve tuzluluğunun araştırılması amaçlanmıştır.

## 2.SU-TUZ SİSTEMLERİNİN ARAŞTIRILMASINDA KULLANILAN FİZİKOKİMYASAL YÖNTEMLER

Denge halinde bulunan su-tuz sistemlerinde çözünürlüğün, sıvı fazın viskozite, yoğunluk, iletkenlik ve tuzluluk gibi özelliklerin, dengede bulunan katı fazların bileşimini ve fazların sınırlarını araştırmak için aşağıdaki fizikokimyasal yöntemler kullanılmaktadır.

### 2.1.İzotermal Yöntem

İzotermal yöntem Rozeboum'un [21], Schreinemahers [22] ve Van't Hoff'un [23] yaptıkları çalışmaların sonucu olarak meydana gelmiştir. Bu yöntem N.S. Kurnakov'un, S.F. Jemchujnaya'nın ve diğerlerinin [24] çalışmaları ve araştırmaları esasında daha da geliştirilerek geniş sıcaklık aralığında uygulanmıştır.

Çözünürlüğün bu yöntemle tayini için, elektro termostat ve söz konusu su-tuz sistemi içeren cam malzemelerden hazırlanmış olan özel bir düzenek kullanılır (Şekil 1).

Çözeltinin, katı faz ile denge haline daha kısa bir süre içerisinde getirilebilmesi için 600-900 devre/dakika hızla dönen elektro-karıştırıcı ile karıştırılması gerekir.

Sıcaklığı sürekli olarak sabit tutabilmek için sisteme ısı verilerek çözelti karıştırılır. Termostat genel olarak aşağı sıcaklıklar için su ile yüksek sıcaklıklar için ise mineral yağ ile doldurulur. Su-tuz sisteminin araştırılmasında kullanılan cam kabın iki kısmı vardır; 100-150 ml hacminde olan aşağı kısmına araştırılan su-tuz karışımı konulur ve yukarı kısmına çözeltinin hava ile temasını kaldırmak için civa veya mineral yağ konulur.

Çözünürlüğün tayininde karıştırma süresi, tuzların fizikokimyasal özelliklerine ve sistemin denge haline varma süresine bağlı olarak değişir. Genel olarak karıştırma süresi birkaç saat, bazen birkaç gün veya hafta olabilir.

Su-tuz sisteminin araştırılması genel olarak aşağıdaki gibi yapılır, kabın aşağı kısmına 50-70 ml damıtma su konulur ve sonra iki tuzdan birinin kristalleri ilave edilerek, sistem denge haline varana kadar karıştırılır.



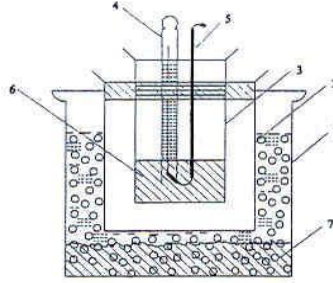
**Şekil 1.** Su-Tuz Sisteminin İzotermal Yöntemle Araştırılması İçin Kullanılan Düzenek.

Belli bir süre sonra tuzun çözünürlüğünün tayini için kaptaki çözeltilerden numune alınır, üzerinde gereken tayinler ve ölçümler yapıldıktan sonra kaptaki çözeltilere ikinci tuzun kristalleri ilave edilip, sabit sıcaklıkta sistem denge haline gelene kadar karıştırılır ve katı fazın sıvı fazdan ayrılıp çökebilmesi için 20-30 dakika bekletilir. Sonra kaptaki sıvı fazdan pipetle 2-3 ml numune alınıp uygun analitik yöntemlerle çözeltilenin bileşimi tayin edilir. Bununla beraber elektro termostatta aynı sıcaklıkta bulunan söz konusu sıvı fazın viskozite, yoğunluk, iletkenlik ve tuzluluk ölçümleri de gerçekleştirilir. Daha sonra sıvı faz ile dengede bulunan katı fazdan bir miktar numune alınıp, süzgeç kağıdı arasında kurutulup tartıldıktan sonra kimyasal analizi yapılarak bileşimi tayin edilir. Bu işlemlerden sonra, sisteme ikinci bileşenin kristallerinden bir miktarı ilave edilip kullanılan analiz, ölçüm ve tayinler yeniden tekrarlanır. Bu işlemler sistemin sıvı fazının her iki bileşenle doygun hale gelmesiyle yani ötonik noktaya ulaşmasıyla son bulur.

## 2.2.Müşahide-Politermal (MP) Yöntem

MP yöntemi çözeltinin soğutulması sırasında çözünmüş olan tuzun ilk kristallerinin meydana gelmesinin ve çözeltinin ısıtılması sırasında ise son kristallerinin kaybolmasının gözlenmesine dayanmaktadır.

MP yönteminin gerçekleştirilmesi için aşağıda gösterilen düzenek kullanılır (Şekil 2).



**Şekil 2.** Su-Tuz sistemin MP yöntemle araştırılması için kullanılan düzenek:

1-Termostat, 2-Çözelti konulan kabın dış tüpü, 3-Çözelti konulan kabın iç tüpü, 4-Termometre, 5-Cam veya platin'den hazırlanmış karıştırıcı, 6-Araştırılan su-tuz sistemi, 7-Soğutucu karışım.

İç-içe yerleştirilmiş olan iki tüpten (tüpler arasındaki hava tabakası, soğuma ve ısınma sürecinin yavaş ve sabit bir hızla yürümesini sağlar) oluşturulan çözelti kabının iç tüpüne cam karıştırıcı ile 0,1–0,2°C hassaslı bir termometre yerleştirilir. Cihaz soğutulmak üzere soğutucu karışım ile doldurulmuş olan termostata yerleştirilir. Sıcaklığı -15°C ye kadar düşürebilmek için soğutucu karışım olarak “buz + sodyum klorür kristalleri” ve daha düşük sıcaklıklar elde edebilmek için ise sıvı hava, sıvı azot, “aseton + katı karbondioksit” ve diğer soğutucu karışımlar kullanılmaktadır.

Çözeltinin hazırlanması sırasında gereken su ve tuz miktarları 0,0001 g hassaslığı ile analitik terazilerde tartılır. Çözelti devamlı olarak soğutulduğunda ve sürekli olarak karıştırıldığında çok küçük kristallerin meydana gelmesi sonucu denge haline kısa bir zamanda varılabilir. Bu tür kristaller denge veya sıcaklık değişimine daha hassas olduklarından dolayı bir deneysel noktanın tayini 20-30 dakikadan fazla sürmez. Buna göre MP yönteminin kullanılmasıyla araştırma için harcanacak olan süre “izotermal” yöntemine göre 10-15 defa kısaltılabilir.

MP yöntemle elde edilmiş deneysel sonuçlar (ilk kristallerin meydana gelmesi veya son kristallerin kayıp olması sıcaklıkları) çözeltinin derişimlerine uygun bir şekilde kare milimetrik kağıt üzerine aktarılarak bir “Bileşim-Özellik” diyagramı kurulabilir.

### **2.3.Diğer Yöntemler**

#### **2.3.1.Termogravimetri (TG) Yöntemi**

Bu yöntemle katı-katı sistemlerin eriyiklerinin soğuma eğrileri elde edilir. Bu eğriler üzerindeki ötonik ve geçiş noktalarında meydana gelen sıcaklık durakları saptanır. Daha sonra elde edilmiş soğuma eğrilerine dayanılarak araştırılan sistemin “Bileşim-Sıcaklık” diyagramı kurulur [25].

#### **2.3.2.Elektrik İletkenliği Yöntemi**

Bu yöntem çözeltinin elektrik iletkenliğinin veya elektrik direncinin ölçümüne dayanmaktadır. Çözeltinin elektrik iletkenliği araştırıldığında, molar veya eşdeğer elektrik iletkenliği esasında ölçümler yapılır [26].

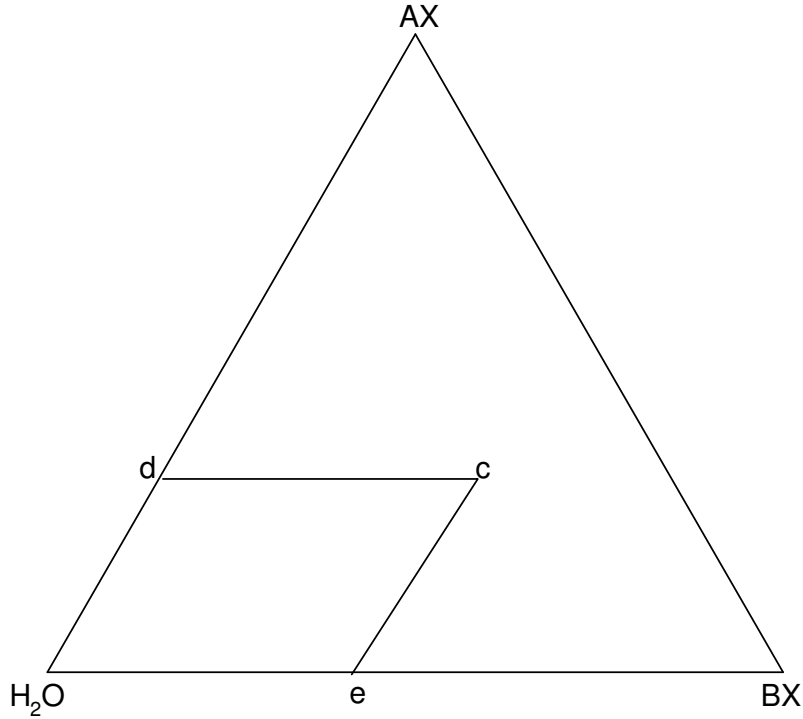


### 3.AX-BX-H<sub>2</sub>O ÜÇLÜ SİSTEMLERİN ÇÖZÜNÜRLÜK DİYAGRAMLARININ GÖSTERİLMESİ YÖNTEMLERİ

#### 3.1. Gibbs Yöntemi

Sistemin çözünürlüğünü Gibbs yöntemi ile gösterebilmek için su H<sub>2</sub>O ve iki tuz AX ve BX yer alan eşkenar üçgen kullanılır (Şekil 3) AX tuzun miktarı H<sub>2</sub>O-AX kenarı üzerindeki **a** ile, BX tuzun miktarı ise H<sub>2</sub>O-BX kenarına paralel olan ve diyagram üzerinde yer almış olan **a** noktasından başlayan doğru hat üzerindeki **b** ile gösterilir.

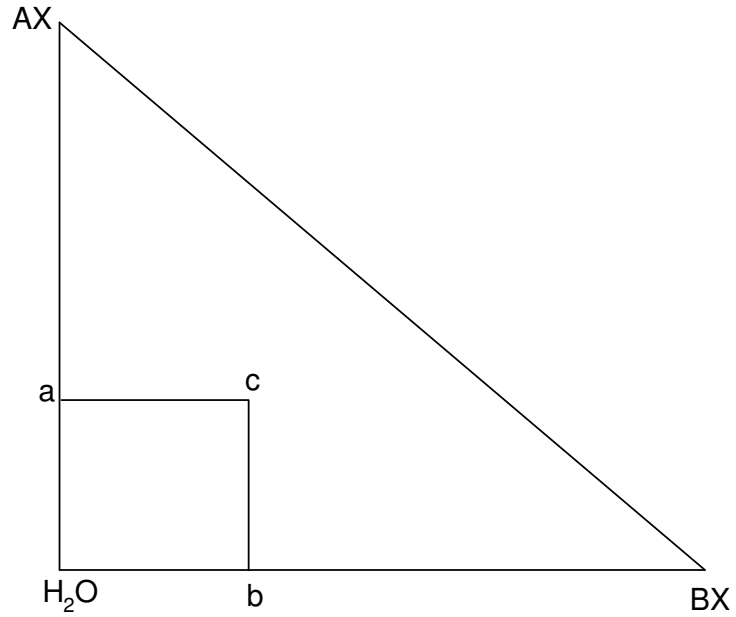
Üçgen içinde verilmiş olan herhangi bir **c** test noktasına uygun gelen sistemin bileşimini gösterebilmek için bu noktadan sistemin kenarlarına paralel hatlar çizilir ve elde edilen kesişme noktaları olan **d** noktası AX tuzun **e** noktası ise BX tuzun çözünürlüklerini belirtir.



Şekil 3. AX-BX-H<sub>2</sub>O üçlü sisteminin çözünürlüğünün Gibbs yöntemi ile gösterilmesi.

### 3.2.Rozeboum Yöntemi

Sistemin çözünürlüğünü Rozeboum yöntemi ile gösterebilmek için, eşkenar üçgen değil dik üçgen kullanılır. Diyagramın  $90^\circ$  olan köşesinde  $H_2O$  yer almakta,  $H_2O$ -AX ve BX- $H_2O$  kenarları üzerinde ise sırasıyla AX ve BX tuzlarının saf sudaki çözünürlükleri yer almaktadır (Şekil 4).

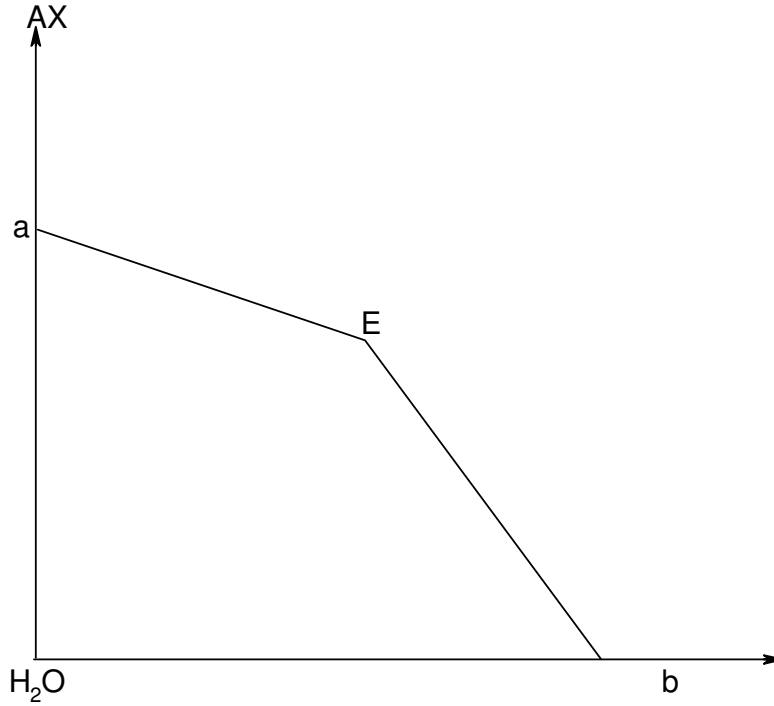


**Şekil 4.** AX-BX- $H_2O$  üçlü sistemin çözünürlüğünün Rozeboum yöntemi ile gösterilmesi.

AX tuzun miktarı  $H_2O$ -AX kenarı üzerindeki **a** ile, BX tuzun miktarı ise  $H_2O$ -BX kenarı üzerindeki **b** noktası ile, üçgen içindeki **c** noktası ise AX-BX- $H_2O$  sisteminin bileşimini göstermektedir.

### 3.3. Schreinemakhers Yöntemi

Sistemin çözünürlüğünü Schreinemakhers yöntemi ile gösterebilmek için, absis-ordinat koordinat sistemi kullanılır. Absis oku üzerindeki **b** noktası BX tuzun derişimini, ordinat oku üzerindeki **a** noktası ise AX tuzun derişimini göstermektedir. Bu yöntemde AX ve BX tuzların miktarları 100 mol suya denk gelen tuzların mol sayıları şeklinde ifade edilmektedir.



**Şekil 5.** AX-BX-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin çözünürlüğünün Schreinemakhers yöntemi ile gösterilmesi.

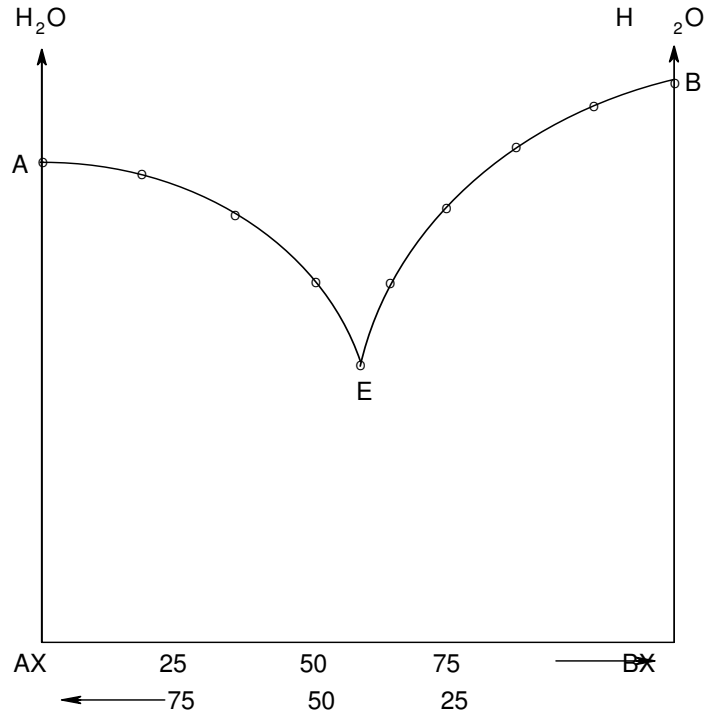
Bu diyagramda ötonik nokta olarak belirtilen E noktası, sistemin sıvı fazının, AX ve BX tuzlarının her ikisi ile de doymun durumda olduğunu gösterirken, her iki tuzun katı faz ile de dengede bulunduğunu göstermektedir.

### 3.4. Yeneke – Le Chatelier Yöntemi

Yeneke-Le Chatelier yönteminde araştırılan AX-BX-H<sub>2</sub>O sisteminin bileşimi absis oku üzerinde çözülmüş tuzların toplam miktarı 100 mol alınarak belirlenir.

Bunun için AX noktasından BX noktasına doğru BX tuzun miktarı, BX noktasından AX noktasına doğru ise AX tuzun miktarı gösterilir.

Ordinat oku üzerinde sistemin her bir test noktası 100 mol tuz karışımına uygun gelen suyun mol sayısını, AX-E-BX çözünlük eğrisi ile absis oku arasındaki saha katı faz ile dengede bulunan çözeltileri, AX-E-BX çözünlük eğrisinin yukarı kısmında kalan alan ise tuzlarla doymun olmayan çözeltileri göstermektedir.



**Şekil 6.** AX-BX-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin çözünlüğünün Yeneke –Le Chatelier yöntemi ile gösterilmesi

#### 4.AX-BX-H<sub>2</sub>O ÜÇLÜ SU-TUZ SİSTEMLERİN FAZ DİYAGRAMLARI

Her tuz doygunluk derişimine ulaşılanaya kadar az veya çok su içinde çözünür. Çözünürlük adı verilen doygunluk derişimine ulaşıldığında daha fazla eklenen tuz çözünmeyerek saf katı faz olarak kabın dibine çöker. Sabit sıcaklık ve sabit basınçta çözeltilerdeki tuzun kimyasal potansiyeli saf katı tuzun kimyasal potansiyeline eşit olduğunda çözünürlük dengesi kurulur. Karışıma eklenen ikinci bir tuz birinci tuzun sudaki çözünürlüğünü etkilemektedir. Birinci tuz ile doygun bir çözeltiliye ikinci tuz eklenmeye devam edildiğinde belli bir süre sonra çözeltili ikinci tuz ile doygun hale gelir. Tersine, karışıma eklenen birinci tuz da ikinci tuzun sudaki çözünürlüğünü değiştirmektedir. Tuzlardan biri ile doygun çözeltili yalnız bu tuzun kristalleri ile termodinamik denge halinde bulunduğu halde, tuzlardan ikisi ile de doygun çözeltili iki tuzun kristalleri ile termodinamik denge halindedir. Karışan tuzların anyon ve katyonlarının benzerlik yada farklılıklarına bağlı olarak karışımın bazı bileşimlerinde hidrat, çift tuz ve hidrat halindeki çift tuz oluşumlarına rastlanır. Hidrat, tuzlardan biri ile su arasındaki bir kimyasal bileşik; çift tuz, iki tuz arasındaki bir kimyasal bileşik; nitrat halindeki çift tuz ise çift tuz ile su arasındaki bir kimyasal bileşiktir. Özellikleri yukarıda sıralanan bu türden bazı üçlü su-tuz sistemlerin diyagram türleri aşağıda gösterilmiştir. Bu faz diyagramlarında **a** suyu (H<sub>2</sub>O) **b** ve **c** ise (AX) ve (BX) tuzları simgelemektedir. Aynı diyagramlardaki **h** noktaları oluşan hidratları, **k** noktası oluşan çift tuzu, **m** noktası ise hidrat halindeki çift tuzları göstermektedir [27]. Diyagramların sırasıyla daha ayrıntılı bir şekilde incelenmesi aşağıda gösterilmiştir.

##### 4.1.AX-BX-H<sub>2</sub>O üçlü su-tuz sisteminde hidratlar ve çift tuz oluşmamış

Bu faz diyagramında görülen **d** noktası saf **b** (AX) tuzunun sudaki çözünürlüğünü, **e** noktası ise saf **c** (BX) tuzunun sudaki çözünürlüğünü göstermektedir. Diyagramdaki **df** eğrisi **b** tuzu ile doygun çözeltiliyi, **ef** eğrisi **c** tuzu ile doygun çözeltiliyi, **f** noktası ise her iki tuz ile doygun çözeltiliyi göstermektedir. Buna göre **bdfb** bölgesinde saf **b** tuzu ve bu tuz ile doygun çözeltili olmak üzere iki faz, **cefc** bölgesinde ise saf **c** tuzu ve bu tuz ile doygun çözeltili olmak üzere yine iki faz bulunmaktadır. Bu iki faz arasındaki denge doğruları bir yelpaze görünümündedir. Diyagramdaki **fbcf** bölgesinde her iki tuz ile

doygun olan **f** çözeltisi ile saf **b** ve saf **c** tuzlarının heterojen karışımı bulunmaktadır. Su oranının yüksek olduğu **adfea** bölgesinde ne **b** tuzu ne de **c** tuzu ile henüz doymamış çözelti bulunmaktadır.

#### **4.2.AX-BX-H<sub>2</sub>O üçlü su-tuz sisteminde b (AX) tuzu hem hidrat hem de hidratsız iki faz oluşturmuş**

Diyagramın **ab** kenarı üzerindeki **h** kutup noktası **b** tuzunun su ile hidrat oluşturduğunu gösterir. Bu noktadan okunan su ve tuz miktarlarından sabit oranlar yasası uyarınca **h** hidratının kimyasal formülü bulunur. Buna göre **d** noktası saf hidratın sudaki çözünürlüğünü, **e** noktası ise saf **c** tuzunun sudaki çözünürlüğünü göstermektedir. Diyagramdaki **df** eğrisi yalnızca **h** hidratı ile doygun çözeltiyi, **fg** eğrisi yalnızca **b** tuzu ile doygun çözeltiyi, **eg** eğrisi yalnızca **c** tuzu ile doygun çözeltiyi, **f** noktası hem **h** hidratı ve hem de **b** tuzu ile doygun çözeltiyi, **g** noktası ise hem **b** tuzu ve hem de **c** tuzu ile doygun çözeltiyi göstermektedir. Su oranının yüksek olduğu **adfg** bölgesinde ne **h** hidratı; ne **b** tuzu ve ne de **c** tuzu ile henüz doymamış çözelti bulunmaktadır. İki fazlı olan **hdfh** bölgesinde **h** hidratı ve yalnızca bu hidratla doygun olan **df** çözeltisi, **bfgb** bölgesinde saf **b** tuzu ve yalnızca bu tuz ile doygun olan **fg** çözeltisi, **cegc** bölgesinde ise saf **c** tuzu ve yalnızca bu tuz ile doygun olan **eg** çözeltisi bulunmaktadır. Üç fazlı olan **bhfb** bölgesinde saf **b** tuzu, saf **h** hidratı ve bunların ikisi ile de doygun olan **f** çözeltisi, **bcgb** bölgesinde ise saf **b** tuzu, saf **c** tuzu ve bunların ikisi ile de doygun olan **g** çözeltisi bulunmaktadır.

#### **4.3.AX-BX-H<sub>2</sub>O üçlü su-tuz sisteminde b (AX) tuzu hidrat oluşturmuş**

Bir öncekine çok benzeyen bu diyagramdaki **f** noktası hem **h** hidratı ve hem de **c** tuzu ile doygun çözeltiyi göstermektedir. Diğer bölgeleri önceki diyagramlardaki gibi değerlendirilen bu diyagramın öncekilerde bulunmayan **fhcf** bölgesinde saf **h** hidratı, saf **c** katısı ve bunların ikisi ile doygun **f** çözeltisi, **hbch** bölgesinde ise saf **h** hidratı, saf **b** katısı ve saf **c** katısının heterojen karışımı bulunmaktadır.

#### 4.4. AX-BX-H<sub>2</sub>O üçlü su-tuz sisteminde b (AX) ve c (BX) tuzları çift tuz oluşturmuşlar

Diyagramın **bc** ekseninde görülen **k** noktasındaki kutuptan **b** ve **c** tuzları arasında çift tuz adı verilen yeni bir kimyasal bileşiğin oluştuğu anlaşılmaktadır. Tuzların kütlelerinin birbirine oranı **k** noktasından okunarak sabit oranlar yasası uyarınca çift tuzun formülü bulunur. Önceki faz diyagramlarından farklı olarak ortaya çıkan iki fazlı **kfgk** bölgesindeki saf **k** çift tuzu bunların ikisi ile de doymuş olan **f** çözeltisi, diğer üç fazlı **gkcg** bölgesinde ise saf **k** çift tuzu, saf **c** tuzu ve bunların ikisi ile de doymuş olan **g** çözeltisi bulunmaktadır.

#### 4.5. AX-BX-H<sub>2</sub>O üçlü su-tuz sisteminde b (AX) ile c (BX) tuzların meydana getirdikleri çift tuz hidrat oluşturmuş

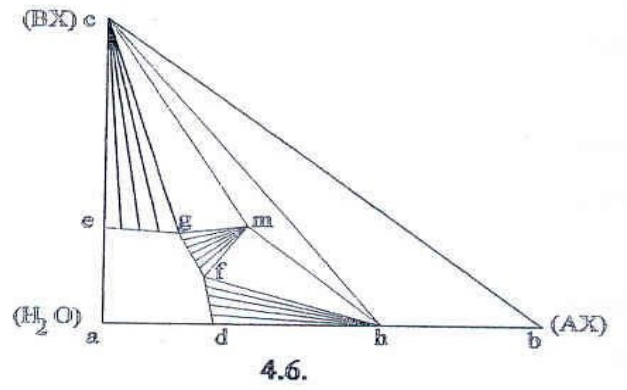
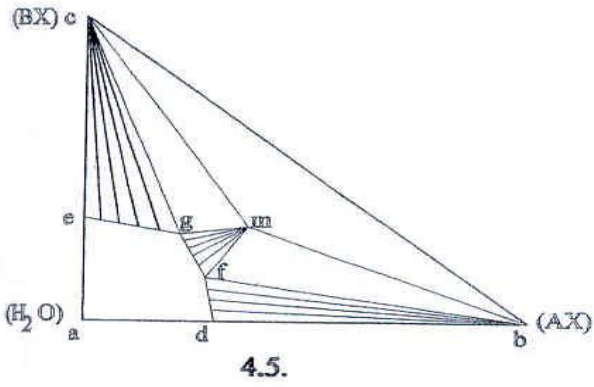
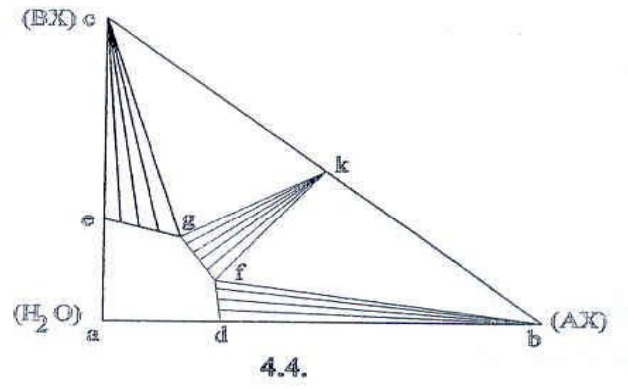
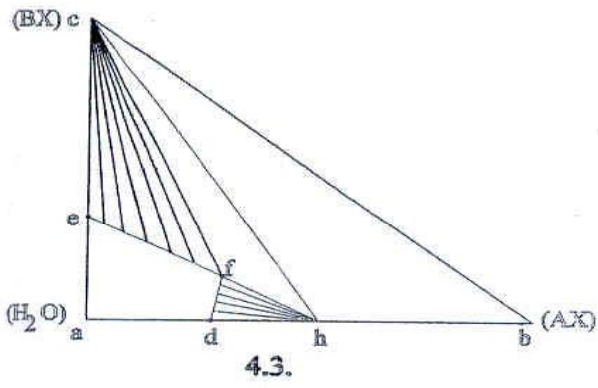
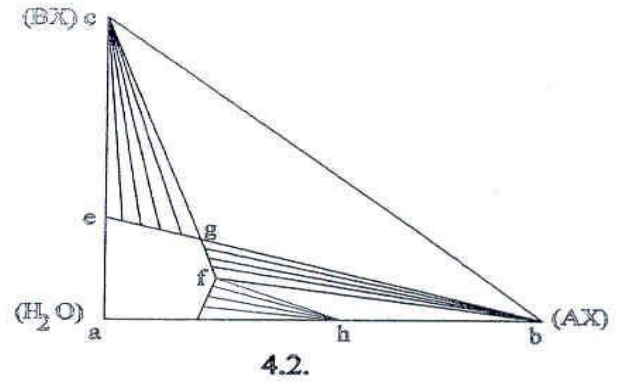
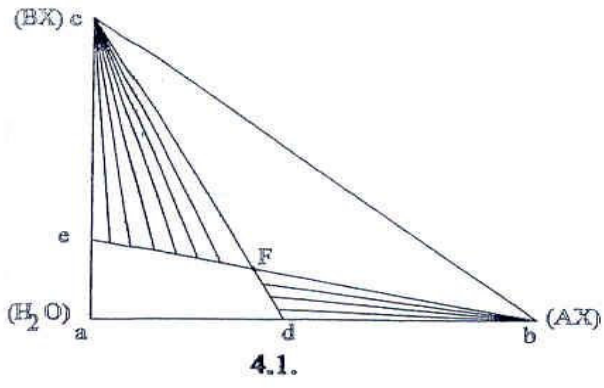
Üçgenin içindeki **m** noktası hidratı halinde bir çift tuzun oluştuğunu göstermektedir. İncelenen diyagramlardakilerden farklı görünen iki fazlı **mfgm** bölgesinde saf **m** çift tuz hidratı ve yalnızca bununla doymuş olan **fg** çözeltisi vardır. Üç fazlı olan **fbmg** bölgesinde saf **b** katısı, saf **m** çift tuz hidratı, saf **c** tuz ve bunların ikisi ile de doymuş olan **f** çözeltisi; **gmcg** bölgesinde saf **m** çift tuz hidratı, saf **c** tuzu ve bunların ikisi ile de doymuş olan **g** çözeltisi; **mcbm** bölgesinde ise saf **m** çift tuz hidratı, saf **b** tuzu ve saf **c** tuzu bulunmaktadır. Diyagramda **m** ile simgelenen çift tuz hidratının bileşen analizinden sabit oranlar yasası ile kimyasal formülüne gidilebilir.

#### 4.6. AX-BX-H<sub>2</sub>O üçlü su tuz sisteminde b (AX) ile c (BX) tuzların meydana getirdikleri çift tuz ve b (AX) tuzu hidratlar oluşturmuşlar

Diyagramdaki **h** ve **m** noktaları yukarıda değinildiği gibi sırayla **b** tuz ve çift tuzun hidratlarının oluştuğunu göstermektedir. Diğerlerinden biraz farklı görülen **mhcm** bölgesinde saf **m** çift tuz hidratı, saf **h** ve saf **c** tuzu, **fhmf** bölgesinde ise saf **h** hidratı ve saf **m** çift tuz hidratı ile bunların ikisi ile de doymuş olan **f** çözeltisi bulunmaktadır. Çözünürlük sıcaklığa bağlı olduğundan sıcaklık değiştiğinde faz diyagramında görülen **d**, **e**, **f** ve **g** noktalarının yerleri de değişir. Değişen sıcaklıkla

hidrat, çift tuz, çift tuz hidratları oluşmayabilir yada ortadan kalkabilir. Bu nedenle faz diyagramlarının hangi sıcaklıkta çizildiği kesin olarak belirtilmelidir. Bu tür sistemlerde basıncın önemli bir etkisi olmamaktadır.





Şekil 7. AX-BX-H<sub>2</sub>O üçlü su tuz sisteminin faz diyagramları türleri

## 5.BAKIR(II) TUZLARININ ELDE EDİLİŞ YÖNTEMLERİ VE ÖZELLİKLERİ.

### 5.1. Bakır (II) Klorür-CuCl<sub>2</sub>

Bakır (II) Klorür'ün susuz formu kahverengi-sarı monoklinik kristaller şeklindedir. Nemli havada ışığa maruz kaldığında dihidrat formuna dönüşür. Yoğunluğu 3,40 g/ml ve erime noktası bozunmayla 630°C civarında olan bakır klorür sulu çözeltilerde çözünebilen iyonik bir çözeltilidir. Suda, etanolde ve asetonda çözünmektedir. Dihidrat formu ise yeşile yakın mavi ortorombik kristal olarak bulunmaktadır. Yoğunluğu 2,51 g/ml olup 100°C'de bozunmaktadır. Suda ve etanolde susuz formundan daha fazla olmak üzere çok iyi çözünmektedir. Asetonda da çözünmekte fakat eterde çözünmemektedir.

Cu<sup>+2</sup>,ye klorun koordinasyonu kısmen meydana gelir. Bu demektir ki, yeşil renkli bakır (II) klorürün derişik çözeltilisinin, mavi renkli [Cu(H<sub>2</sub>O)<sub>6</sub>]<sup>+2</sup> kombinasyonu ile yeşil veya kırmızı renkli halojen kompleksleri oluşur. CuCl<sub>2</sub> lewis asidi olarak zayıftır, örneğin bakır (II) klorürün HCl ile reaksiyonundan CuCl<sub>3</sub><sup>-</sup> ve CuCl<sup>-2</sup> kompleksi oluşur [28-30].



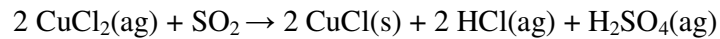
Bakır (II) klorür pridin veya trifenilfosfin oksit gibi ligantlarla diğer koordinasyon komplekslerinin çeşitli türlerini oluştururlar [31].



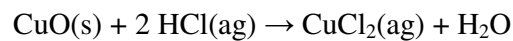
Bazı tersiyer aminler ve trifenilfosfin gibi fosfinler olarak adlandırılan diğer ligantlarla etkileştiğinde ve yaklaşık 1000°C yüksek sıcaklıkta ısıtıldığında bakır (I) klorüre indirgenir. İndirgenme reaksiyonu aşağıdaki gibidir.



CuCl<sub>2</sub> genellikle sulu çözeltilerdeki reaksiyonlara daha çok uygundur ve sülfür dioksit gibi bir indirgeyici kullanılarak CuCl elde edilir.

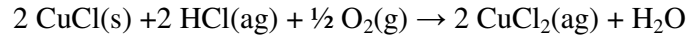
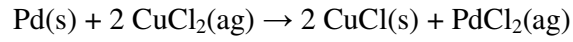


Bakır (II) klorürün eldesi; bakır (II) oksit, bakır (II) hidroksit veya bakır (II) karbonatın hidroklorik asit ile muamelesi sonucu olur.



Susuz bakır (II) klorür bakır ve klorür elementlerinin etkileşmesi sonucu elde edilir.  $\text{CuCl}_2$ ,  $\text{CaCl}_2$ 'nin buz banyosunda soğutulmasıyla sıcak seyreltik HCl içinde kristallendirilmesi ile saflaştırılabilir.

Bakır (II) klorürün endüstrideki esası Wacker prosesinde paladyum (II) klorür ile beraber katalizör olarak kullanılır. Bu proseste su ve hava kullanılarak etilen asetaldehite dönüştürülür. Paladyum (II) klorür paladyuma indirgenir ve  $\text{CuCl}_2$   $\text{PdCl}_2$ 'yi yeniden oksitlemeye yarar. Hava  $\text{CuCl}$ 'yi  $\text{CuCl}_2$ 'ye çevirir.



Bakır(II) klorür organik sentezlerde oldukça geniş bir kullanım alanına sahiptir [32]. Aromatik hidrokarbonların klorlanması etkilidir. Bu işlem sıklıkla alüminyum oksidin varlığında yapılır.  $\text{CuCl}_2$  karbonil bileşiklerin alfa pozisyonlarında etkilidir [33].

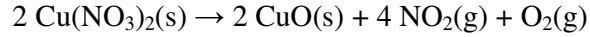
Bakır(II) klorür, kumaş baskı ve boyamada renk sabitleyici ve kraking katalizörü ve izomerizasyonda koku giderici, petrol endüstrisinde koku giderici ve kükürtün uzaklaştırmada kullanılır. Diğer önemli uygulamaları; alüminyumun bakır kaplamasında, demir ve kalay için renk banyosunda, seramik ve camların pigmentlerinde, fotoğrafçılıkta sabitleştirici ilaç olarak, maden cevherinden civa ekstraksiyonunda, görünmez mürekkeplerde ve çeşitli bakır tuzlarının elde edilmesinde kullanılır [34].

## 5.2.Bakır (II) Nitrat- $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$

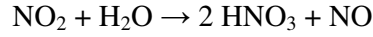
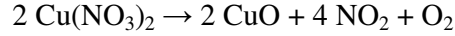
Kimyasal bileşimi  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$  olan bakır(II) nitrat susuz formda katı ve mavi renkli kristaller şeklinde olup, sulu formda da mavi renklidir. Bakır nitratın hidrat formu genellikle kimyasal galvanik hücre reaksiyonlarını oluşturduğundan okul laboratuvarlarında kullanılır.

Bakır nitratin sulu ve susuz formları olağan üstü farklı özelliklere sahiptirler. Susuz bakır nitrat parlak mavi renkli bir madde olup uçucu bir katıdır. Gaz fazında kare düzlemdir. Bakır atomu dört oksijen atomu tarafından çevrelenir.

Sulu bakır nitrat  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot (\text{H}_2\text{O})_{2.5}$  kristali şeklindedir. Su ve nitrat anyonu tarafından çevrelenen bakır oktahedral bir yapıdadır [35]. Bu hidrat yapısı  $170^\circ\text{C}$ 'de bozularak bakır(II) oksit, azot dioksit ve oksijene dönüşür.



Bakır nitratin yüksek sıcaklıkta bozunmasıyla ve çıkan azot dioksit gazının su içerisinde geçirmesiyle nitrik asit oluşmaktadır. Kimyasal denklem aşağıdaki gibidir.



Eğer bakır etil etanoat(asetat) da diazot tetraoksit çözeltisiyle muamele edilirse mavi renkli bir çözelti elde edilir. Buharlaştırıldığında mavi renkli bir katı oluşur, bu katı  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot \text{N}_2\text{O}_4$  olup ve ısıtıldığında  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$ 'a dönüşür. Bu bileşik kovalenttir, uçucudur, kolaylıkla süblimleşir ve mavi renkli buhar ortaya çıkar [36].



Bakır(II) oksit veya karbonat, nitrik asitte çözüldüğünde su eklenmesiyle  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$  genel formüllü hidratlaşmış nitrat elde edilir. Bu hidratlaşmış nitrat vakum altında ısıtıldığında dehidratlaşır ve ürün susuz tuz değil, bazik nitrat olur.

Bakır nitratin asetik anhidrat ile bileşimi aromatik bileşiklerde etkili bir ayıraçtır [37].

### 5.3.Bakır (II) Sülfat- $\text{CuSO}_4$

Bakır (II) Sülfat ticari olarak üretilebildiğinden beri satın alınır, laboratuarda hazırlanmaz. Bakır (II) sülfat farklı bakır (II) bileşiklerinin sülfürik asit ile reaksiyonu sonucu elde edilir.

Bakır sülfat doğada pentahidrat,  $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ , şeklinde bulunmaktadır ve kalkantit minerali olarak bilinmektedir, mavi renkli bir kristaldir. Bu kristalde her bir  $\text{Cu}^{+2}$  iyonu karenin köşelerindeki dört su molekülü ile çevrelenmiştir ve beşinci su molekülü hidrojen bağlarıyla bağlıdır.

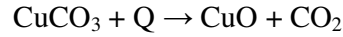
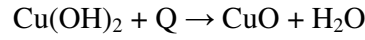
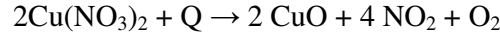
Bakır(II) sülfat çözüldükten sonra ısıtılır, pentahidratın tamamı kurutulduğunda 150°C'de beş tane su molekülü, 110°C'de de dört tane su molekülü zarar görür. 650°C'de bakır(II) sülfat, bakır(II) okside ve sülfür triokside parçalanır.

Bakır(II) sülfat, bakır ile metal plakalarda kullanılabilir. Mantar öldürücü, odun koruyucu, akımla kaplamada, fotoğrafçılıkta tab edilecek materyale ışığı arttırıcı olarak ve su için olan bazı kimyasal deneylerde kullanılır [38].

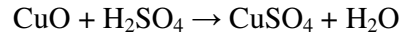
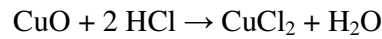
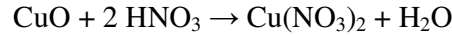
Bakır(II) sülfat susuz formdayken beyaz renklidir su ile muamele edildiğinde mavi renge döner. Bazı kimyasal deneylerde CuSO<sub>4</sub> indikatör olarak kullanılır. Alev deneylerinde CuSO<sub>4</sub>'ün bakır iyonları şiddetli mavi renkte bir ışık yaymaktadır.

#### **5.4.Bakır (II) Oksit-CuO**

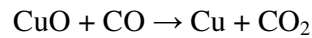
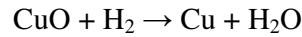
Bakır(II) oksit 1200°C'nin üzerinde eriyerek iyonik yapıya geçen siyah renkli bir katıdır. Suda çözünmez, yarı iletkendir. CuO havada bakırın ısıtılmasıyla oluşabilir, bu durum bakır (II) oksidin bakır (I) oksitle oluşmasıdır. CuO; bakır (II) nitrat, bakır (II) hidroksit ve bakır (II) karbonatın ısıtılmasıyla daha iyi hazırlanır.



Bakır (II) oksit bazik oksittir, bu yüzden hidroklorik asit, sülfürik asit ve nitrik asit gibi mineral asitlerinde çözünerek benzer bakır (II) tuzları verir.



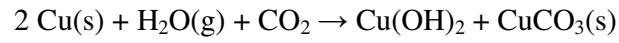
Bakır (II) oksit, hidrojen ve karbon monoksit metalleriyle etkileşerek bakır metaline indirgenir.



Bakır (II) oksit, seramikte pigment olarak ve kuru pil bataryalarının üretiminde kullanılır.

### 5.5.Bakır (II) Hidroksit-Cu(OH)<sub>2</sub>

Bakır(II) hidroksit metal bakır atomunun hidroksit tuzudur. Atomik kütlesi yaklaşık 97,561 olup rengi mavidir, suda çözünmez. Bakır (II) hidroksit, bakır (II) sülfatın seyreltik çözeltisine, çok küçük miktarda sodyum hidroksitin ilave edilmesiyle hazırlanabilir. Bakırın, nemli havayla yavaş bir şekilde muamele edilmesi sonucu açık yeşil renkli bir tabaka meydana gelir. Bu yeşil madde 1:1 oranında Cu(OH)<sub>2</sub> ve CuCO<sub>3</sub> karışımıdır [39].



## **6.BAKIR(II) TUZLARINI İHTİVA EDEN SU-TUZ SİSTEMLERİ**

### **6.1.(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.MnO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.CuSO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-H<sub>2</sub>O Üçlü Su-Tuz Sistemi**

(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.MnO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.CuSO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-H<sub>2</sub>O üçlü sistemi, Bertschowza B tarafından araştırılmıştır [40]. Araştırma sırasında sistemin sıvı fazının yoğunluğu tayin edilmiştir. Söz konusu sistemin araştırılması izotermik yöntemle 7°C'de gerçekleştirilmiştir.

### **6.2.MnSO<sub>4</sub>-CuSO<sub>4</sub>-H<sub>2</sub>O Üçlü Su Tuz Sistemi**

MnSO<sub>4</sub>-CuSO<sub>4</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemi Stortenbecker W tarafından araştırılmıştır [41]. Söz konusu sistemin araştırılması izotermik yöntemle 18°C'de araştırılmıştır.

Sonuç olarak sıvı faz ile dengede bulunan iki katı tespit edilmiştir: CuSO<sub>4</sub>.MnSO<sub>4</sub>.5H<sub>2</sub>O ve CuSO<sub>4</sub>.MnSO<sub>4</sub>.7H<sub>2</sub>O

CuSO<sub>4</sub>.MnSO<sub>4</sub>.5H<sub>2</sub>O katı faz aşağıdaki bileşimli(% mol)sıvı faz ile dengede bulunduğu saptanmıştır: CuSO<sub>4</sub>- 2,23, MnSO<sub>4</sub>- 0,00 dan başlayarak CuSO<sub>4</sub>- 0,995 ve MnSO<sub>4</sub>- 5,23 e kadar sistemin bu bileşim değişimi aralığında sıvı fazdan CuSO<sub>4</sub>.MnSO<sub>4</sub>.5H<sub>2</sub>O kristallerinin çöktüğü incelenmiştir.

Sıvı fazdan CuSO<sub>4</sub>.MnSO<sub>4</sub>.7H<sub>2</sub>O ikili tuzun kristallerinin çökmesi ise sıvı fazın aşağıdaki bileşim değişimi aralığında gerçekleşmiştir: CuSO<sub>4</sub> 0,995 ve MnSO<sub>4</sub>-5,23 den, CuSO<sub>4</sub>- 0,00 ve MnSO<sub>4</sub>-6,87 ye kadar.

### **6.3.(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.MnO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.CuSO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-H<sub>2</sub>O Üçlü Su-Tuz Sistemi**

(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.MnSO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.CuSO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-H<sub>2</sub>O üçlü sistemi Trethakov Y.D ve Simakova L.K tarafından araştırılmıştır [42]. Söz konusu sistemin araştırılması izotermik yöntemle 40°C'de yapılmıştır.

#### **6.4.(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.MnSO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.FeSO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.CuSO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-H<sub>2</sub>O Dörtlü Su-Tuz Sistemi**

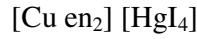
(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.MnSO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.FeSO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.CuSO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O-H<sub>2</sub>O dörtlü sistemi Trethakov Y.D ve Simakova L.K tarafından araştırılmıştır [43]. Söz konusu sistemin araştırılması izotermik yöntemle 40°C’de yapılmıştır.



## 7. BAKIR(II) İYONUNUN ANALİZ YÖNTEMLERİ

### 7.1 Bakırın Etilendiaminle Tayini

0,1 gramdan daha az bakır ihtiva eden çözeltinin hacmi 100 ml ye tamamlanır. Daha sonra, üzerine karıştırılarak damla damla %5'lik etilendiamin çözeltisi konur. Rengin daha fazla koyulaşmadığı andan itibaren birkaç damla daha çözelti ilave edilir. Bundan sonra çözeltiye 2 gram amonyum nitrat ve 2 gram da potasyum iyodür konup kaynayana kadar ısıtılır. Üzerine derişik sıcak potasyum civa (II) iyodür kompleksi damla damla ilave edilir. Meydana gelen çökelek bir süre kendi haline bırakılarak soğutulur. Soğuk çökelek süzülür ve 100 ml'sinde üç damla etilendiamin çözeltisi, 0,1 gram civa (II) klorür, 1 gram amonyum nitrat ve 2 gram potasyum iyodür ihtiva eden bir çözeltiyle birkaç defa yıkanır. Bundan sonra çökelek %95 lik alkolle, onu takiben de susuz eterle yıkanır ve sabit tartıma getirilir. Sabit tartıma getirilen madde,



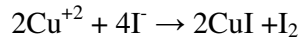
en = etilendiamin

Bu çökelek içindeki bakır miktarı, çökeleği 0,0714 ile çarparak bulunur.

### 7.2. Suda Çözünen Bileşiklerde Bakır Tayini

Bakır tayininde ortam nötr veya zayıfça asidik olmalıdır. Bunun için bakır çözeltisine, bazik bakır karbonat çökünceye kadar sodyum karbonat konur. Daha sonra 1-2 ml asetik asit ilavesiyle çökelek çözülür.

Bakır tayini,



reaksiyonuna dayanır. Açığa çıkan iyot, ortama konan potasyum iyodürün fazlasında çözünür ve potasyum triiyodür iyonunu verir.

Yaklaşık 2 gram bakır tuzu bir miktar suda çözünüp hacmi 250 ml'ye tamamlanır. Numuneden 50 ml alınarak hafif yeşilimsi bir çökelek meydana gelinceye kadar derişik sodyum karbonat çözeltisi damlatılır. Sonra 1-2 ml asetik asit ilave edilerek çökelek çözülür. Asetik asitli çözeltiye, yaklaşık 1 gram katı potasyum iyodür konur ve

bekletilir. Açığa çıkan iyot nedeniyle çözeltinin rengi koyu kahve renkli olur. Bu renk hafif sarıya dönene kadar ayarlı tiyosülfat çözeltisiyle titre edilir. Bu anda 2 ml nişasta çözeltisi konur ve çözeltinin mavi rengi kaybolana kadar titre edilir. Daha sonra 1 gram potasyum veya amonyum sülfosiyaniür ilave edilir, renk tekrar koyulaşır. Koyu mavi renk tamamen kaybolana kadar ayarlı tiyosülfatla titre edilir.

Titration sonuna doğru sülfosiyaniür ilave edilmesinin nedeni, bakır iyodürün adsorbe ettiği iyodu serbest bırakmasını sağlamaktır. Sülfosiyaniür ilavesiyle bakır iyodür yerine, ondan daha az çözünen bakır sülfosiyaniür meydana gelir ve bakır iyodür tarafından adsorplanmış olan iyot serbest hale geçer.

Elde edilen sonuçlara dayanılarak bakır iyonunun miktarı (%kütle) aşağıdaki formüle göre hesaplanır.

$$\%Cu = \frac{N \cdot V \cdot \text{meg} \cdot 5.100}{T}$$

**N**-tiyosülfat çözeltisinin normalitesi,

**V**-tiyosülfat çözeltisinin titration sırasında harcanmış olan hacmi(ml),

**meg**-Cu iyonunun mili eşdeğer gramı (0,06354 gram),

**T**-bakır iyonu bulunduran numunenin tartımı (gram olarak).

### **7.3. Bakır(II) İyonunun Kompleksonometri Yöntemiyle Tayini**

Cu (II) içeren çözeltiden 10 ml örnek alınıp 250 ml lik bir erlene aktarılır. Üzerine koyu mavi renk oluşuncaya kadar piridin ilave edilir ve birkaç damla Pyrocatechol Violet konduktan sonra standart 0,02 M EDTA çözeltisi ile renk koyu maviden yeşile dönünceye kadar titre edilir [44].

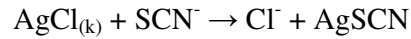
## 8 KLOR İYONUNUN ANALİZ YÖNTEMLERİ

### 8.1. Volhard Yöntemi ile Klorür (Cl<sup>-</sup>) Analizi

Volhard yöntemi bazı halojenür iyonlarının analizini sağlayan dolaylı bir titrasyondur. Bunun belirli miktarında aşırı AgNO<sub>3</sub> çözeltisi analit çözeltisine eklenir, aşırı Ag standart SCN<sup>-</sup> çözeltisi ile geri titre edilir.



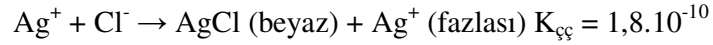
Volhard yönteminin dolaylı kullanımında tepkime ortamında oluşan AgI, AgBr, AgSCN çökeleklerinin, geri titrasyondan önce ortamdan uzaklaştırılmasına gerek yoktur. Fakat AgCl çökeleğinin geri titrasyondan önce ortamdan uzaklaştırılması gerekir; çünkü AgCl, AgSCN'den daha çok çözünür. Dolayısıyla geri titrasyon sırasında aşağıdaki tepkime gerçekleşir.



AgCl geri titrasyondan önce ya ortamdan süzülerek ayrılır ya da çökeleğin üzeri bir organik madde ile örtülerek çözeltiyle teması önlenir. Bu amaçla en çok nitrobenzen ve karbon tetraklorür kullanılır, organik faz geri titrasyondan önce birkaç ml olarak ortama ilave edilir.

Eğer analiz yapılacak madde katı ise 100-110 °C'de bir saat kadar kurutulur ve 0,5-0,6 g arasında 0,1 mg duyarlıkta tartılır. Dikkatle erlene alınır ve yaklaşık 100 ml saf suda çözülür. Eğer örnek sıvı ise analizi yapılacak numuneden 10 ml alınır 5 ml HNO<sub>3</sub> ilave edilir. Daha sonra çözeltiye hacmi tam olarak V<sub>Ag</sub> (yaklaşık 15 ml) bilinen ayarlı AgNO<sub>3</sub> çözeltisi, 5 ml demir (III) amonyum sülfat belirteci ve 5 ml kloruz nitrobenzen eklenir. Çözelti kuvvetlice çalkalanır. Ortamdaki Ag<sup>+</sup> iyonunun fazlası ayarlı KSCN çözeltisi ile dönüm noktasında oluşan FeSCN<sup>+2</sup> kompleksinin kırmızı-kahverengi bir dakika kalıcı olana kadar titre edilir. Harcanan titrant hacmi (V<sub>KSCN</sub>) not edilir.

Titrasyondan önce;



Titrasyon tepkimesi



Dönüm noktasında



Elde edilen sonuçlara dayanılarak klorür iyonunun miktarı (% kütle) aşağıdaki formüle göre hesaplanır.

$$\% \text{Cl}^- = (\text{V}_{\text{Ag}} \cdot \text{N}_{\text{Ag}} - \text{V}_{\text{KSCN}} \cdot \text{N}_{\text{KSCN}}) \cdot \text{meg} \cdot 100/\text{T}$$

$\text{N}_{\text{Ag}}$  = ayarlı  $\text{AgNO}_3$  çözeltisinin normalitesi,

$\text{N}_{\text{KSCN}}$  = ayarlı  $\text{KSCN}$  çözeltisinin normalitesi,

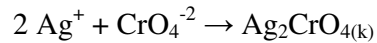
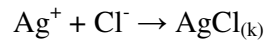
$\text{V}_{\text{Ag}}$  = eklenen  $\text{AgNO}_3$  hacmi, ml

**meg** = klorür iyonunun mili eşdeğer gramı (0,003547),

**T** = klorür iyonu bulunduran numunenin tartımı (gram olarak)

## 8.2. Mohr Metodu ile Klorür ( $\text{Cl}^-$ ) Tayini

Bu yöntem en çok  $\text{Cl}^-$  ve  $\text{Br}^-$  iyonlarının analizinde kullanılır, eşdeğer nokta titrant ( $\text{AgNO}_3$ ) ile indikatör ( $\text{CrO}_4^{-2}$ ) arasında oluşan tuğla kırmızısı rengi  $\text{Ag}_2\text{CrO}_4$  çökeleğinin oluşumu ile belirlenir.



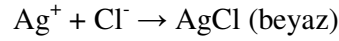
Titrasyon işleminde analit çözeltisine  $\text{K}_2\text{CrO}_4$  eklendiğinde, çözeltinin rengi sarı olur. Titrasyon başladığında tuğla renkli  $\text{Ag}_2\text{CrO}_4$  çökeleği oluşsa bile çabucak kaybolur, çünkü  $\text{Ag}_2\text{CrO}_4$  daha az çözünen  $\text{AgCl}$  haline döner. Eşdeğer noktada ise ortamda  $\text{Cl}^-$  bulunmadığından  $\text{Ag}_2\text{CrO}_4$  oluşumu gözlemlenir.

Bu titrasyonda iki önemli faktör vardır. Bunlardan biri  $\text{CrO}_4^{2-}$  derişimi, ikincisi ise çözelti pH'sıdır.

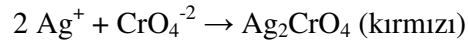
Analizi yapılacak katı numune, 100-110 °C da bir saat kadar kurutulur ve 0,20-0,25 g arasında 0.1 mg duyarlıkla tartılır. Dikkatle erlene aktarılır ve yaklaşık 50 ml damıtık suda çözülür. % 5 lik  $\text{K}_2\text{CrO}_4$  çözeltisinden 1,0 ml eklenir. Çözelti ayarlı 0.1 N  $\text{AgNO}_3$  çözeltisi ile  $\text{Ag}_2\text{CrO}_4$  ın kırmızı rengi kalıcı olana kadar titre edilir. Dönüm noktasına yaklaşılırken titrant çok yavaş eklenmelidir. Öncelikle çözeltide oluşan kırmızı renk gidene kadar çözelti çalkalanmalı daha sonra titrant damla damla eklenmelidir. Harcanan titrant hacmi ( $V_{\text{Ag}}$ ) not edilir.

Verilen numune çözelti halinde ise, % 5 lik  $\text{K}_2\text{CrO}_4$  çözeltisinden 1.0 ml eklenir ve doğrudan  $\text{AgNO}_3$  ile yukarıda anlatıldığı şekilde titre edilir.

Titrasyon Tepkimesi



Dönüm Noktasında



Elde edilen sonuçlara dayanılarak klorür iyonunun miktarı (% kütle) aşağıdaki formüle göre hesaplanır:

$$\% \text{Cl} = \frac{\text{N.V.meg.100}}{\text{T}}$$

$N_{\text{Ag}}$ - gümüş nitrat çözeltisinin normalitesi,

$V_{\text{Ag}}$  -gümüş nitrat çözeltisinin titrasyon sırasında harcanmış olan hacmi (ml),

**meg**-klorür iyonunun mili eşdeğer gramı (0,03547)

**T**-klorür iyonu bulunduran numunenin tartımı (gram olarak)

### 8.3. Fajans Metodu ile Klorür (Cl) Tayini

Adsorpsiyon indikatörleri kullanılarak yapılan titrasyon yöntemine Fajans yöntemi denir. Adsorpsiyon indikatörü, organik bir bileşik olup çökeltme titrasyonunda oluşan katının yüzeyinde adsorplanma eğilimi gösterir. İdeal olarak adsorpsiyon, eşdeğer

noktada oluşur ve renk, çözeltinin renginden farklı bir renge dönüşür. Tipik bir adsorpsiyon indikatörü floresseindir ve Cl<sup>-</sup> nin AgNO<sub>3</sub> ile titrasyonunda kullanılır.

%0,2'lik Flüoressein İndikatör Çözeltisi: 0,2 g flüoressein bir miktar %70'lik alkol içerisinde çözüldükten sonra son hacim 100 mL'ye %70'lik alkol ile tamamlanır.

Eğer analiz edilecek örnek katı ise 100-110 °C da bir saat kadar kurutulur ve 0,20-0,25 g arasında dördüncü hanesine kadar hassas olarak tartılır. Üzerine 50 mL saf su ilave edilir. Eğer örnek sıvı ise üzerine bir miktar saf su eklenerek deneye başlanır. Çözeltinin pH'sı 7 oluncaya kadar duruma göre klorsuz nitrik asit veya klorsuz kalsiyum karbonat eklenir. pH'sı ayarlanan çözeltiliye flüoressein indikatör çözeltisinden 6-7 damla ve dekstrin çözeltisinden 4-5 damla eklenir. Erleneki çözeltinin rengi kırmızı olduğu ana kadar 0,1 N ayarlı gümüş nitrat ile titre edilir. Titrasyon sırasında harcanan gümüş nitrat hacmi not edilir (V).

$$\% \text{Cl} = \frac{\text{N.V.meg.100}}{\text{T}}$$

**N<sub>Ag</sub>** = ayarlı AgNO<sub>3</sub> çözeltisinin normalitesi

**V<sub>Ag</sub>** = harcanan AgNO<sub>3</sub> hacmi, ml

**meg** = klorür iyonunun mili eşdeğer gramı (0,003547)

**T** = klorür iyonunu bulunduran numunenin tartımı (gram olarak)

## 9.MATERYAL VE YÖNTEM

### 9.1. Sistemin Araştırılmasında Kullanılan Tuzlar ve Araçlar

NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü su-tuz sisteminin oluşturulması için, Riedel-de Haen CuCl<sub>2</sub>.2H<sub>2</sub>O ve NaCl'ün saflaştırılmış tuzları kullanılmıştır.

Sistemde çözünürlüğün, viskozitenin, yoğunluğun, iletkenliğin, tuzluluğun ve dengede bulunan fazların araştırılması için elektro termostatta yerleştirilmiş özel cam kap kullanıldı.

Sistemin sıvı fazının viskozitesinin ölçümü Ostwald viskozimetresi, yoğunluğunun tayini 10 ml hacmi olan piknometre kullanılarak iletkenlik ve tuzluluk ise “Cond 315i” kondüktometri cihazı kullanılarak yapılmıştır.

### 9.2. Yöntemler

#### 9.2.1.Viskozimetre Yöntemi

Bu yöntem ile çözeltinin derişiminin ve bileşiminin deęişimine baęlı olarak katı faz ile dengede bulunan çözeltinin viskozitesi tayin edilir. Bu amaç için genel olarak Ostwald viskozimetresi kullanılır. Ölçümü yapmak için, viskozimetrenin aynı sıcaklığı alabilmesi için araştırılan çözelti termostata yerleştirildikten sonra 10-15 dakika bekletilir.

Bundan sonra ise numune sıvının akış süreleri tayin edilir. Hesaplama aşağıdaki Poizeyle formülüne dayanılarak yapılır.

$$\eta_x = (\eta_{H_2O} \cdot \tau_x \cdot \rho_x) : (\tau_{H_2O} \cdot \rho_{H_2O})$$

burada  $\eta$  – viskozite katsayısı ( $10^3 \times N \times s \times m^{-2}$ ),

$\tau$  – akış süresi (saniye ),

$\rho$  – yoğunluk ( $kg/m^3$ ).

### 9.2.2. Piknometre Yöntemi

Bu yöntem denge halinde bulunan çözeltinin (sıvı fazın) yoğunluğunun tayinine dayanmaktadır. Yoğunluk ölçümünü gerçekleştirmek için 5-10 ml hacmi olan piknometre kullanılır. Pipet ile araştırılan sistemin sıvı fazından numune alınıp piknometreye aktarılır (gereken hacimden biraz fazlası alınır) ve termostatta çözeltinin bulunduğu aynı sıcaklıkta 15-20 dakika bekletilir. Daha sonra süzgeç kağıdının küçük bir parçası kullanılarak piknometredeki çözelti tam olarak çizgiye kadar getirilir. Piknometre bir süzgeç kağıdı arasında kurutulduktan sonra tartılıp aşağıdaki formüle göre hesaplama yapılır:

$$d^{(t)}_{\text{çöz.}} = [(m_{\text{çöz.}} - m_o) : (m_{\text{H}_2\text{O}} - m_o)] \times D^{(t)}_{\text{H}_2\text{O}}$$

burada **mçöz** - piknometrenin çözelti ile tartısı,

**mH<sub>2</sub>O** – piknometrenin destile su ile tartısı,

**m<sub>o</sub>** - boş piknometrenin tartısı,

**D<sup>(t)</sup>H<sub>2</sub>O**- suyun (t) sıcaklıktaki yoğunluğu.

### 9.2.3. İletkenlik Yöntemi

Bir çözeltinin iletkenliği, çözeltinin iyon konsantrasyonuna, çözücünün cinsine ve sıcaklığa bağlıdır.

Bu yöntem ile çözeltinin sabit sıcaklıkta farklı iyon konsantrasyonlarında iletkenlik ölçümü yapılmıştır. Bu ölçüm “Cond 315i” kondüktometri cihazı kullanılarak yapılmıştır.

İletkenlik ölçümünü gerçekleştirmek için 1 ml araştırılan çözeltiden alınarak saf su ile 100 ml ye tamamlanır. Daha sonra iletkenlik ölçümünün yapılacağı kaba hazırlanmış olan çözeltiden konular ve termostat içerisinde soğutulur. Soğutma işlemi istenen değere ulaştığında kondüktometri ile iletkenlik ölçülür. Birimi mS/cm'dir.

Bulunan değer, çözelti 100 ml ye tamamlandığı için 100 ile çarpılır.



#### 9.2.4.Tuzluluk Yöntemi

Bu yöntem ile çözelti içerisindeki tuz oranının yüzde miktarı belirlenir. İletkenlik yönteminde olduğu gibi “Cond 315i” kondüktometri cihazı kullanılarak tuzluluk miktarı belirlenir.

İletkenlik ölçümü için yapılan işlemlerin aynısı tuzluluk içinde geçerlidir. Kondüktometri cihazından okunan tuzluluk değeri, çözelti 100 ml ye tamamlandığından 100 ile çarpılır.

#### 9.2.5. Klorür İyonu Tayini

Klorür Mohr yöntemiyle tayin edilir. İndikatör olarak kromat indikatörü ve ayarlı gümüş nitrat çözeltisi kullanılır. Dönüm noktası, koyu kırmızı renkli  $Ag_2CrO_4$  çökeleğinin meydana gelmesi ile anlaşılır.

Tayin yapmak için, doymuş çözeltilerden numune alınarak tartılır, 100 ml’lik bir balon joje’de 100 ml’lik bir çözelti hazırlanır. Bu çözeltilerden pipetle alınan 10 ml’lik numune, 1ml %5’lik potasyum kromat ile titre edilir.

Titrasyon çözeltisinin devamlı karıştırılması ve damla damla gümüş nitrat çözeltisinin ilave edilmesiyle gerçekleştirilir. Tepkimenin sonuna doğru damlanın düştüğü yerde teşekkül eden kırmızı çökeleğinin kaybolması çok yavaş olur. Onun için kap iyice çalkalanır ve ikinci damla düşmeden kırmızı çökeleğinin çökmesi sağlanır. Renk değişikliğinin devamlı ve hafif farklı olduğu ana kadar titrasyona devam edilir. Elde edilen sonuçlara dayanılarak klorür iyonunun miktarı (% kütle) aşağıdaki formüle göre hesaplanır:

$$\%Cl = \frac{N.V.meg.100}{T}$$

**N**- gümüş nitrat çözeltisinin normalitesi,

**V**-gümüş nitrat çözeltisinin titrasyon sırasında harcanmış olan hacmi (ml),

**meg**-klorür iyonunun mili eşdeğer gramı (0,03547)

**T**-klorür iyonu bulunduran numunenin tartımı (gram olarak)

### 9.2.6. Bakır(II) İyonunun EDTA ile Tayini

0,2M EDTA çözeltisinin hazırlanması için bu maddenin sodyum tuzundan  $\text{Na}_2\text{H}_2\text{Y}\cdot 2\text{H}_2\text{O}$  7,4448 gram tartılarak oda sıcaklığında bir miktar suda çözünüp daha sonra çözeltinin hacmi 1 litreye tamamlanır.

İndikatör olarak Pyrocatechol Violet indikatörü kullanılır. Bir miktar Pyrocatechol Violet indikatörü alınıp su içerisinde çözünerek kullanılır.

$\text{Cu}^{+2}$  iyonunun tayinini yapmak için, analizi yapılacak olan karışımdan belli miktarda bir numune alınarak tartılır ve bir miktar suda çözülerek 100 ml ye tamamlanır. Bu çözeltiden pipetle 10 ml alınıp koyu mavi renk oluşuncaya kadar piridin eklenir. Bundan sonra çözeltiye 1-2 damla Pyrocatechol Violet eklendikten sonra ayarlı EDTA çözeltisi ile titrasyona başlanır, renk koyu maviden yeşile dönünceye kadar titre edilir ve harcanan hacim kaydedilir. Elde edilen sonuçlara dayanılarak bakır (II) iyonunun miktarı (%kütle olarak) aşağıdaki formüle göre hesaplanır,

$$\% \text{Cu(II)} = \frac{\text{M.V.meg.100}}{\text{T}}$$

**M**- EDTA çözeltisinin molarite cinsinden derişimi,

**V**-titrasyon sırasında harcanmış olan EDTA çözeltisinin hacmi (ml),

**meg**- bakır (II) iyonunun mili eşdeğer gramı(0,06354 gram),

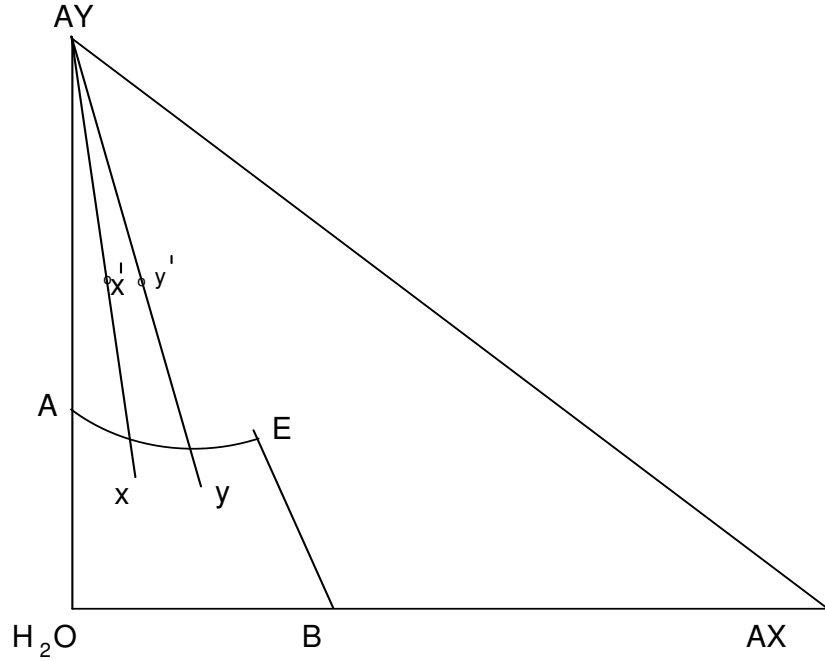
**T**-bakır (II) iyonu ihtiva eden numunenin tartımı (gram olarak).

### 9.2.7. Katı Fazın Schreinemakers'in “Kalıklar” Yöntemiyle Tayin Edilmesi

Bu yöntemin esası “kaldıraç” kuralına dayanmaktadır. Söz konusu kurala göre, iki üçlü karışımın (sistemin) karıştırılmasıyla meydana gelen üçüncü bir sistemin test noktası, kullanılan iki üçlü sistemlerin test noktalarını birleştiren doğru hat üzerinde yer almaktadır[45].

Bu yaklaşımdan yola çıkarak, eğer aynı katı faz ile dengede bulunan doygun çözeltilerin bileşimleri tayin edildikten sonra, onlarla dengede bulunan katı fazdan da bir miktar

alınıp süzgeç kağıdı arasında kurutulup, tartıldıktan sonra uygun analitik yöntemler uygulanarak bileşimleri analiz edilir. Bundan sonra, elde edilen deneysel sonuçlar diyagram üzerine aktarılıp, söz konusu katı fazın kimyasal formülünü gösteren test noktası saptanabilir. Bunun için, doymuş çözeltinin ve “kalığın” bileşimlerini gösteren test noktalarından geçen hat (Schreinemakhers “ışını”) çizilir. Katı fazla dengede bulunan iki çözelti üzerinde aynı işlemler yapılarak iki Schreinemakhers “ışını” çizilir. Elde edilen bu iki hattın kesişme noktası, sıvı faz ile dengede bulunan katı fazın bileşimini veya başka bir ifade ile kimyasal formülünü gösteren test noktasını belirtmiş olur.



**Şekil 8.** Katı fazın bileşiminin Schreinemakhers'in “kalık” yöntemiyle tayini

Şekil 8 ‘de x ve y test noktaları sıvı fazın bileşimlerini,  $x^1$  ve  $y^1$  test noktaları söz konusu sıvı faz ile dengede bulunan katı fazın Schreinemakhers'in “kalık” yöntemiyle tayin edilmiş bileşimlerini, z noktası ise  $xx^1$  ve  $yy^1$  hatların (Schreinemakhers “ışın”ların) kesişme noktası olup, katı fazın kimyasal formülüne uygun gelen test noktasını göstermektedir.

Katı fazın bileşiminin tayininde Schreinemakers'in "kalık" yöntemi uygulandığında, katı fazı oluşturan kristaller karışımından numune alınırken daha az miktarda çözeltinin sürüklenmesine özen göstermek gerekir.

## 10.BULGULAR

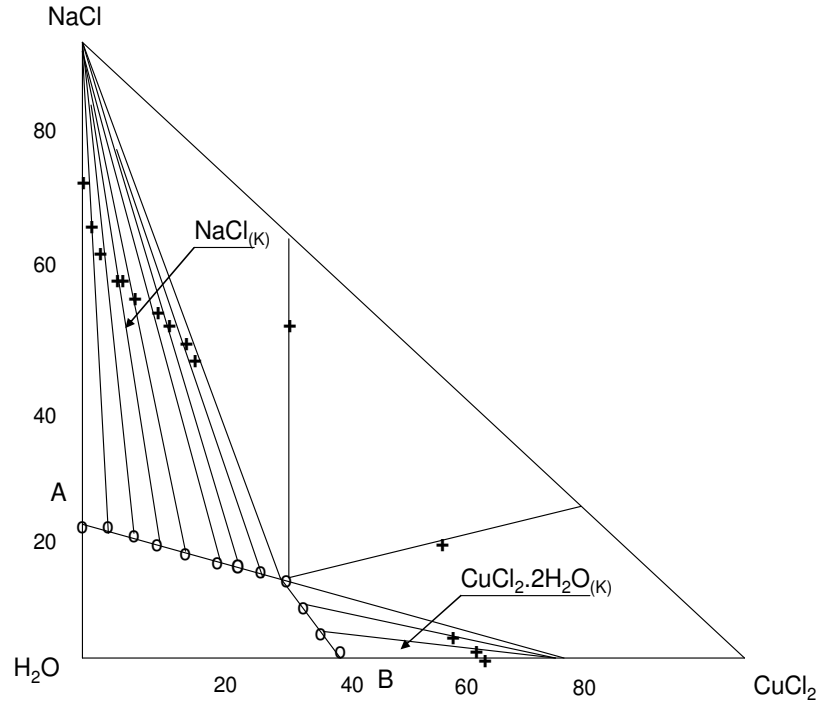
### 10.1. NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O Üçlü Sistemin 0°C Sıcaklıkta Çözünürlüğü, Yoğunluğu, Viskozitesi, İletkenliği, Tuzluluğu Ve Faz Dengeleri

NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü su-tuz sistemin 0°C sıcaklıkta çözünürlüğü, yoğunluğu, viskozitesi, iletkenliği, tuzluluğu ve faz dengelerinin araştırılması sırasında sistemin NaCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O tarafından CuCl<sub>2</sub> yönünde ötonik noktaya ulaşana kadar 9 deneysel nokta ve CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O tarafından NaCl yönünde ise ötonik noktaya varılana kadar 4 deneysel nokta tayin edilmiştir. Sistemin sıvı fazın ve dengede bulunan katı fazın bileşimleri ile ilgili elde edilen deneysel sonuçlar Çizelge 1’de verilmiştir.

Çizelge 1’de verilmiş olan bilgilere dayanılarak NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin Rozeboom yöntemiyle faz diyagramı çizilmiştir (Şekil 9).

**Çizelge 1.** NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü su-tuz sistemin 0°C sıcaklıktaki çözünürlüğü ve dengede bulunan katı fazların bileşimi.

No	SIVI FAZ (% Kütle)			“Kuru Kalık” (% kütle)		KATI FAZ
	NaCl	CuCl <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> O	NaCl	CuCl <sub>2</sub>	
1	26,25	0,00	73,75	91,13	0,00	NaCl
2	24,12	4,62	71,26	86,45	1,37	NaCl
3	22,06	9,36	68,58	81,12	2,68	NaCl
4	20,48	12,74	66,78	79,33	3,89	NaCl
5	18,50	17,38	64,12	78,12	5,13	NaCl
6	17,15	21,93	60,92	76,22	6,58	NaCl
7	14,51	27,03	58,36	73,15	8,56	NaCl
8	13,62	29,24	57,14	70,45	10,14	NaCl
<b>9</b>	<b>12,66</b>	<b>31,26</b>	<b>56,08</b>	<b>46,79</b>	<b>32,13</b>	<b>NaCl + CuCl<sub>2</sub>·2H<sub>2</sub>O</b>
<b>10</b>	<b>12,65</b>	<b>31,27</b>	<b>56,08</b>	<b>15,98</b>	<b>54,13</b>	<b>NaCl + CuCl<sub>2</sub>·2H<sub>2</sub>O</b>
11	9,38	33,48	57,14	4,12	64,15	CuCl <sub>2</sub> ·2H <sub>2</sub> O
12	4,73	36,94	58,33	1,23	69,85	CuCl <sub>2</sub> ·2H <sub>2</sub> O
13	0,00	40,05	59,95	0,00	76,22	CuCl <sub>2</sub> ·2H <sub>2</sub> O



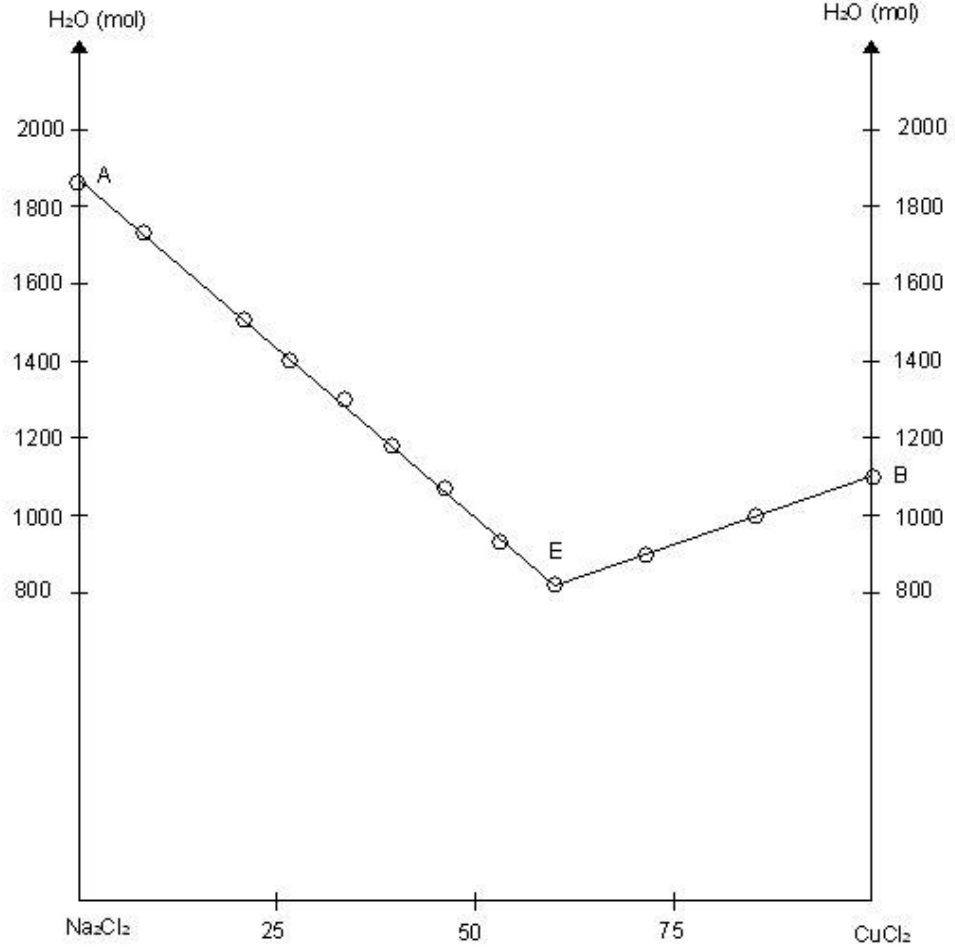
**Şekil 9.** NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü su-tuz sistemin 0°C sıcaklıktaki çözünürlüğü ve faz dengeleri diyagramı (Rozeboum yöntemi)

NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü su-tuz sisteminin 0°C sıcaklıktaki sistemin bileşimi % kütle ifadesine dayanılarak yapılan matematiksel işlemler sonucu % mol olarak Çizelge 2’de gösterilmiştir.

**Çizelge 2.** NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü su-tuz sistemin 0°C sıcaklıktaki çözünürlüğü

No	Sıvı Faz (% Kütle)			100 mol Tuz Karışımında		100 mol Tuza Karşı H <sub>2</sub> O mol Sayısı	Katı Faz
	NaCl	CuCl <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> Cl <sub>2</sub>	CuCl <sub>2</sub>		
1	26,25	0,00	73,75	100	0,00	1826	NaCl
2	24,12	4,62	71,26	85,73	14,27	1646	NaCl
3	22,06	9,36	68,58	73,06	26,94	1476	NaCl
4	20,48	12,74	66,78	65,05	34,95	1379	NaCl
5	18,50	17,38	64,12	55,04	44,95	1239	NaCl
6	17,15	21,93	60,92	47,36	52,63	1092	NaCl
7	14,51	27,03	58,36	38,17	61,82	997	NaCl
8	13,62	29,24	57,14	34,88	65,12	949	NaCl
9	12,66	31,26	56,08	31,77	68,22	913	NaCl + CuCl <sub>2</sub> ·2H <sub>2</sub> O
10	12,65	31,27	56,08	31,74	68,25	913	NaCl + CuCl <sub>2</sub> ·2H <sub>2</sub> O
11	9,38	33,48	57,14	24,33	75,67	964	CuCl <sub>2</sub> ·2H <sub>2</sub> O
12	4,73	36,94	58,33	12,72	87,25	1030	CuCl <sub>2</sub> ·2H <sub>2</sub> O
13	0,00	40,05	59,95	0,00	100	1118	CuCl <sub>2</sub> ·2H <sub>2</sub> O

Çizelge 2’de verilmiş olan bilgilere dayanılarak NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin 0°C sıcaklıkta çözünürlüğünün Yeneke-Le Chatelier yöntemiyle diyagramı çizilmiştir (Şekil 10).



**Şekil 10.** NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin çözünürlüğünün Yeneke-Le Chatelier diyagramı

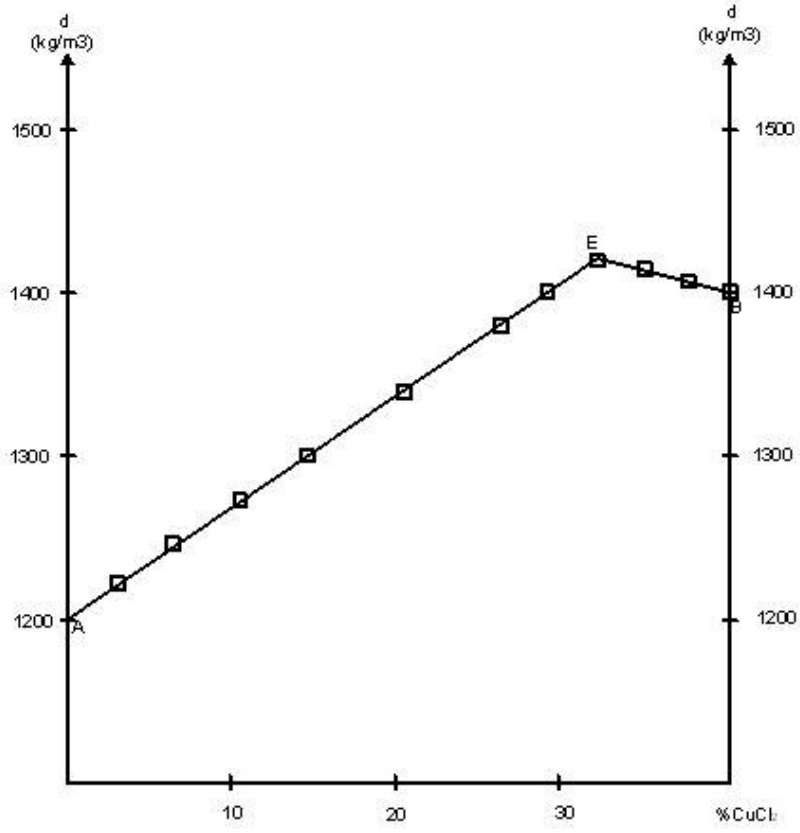


NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü su-tuz sisteminin 0°C sıcaklıktaki yoğunluğu, viskozitesi, iletkenliği ve tuzluluğunun araştırılması sırasında elde edilen deneysel sonuçlar Çizelge 3’de verilmiştir.

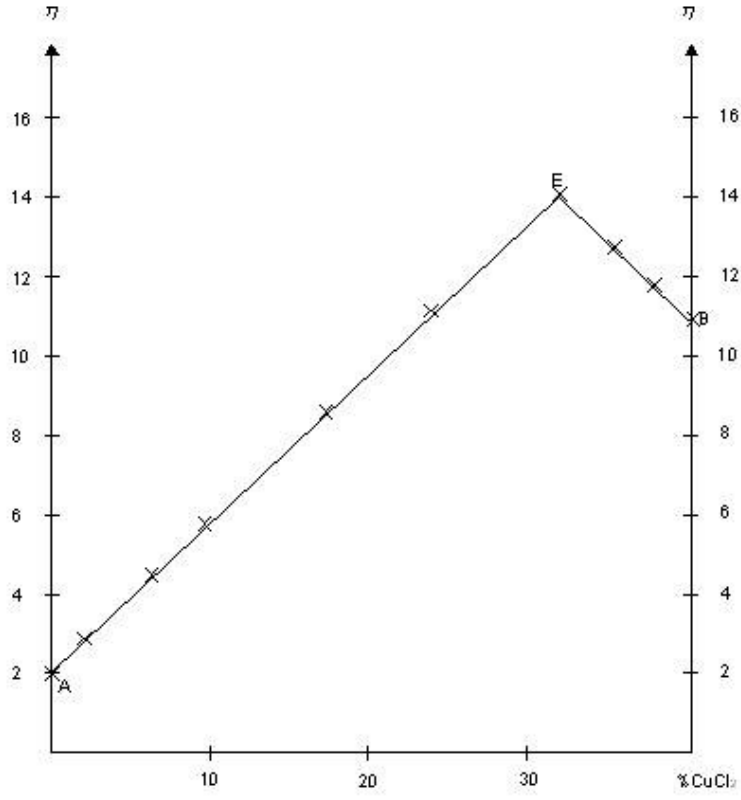
**Çizelge 3.** NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü su-tuz sisteminin 0°C sıcaklıktaki yoğunluğu, viskozitesi, iletkenliği ve tuzluluğu

No	Sıvı Faz (% Kütle)			d (kg/m <sup>3</sup> )	η (N.S.10 <sup>3</sup> /m <sup>2</sup> )	İletkenlik (mS/cm)	Tuzluluk
	NaCl	CuCl <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> O				
1	26,25	0,00	73,75	1201	2,16	555	300
2	24,12	4,62	71,26	1225	3,15	592	330
3	22,06	9,36	68,58	1246	4,23	661	360
4	20,48	12,74	66,78	1285	5,21	708	390
5	18,50	17,38	64,12	1314	6,84	772	420
6	17,15	21,93	60,92	1352	8,58	831	450
7	14,51	27,03	58,36	1410	11,17	905	490
8	13,62	29,24	57,14	1443	12,58	942	510
<b>9</b>	<b>12,66</b>	<b>31,26</b>	<b>56,08</b>	<b>1466</b>	<b>14,12</b>	<b>971</b>	<b>530</b>
<b>10</b>	<b>12,65</b>	<b>31,27</b>	<b>56,08</b>	<b>1466</b>	<b>14,12</b>	<b>971</b>	<b>530</b>
11	9,38	33,48	57,14	1447	13,19	935	510
12	4,73	36,94	58,33	1418	12,11	881	480
13	0,00	40,05	59,95	1404	11,42	843	450

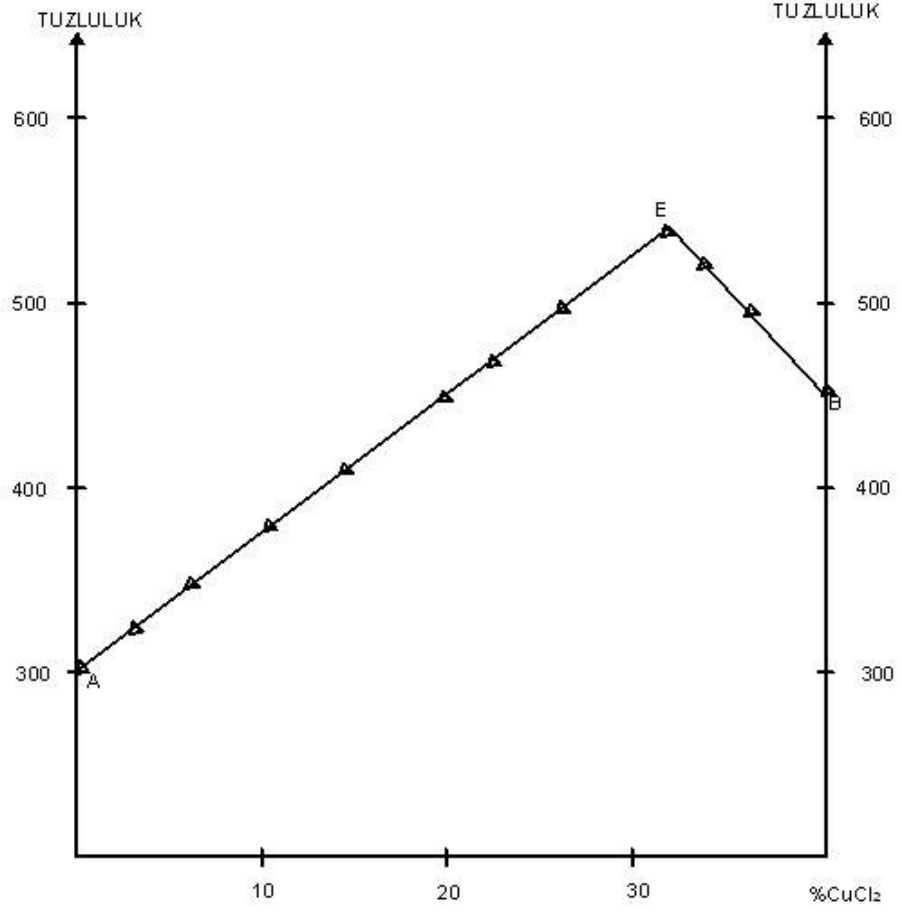
Çizelge 3’de verilmiş olan bilgilere dayanılarak NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sisteminin 0°C sıcaklıkta sistemin yoğunluğunun, viskozitesinin, tuzluluğunun, ve iletkenliğinin Yeneke-Le Chatelier yöntemiyle diyagramları çizilmiştir (Şekil 11-14).



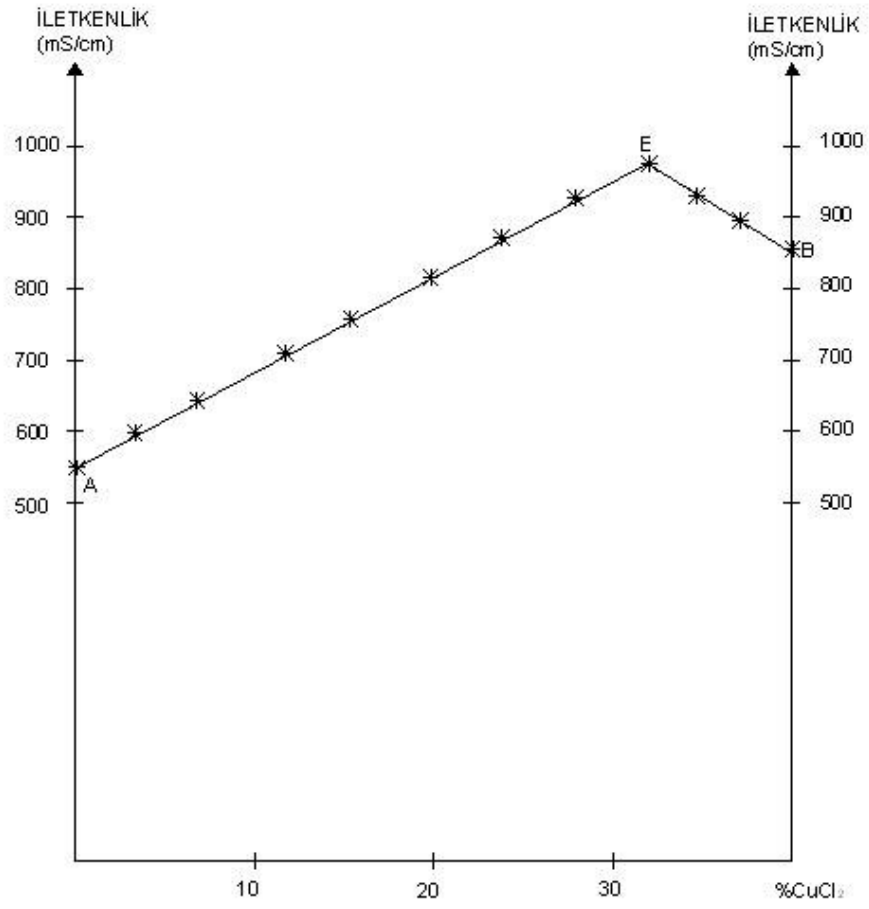
Şekil 11. NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin yoğunluğunun Yeneke-Le Chatelier diyagramı



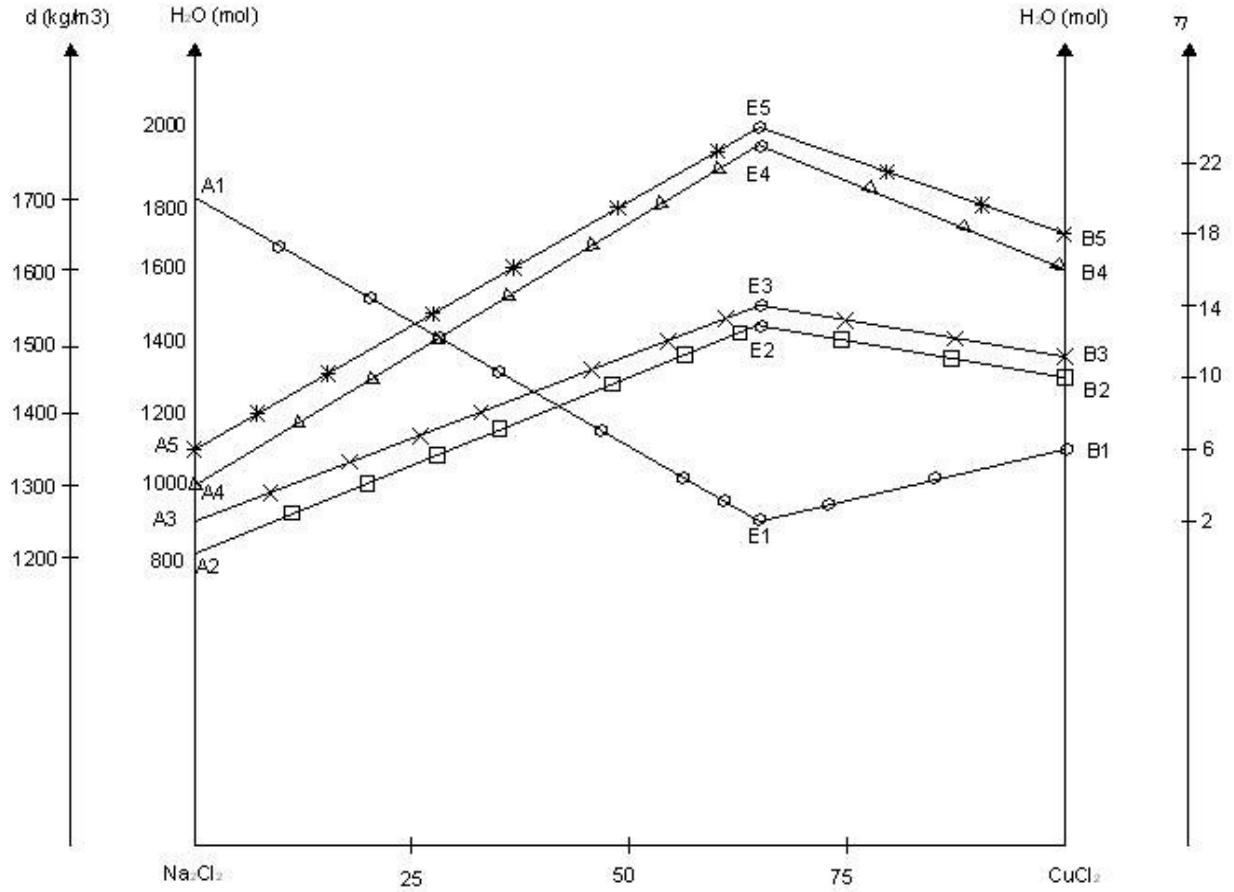
Şekil 12. NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin viskozitesinin Yeneke-Le Chatelier diyagramı



**Şekil 13.**  $\text{NaCl-CuCl}_2\text{-H}_2\text{O}$  üçlü sistemin tuzluluğunun Yeneke-Le Chatelier diyagramı



**Şekil 14.** NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin iletkenliğinin Yeneke-Le Chatelier diyagramı



**Şekil 15.** NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü su-tuz sisteminin 0°C sıcaklıktaki Çözünürlüğü, yoğunluğu, viskozitesi, tuzluluğu ve iletkenliği (beşi bir arada) sistemin bileşimi ile değişimlerinin Yeneke-Le Chatelier diyagram

## 11.SONUÇ VE YORUM

$\text{Na}^+, \text{Cu}^{+2}, /\text{Cl}^-, \text{H}_2\text{PO}_2^-//\text{H}_2\text{O}$  drtl karıllıklı su tuz sisteminin bnyesinde yer alan  $\text{NaCl-CuCl}_2\text{-H}_2\text{O}$  çl sistemde fizikokimyasal yntemlerle znrlk, yoęunluk, viskozite, iletkenlik, tuzluluk ve faz dengeleri aratırılmıtır. Elde edilen deneysel sonular izelge(1-3) ve Őekil (9-15)'de gsterilmiŐtir.

Elde edilen deneysel sonulara gre (izelge 1-2 ve Őekil 9-10)  $\text{NaCl-CuCl}_2\text{-H}_2\text{O}$  çl sisteminin basit tonik sistemler trne ait olduęu saptanmıŐtır.

Sz konusu sistemin bulundurduęu tonik noktanın bileŐimi (% ktle) 12,66  $\text{NaCl}$ , 31,26  $\text{CuCl}_2$  ve 56,8  $\text{H}_2\text{O}$  olarak tespit edilmiŐtir. Bu tonik noktada sistemin sıvı fazı ile  $\text{NaCl}$  ve  $\text{CuCl}_2.2\text{H}_2\text{O}$  kristal hidratının dengede bulunduęu saptanmıŐtır.

izelge 1 ve Őekil 9 da grldę gibi,  $0^\circ\text{C}$  sıcaklıkta  $\text{NaCl-CuCl}_2\text{-H}_2\text{O}$  çl sistemin aratırılması genin  $\text{NaCl-H}_2\text{O}$  tarafından  $\text{CuCl}_2$  kŐesine doęru ynde yapıldıęı sırada,  $\text{NaCl}$  tuzun karıllıklı znrlę zeltiye ilave edilen  $\text{CuCl}_2$  tuzun etkisi altında %26,25'den ( $\text{NaCl}$  tuzunun saf sudaki znrlę) azalarak %12,66'ya kadar ( $\text{NaCl}$  tuzunun tonik noktadaki znrlę) dŐtę tespit edilmiŐtir.

$0^\circ\text{C}$  sıcaklıkta  $\text{NaCl-CuCl}_2\text{-H}_2\text{O}$  çl sistemin aratırılması genin  $\text{CuCl}_2\text{-H}_2\text{O}$  tarafından  $\text{NaCl}$  kŐesine doęru ynde yapıldıęı sırada ise  $\text{CuCl}_2$  tuzun karıllıklı znrlę zeltiye ilave edilen  $\text{NaCl}$  tuzun etkisi altında %40,05'den ( $\text{CuCl}_2$  tuzun saf sudaki znrlę) deęiŐerek %31,26'ya kadar ( $\text{CuCl}_2$  tuzun tonik noktadaki znrlę) azaldıęı grlmŐtir.

$\text{NaCl-CuCl}_2\text{-H}_2\text{O}$  çl sistemin  $0^\circ\text{C}$  sıcaklıkta znrlęnn Yeneke-Le Chatelier yntemiyle diyagramını kurmak iin sistemin bileŐiminin %ktle ile ifadesine dayanılarak matematiksel iŐlemler sonucu sz konusu sistemin bileŐimi 100 mol tuz karıŐımında  $\text{Na}_2\text{Cl}_2$  ve  $\text{CuCl}_2$  tuzların mol sayıları olarak ve %mol tuz karıŐımına karŐın zeltideki suyun mol sayısı Őeklinde ifade edilmiŐtir. izelge 2 ve Őekil 10.

0°C sıcaklıkta NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin sıvı fazın yoğunluğunun araştırılması sırasında elde edilen deneysel sonuçlar Çizelge 3’de ve yoğunluğun sistemde CuCl<sub>2</sub>’nin bileşimi ile değişimi diyagramı Şekil 11’de gösterilmiştir.

0°C sıcaklıkta NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin araştırılması üçgenin NaCl-H<sub>2</sub>O tarafından CuCl<sub>2</sub> köşesine doğru yönde yapıldığı sırada sıvı fazın yoğunluğu 1201 kg/m<sup>3</sup>’den (NaCl tuzun doygun çözeltisinin yoğunluğu) sisteme CuCl<sub>2</sub> tuzun ilave edilmesi sonucu değişerek 1466 kg/m<sup>3</sup>’e kadar (sistemin sıvı fazın ötonik noktadaki yoğunluğu) yükseldiği tespit edilmiştir.

0°C sıcaklıkta NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin araştırılması üçgenin CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O tarafından NaCl köşesine doğru yönde yapıldığı sırada sıvı fazın yoğunluğu 1404 kg/m<sup>3</sup>’den (CuCl<sub>2</sub> tuzun doygun çözeltisinin yoğunluğu) sisteme NaCl tuzun ilave edilmesi sonucu değişerek 1466 kg/m<sup>3</sup>’e kadar (sistemin sıvı fazın ötonik noktadaki yoğunluğu) arttığı saptanmıştır.

0°C sıcaklıkta NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin sıvı fazın yoğunluğunun ötonik noktadaki değerinin NaCl-CuCl<sub>2</sub> tuzlarının saf sudaki doygun çözeltilerinin yoğunluklarından daha yüksek olması sistemin ötonik noktadaki bulundurduğu çözünmüş olan toplam tuz miktarının (NaCl + CuCl<sub>2</sub>) daha yüksek olmasına bağlıdır.

0°C sıcaklıkta NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin sıvı fazın viskozitesinin araştırılması sırasında elde edilen deneysel sonuçlar Çizelge 3’de ve viskozitenin sistemde CuCl<sub>2</sub>’nin bileşimi ile değişimi diyagramı Şekil 12’de gösterilmiştir.

0°C sıcaklıkta NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin araştırılması üçgenin NaCl-H<sub>2</sub>O tarafından CuCl<sub>2</sub> köşesine doğru yönde yapıldığı sırada sıvı fazın viskozitesi 2,16 N.S.10<sup>3</sup>/m<sup>2</sup> değerinden (NaCl tuzun doygun çözeltisinin viskozitesi) sisteme CuCl<sub>2</sub> tuzun ilave edilmesi sonucu değişerek 14,12 N.S.10<sup>3</sup>/m<sup>2</sup> değerine kadar (sistemin sıvı fazın ötonik noktadaki viskozitesi) arttığı saptanmıştır.



0°C sıcaklıkta NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin araştırılması üçgenin CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O tarafından NaCl köşesine doğru yönde yapıldığı sırada sıvı fazın viskozitesinin 11,42 N.S.10<sup>3</sup>/m<sup>2</sup> değerinden (CuCl<sub>2</sub> tuzun doygun çözeltisinin viskozitesi) sisteme NaCl tuzun ilave edilmesi sonucu değişerek 14,12 N.S.10<sup>3</sup>/m<sup>2</sup> değerine kadar (sistemin sıvı fazın ötonik noktadaki viskozitesi) arttığı tespit edilmiştir.

0°C sıcaklıkta NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin sıvı fazın tuzluluğunun araştırılması sırasında elde edilen deneysel sonuçlar Çizelge 3’de ve tuzluluğun sistemde CuCl<sub>2</sub>’nin bileşimi ile değişimi diyagramı Şekil 13’de gösterilmiştir

0°C sıcaklıkta NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin araştırılması üçgenin NaCl-H<sub>2</sub>O tarafından CuCl<sub>2</sub> köşesine doğru yönde yapıldığı sırada sıvı fazın tuzluluğu 300’den (NaCl tuzun doygun çözeltisinin tuzluluğu) sisteme CuCl<sub>2</sub> tuzun ilave edilmesi sonucu değişerek 530’a kadar (sistemin sıvı fazın ötonik noktadaki tuzluluğu) yükseldiği görülmüştür.

0°C sıcaklıkta NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin araştırılması üçgenin CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O tarafından NaCl köşesine doğru yönde yapıldığı sırada sıvı fazın tuzluluğunun 450’den (CuCl<sub>2</sub> tuzun doygun çözeltisinin tuzluluğu) sisteme NaCl tuzun ilave edilmesi sonucu değişerek 530’a kadar (sistemin sıvı fazın ötonik noktadaki iletkenliği) arttığı tespit edilmiştir.

0°C sıcaklıkta NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin sıvı fazın iletkenliğinin araştırılması sırasında elde edilen deneysel sonuçlar Çizelge 3’de ve iletkenliğin sistemde CuCl<sub>2</sub>’nin bileşimi ile değişimi diyagramı Şekil 14’de gösterilmiştir

0°C sıcaklıkta NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin araştırılması üçgenin NaCl-H<sub>2</sub>O tarafından CuCl<sub>2</sub> köşesine doğru yönde yapıldığı sırada sıvı fazın iletkenliğinin 555 mS/cm değerinden (NaCl tuzun doygun çözeltisinin iletkenliği) sisteme CuCl<sub>2</sub> tuzun ilave edilmesi sonucu değişerek 971 mS/cm değerine kadar (sistemin sıvı fazın ötonik noktadaki iletkenliği) yükseldiği görülmüştür.

0°C sıcaklıkta NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin araştırılması üçgenin CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O tarafından NaCl köşesine doğru yönde yapıldığı sırada sıvı fazın iletkenliğinin 843 mS/cm değerinden (CuCl<sub>2</sub> tuzun doymuş çözeltisinin tuzluluğu) sisteme NaCl tuzun ilave edilmesi sonucu değişerek 971 mS/cm değerine kadar (sistemin sıvı fazın ötonik noktadaki tuzluluğu) arttığı görülmüştür.

Şeki 15’de NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin 0°C sıcaklıkta çözünürlüğü, yoğunluğu, viskozitesi, iletkenliği ve tuzluluğu eğrilerinin beşinin de bir arada gösterilmesi aşağıdaki değerlendirmeleri yapmaya imkan vermektedir.

- a) NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin sıvı fazının yoğunluğunun, sistemin bileşimi ile değişimi eğrisi üzerindeki karakteristik noktanın E<sub>2</sub> (1466 kg/m<sup>3</sup> değerine uygun gelen noktanın) bileşimin, söz konusu üçlü sistemin çözünürlük eğrisi üzerindeki ötonik noktanın E<sub>1</sub> bileşimi ile örtüşmekte olduğu görülmektedir. (%kütle olarak: 12,66 NaCl, 31,26 CuCl<sub>2</sub> ve 56,08 H<sub>2</sub>O; ve %mol olarak: 31,77 Na<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>, 68,22 CuCl<sub>2</sub> ve 913 H<sub>2</sub>O)
- b) NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin sıvı fazının viskozitesinin, sistemin bileşimi ile değişimi eğrisi üzerindeki karakteristik noktanın E<sub>3</sub> (14,12 N.S 10<sup>3</sup>/m<sup>2</sup> değerine uygun gelen noktanın) bileşimin, söz konusu üçlü sistemin çözünürlük eğrisi üzerindeki ötonik noktanın E<sub>1</sub> bileşimi ile örtüşmekte olduğu görülmektedir. (%kütle olarak: 12,66 NaCl, 31,26 CuCl<sub>2</sub> ve 56,08 H<sub>2</sub>O; ve %mol olarak: 31,77 Na<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>, 68,22 CuCl<sub>2</sub> ve 913 H<sub>2</sub>O)
- c) NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin sıvı fazının tuzluluğunun, sistemin bileşimi ile değişimi eğrisi üzerindeki karakteristik noktanın E<sub>4</sub> (530 değerine uygun gelen noktanın) bileşimin, söz konusu üçlü sistemin çözünürlük eğrisi üzerindeki ötonik noktanın E<sub>1</sub> bileşimi ile örtüşmekte olduğu görülmektedir. (%kütle olarak: 12,66 NaCl, 31,26 CuCl<sub>2</sub> ve 56,08 H<sub>2</sub>O; ve %mol olarak: 31,77 Na<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>, 68,22 CuCl<sub>2</sub> ve 913 H<sub>2</sub>O)
- d) NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin sıvı fazının iletkenliğinin, sistemin bileşimi ile değişimi eğrisi üzerindeki karakteristik noktanın E<sub>5</sub> (971 mS/cm değerine uygun gelen noktanın) bileşimin, söz konusu üçlü sistemin çözünürlük eğrisi üzerindeki ötonik noktanın E<sub>1</sub> bileşimi ile örtüşmekte olduğu görülmektedir. (%kütle olarak:

12,66 NaCl, 31,26 CuCl<sub>2</sub> ve 56,08 H<sub>2</sub>O; ve %mol olarak: 31,77 Na<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>,68,22 CuCl<sub>2</sub> ve 913 H<sub>2</sub>O)

Bu deęerlendirmeler sonucu, NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin araştırılmasında kullanılan fizikokimyasal yöntemlerin, sıvı ve katı fazların bileşimlerinin analizinde uygulanan analitik yöntemlerin ve dięer deneysel çalışmaların doęru ve mümkün olduęu kadarıyla hatasız bir şekilde gerçekleştirildięinin ve elde edilen sonuçların yüksek derecede saęlam ve güvenilir olduklarının bariz bir göstergesi olarak kabul edilmesi düşünülebilir.

0°C sıcaklıkta NaCl-CuCl<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O üçlü sistemin fizikokimyasal yöntemlerle çözünürlüęü, yoğunluęu, viskozitesi, iletkenlięi, tuzluluęu ve faz dengelerinin araştırılması sırasında elde edilen deneysel sonuçların ve onların esasında kurulan ve çizilen diyagramların “HALLURJÍ” tuz endüstrisinde uygulanabilecek NaCl ve CuCl<sub>2</sub> tuzların doęal tuz karışımlarından ve sanayi atıklarında bulunan tuz karışımlarından ayrılması yöntemlerinin fizikokimyasal esaslarının işlenip hazırlanmasında kullanılması beklenir.

## 12. KAYNAKLAR

1. Kurnakov N.S., Fizikokimyasal analize giriş, 1940, *İzd. AN SSCB, M.*, pp. 3-7.
2. Anasov V.Y.; Pogodin S.A., Fizikokimyasal analizin esasları, 1948, *İzd. AN SSCB, M.*, pp. 15-18.
3. Bergman A.G.; Vlasov N.A., 1942, *Dok. AN SSCB, M.*, pp. 26-31.
4. Van Vezer D., Fosfor ve onun bileşikleri, 1962, *İzd. İnost. Lit., M.*, pp. 282-285.
5. Karyagin Y.V., Saf kimyasal maddeler, 1947, *izd. Khim. Lit., M., L.*, pp. 290-292.
6. Remi G., 1966, *Kurs Neorganicheskoy Khimiyi*, t.2, M., pp. 237-243.
7. Riiss I.G.; Vitukhovskaya B.S., 1955, *Jour. Gener. Chem.*, t.25, N°4, pp. 643-652.
8. Schenkin Y.S.; Gorojankin E.V., 1978, *Zr. Neorg. Khim.*, t.XXII, N°8, pp. 2293-2297.
9. Zakirov B.S.; Beglov B.M., 1977, *Zr. Neorg. Khim.*, t.XXII, N°12, pp. 3395-3399.
10. Yantsiyeva S.Kh.; Namazov Sh.S.; Korotkova E.G.; Kucharov Kh., 1992, *Zr. Neorg. Khim.*, t.37, N°6, pp.1371-1375.
11. Beglov B.M.; Tukhtayev S.; Yugay M.R., 1980, *Zr. Neorg. Khim.*, t.25, N°8, pp.2283-2287
12. Zulfugarlı D.I.; Aliyev V.A., 1983, System of manganese hypophosphite manganese chloride-water at 25-degrees-c and manganese hypophosphate sodium hypophosphate water at 40-degrees-c, *Zr. Neorg. Khim.*, 30, N°11, pp.2981-2982.
13. Aliev V.A.; Velieva S.M., 1985, Study of system ammonium hypophosphite-manganese hypophosphite-water at 25-degrees, *Zh. Priklad. Khim.*, N°6, pp. 1269-1271.
14. Aliev V.A.; Velieva S.M., 1985, Sodium chloride manganese-hypophosphate-water system at 20-degrees-c, *Zr. Neorg. Khim.*, 30, N°3, pp. 798-800.
15. Aliyev V.A.; Dolinina R.M.; Lepechkov I.N., 1989, Potassium nitrate manganese hypophosphite water system at 20-degrees-c, *Zr. Neorg. Khim.*, 34, N°5, pp. 1324-1326.
16. Aliyev V.A.; Dolinina R.M.; Gadjiev S., 1990, The solubility in  $\text{NaH}_2\text{PO}_2$ - $\text{Mn}(\text{H}_2\text{PO}_2)_2$ - $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_2$ - $\text{Mn}(\text{H}_2\text{PO}_2)_2$ - $\text{H}_2\text{O}$  and  $\text{Ca}(\text{H}_2\text{PO}_2)_2$ - $\text{Mn}(\text{H}_2\text{PO}_2)_2$ - $\text{H}_2\text{O}$  systems, *C.R. Acad. Sci., Paris, Ser. II* 310, pp. 1191-1194.
17. Aliyev V.A.; Dolinina R.M.; Lepechkov I.N., 1991, Solubility and physical-chemical properties of saturated solutions in  $\text{NaBr}$ - $\text{Mn}(\text{H}_2\text{PO}_2)_2$ - $\text{H}_2\text{O}$  system at 25-degrees-c, *Zr. Neorg. Khim.*, 36, N°8, pp. 2112-2114.

18. Alişoğlu Vahit; Necefoğlu Hacali, 1997, Solubility in the Na-2(NO<sub>3</sub>)(2)/Na-2(H<sub>2</sub>PO<sub>2</sub>)(2)/Mn(H<sub>2</sub>PO<sub>2</sub>)(2)/H<sub>2</sub>O system, *C.R.Acad. Sci., Paris*, t.324, Serie IB, pp. 139-142.
19. Alişoğlu Vahit, 1998, Solubility and phase in equilibrium in the K<sub>2</sub>Br<sub>2</sub>/MnBr<sub>2</sub>/Mn(H<sub>2</sub>PO<sub>2</sub>)<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O system, *C.R.Acad. Sci., Paris*, t.1, Serie IIC, pp.781-785.
20. Alişoğlu Vahit, 2002, Physicochemical analysis of the system Na<sup>+</sup>, Mn<sup>+2</sup>/Cl<sup>-</sup>, (H<sub>2</sub>PO<sub>2</sub>)-/H<sub>2</sub>O, *C.R.Chimie* 5, pp. 547-549.
21. Roozeboom B., 1887, *Roc. Trav. Chem.*, Payz-Bas, pp. 342-344.
22. Shreinemakers, 1888, *Jour. Phys. Chem.*, 2, pp. 513-515.
23. Van't Hoff, 1936, Okyanusta meydana gelen tuz çökelekleri, *İzd. İnost. Lit., M.*, pp. 17-23.
24. Kurnakov N.S.; Jemchujny S.F., 1913, Akış basıncı ve plastik maddelerin sertlikleri, *İzd. AN SSCB, M.*, pp. 324-385.
25. Tamman G., 1926, *Jour. Anorg. Chem.*, 157, pp. 321-326.
26. Pozin M.E., 1961, Mineral tuzların teknolojisi, *İzd. L.*, pp. 3-15.
27. Anasov V.Y.; Ozerova M.I.; Fialkov V.Y., 1987, Osnovy Fizikokhimicheskogo Analiza, *İzd. Nauka M.*, pp. 175-193.
28. Greenwood N.N.; Earnshaw A., 1997, *Chemistry of the Elements*, 2nd. Edition, Oxford, Butterword-Heineman.
29. *Handbook of Chemistry and Pysics*, 1990, 71st., edition, CRC Pres, Ann Arbor, Michigan.
30. *The Merck Index*, 1960 7th edition, Merck & Co, Rahway, New Jersey, USA.
31. Nicholls D., 1973, *Complexes and Firs-Row Transition Elements*, Macmillan, London.
32. Wells A.F., 1984, *Structural Inorganic Chemistry*, 5 th edition, Oxford University, Oxford, UK.
33. March J., 1992, *Advanced Organic Chemistry*, 4th, Wiley, New York, pp. 723.
34. Patnaik, Pradyot, 2002, *Handbook of Inorganic Chemicals*, McGraw-Hill, Two Penn Plaza, New York, pp.262-263.
35. Wells A.F., 1984, *Structural Inorganic Chemistry*, Oxford Clarendon.

36. Jolly W.L., 1983, *The Synthesis and Characterization of Inorganic Compounds*, Prentice Hall, London, pp. 197.
37. Menke J.B., 1925, Nitration with nitrates, *Recueil des Travaux Chimiques des Pays-Bas*, pp. 44-141.
38. Chambers C.;Holliday A.K., 1975, *Modern Inorganic Chemistry*, Butterworths, pp. 413-418.
39. Masterson W. L.; Hurley C. N., 2004, *Chemistry: Principles and Reactions*, 5th Ed. Thomson Learning, Inc., pp. 498."
40. Bertschowza B. 1926, *Rocrn Chemistry*, N° 6, pp. 705.
41. Stortenbecker W., 1900, *Z. Physik. Chemistry*, N° 34, pp.109.
42. Trethakov Y.D.; Simakova L.K.,1961, *Zr. Neorg. Khim.*,6, N° 9, pp.2203
43. Trethakov Y.D.; Simakova L.K., 1961, *Zr. Neorg. Khim.*,6, N° 9, pp.2203
44. Turgut Gündüz, 1997, *Kantitatif Analiz Laboratuar Kitabı*,7, pp. 145-175.
45. Vahit Alişoğlu A., 1973, *Doktora Tezi*, Bakü.

## ÖZGEÇMİŞ

29.06.1983 tarihinde Kars'ta doğdu. İlk ve orta öğrenimini Kars'ta tamamladı. Atatürk Üniversitesi Fen-Edebiyat Fakültesi Kimya Bölümü Programı'ndan 2005 yılında Kimyager Ünvanı ile mezun oldu. 2005 yılında Kafkas Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Kimya Anabilim Dalı Anorganik Kimya Bilim Dalı'nda Yüksek Lisans Öğrenimine başladı.

N. Nubar ÜSTEBAY