



**T.C.
İSTANBUL ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**



YÜKSEK LİSANS TEZİ

TARIMSAL ATIKLARDAN AKTİF KARBON ÜRETİMİ

Senem GÜNGÖR

Kimya Mühendisliği AnaBilim Dalı

Temel İşlemler ve Termodinamik Programı

Danışman

Yard. Doç. Dr. İ. Metin HASDEMİR

Kasım, 2013

İSTANBUL



**T.C.
İSTANBUL ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**



YÜKSEK LİSANS TEZİ

TARIMSAL ATIKLARDAN AKTİF KARBON ÜRETİMİ

Senem GÜNGÖR

Kimya Mühendisliği AnaBilim Dalı

Temel İşlemler ve Termodinamik Programı

Danışman

Yard. Doç. Dr. İ. Metin HASDEMİR

Kasım, 2013

İSTANBUL

Bu çalışma 10/12/2013 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı Temel İşlemler ve Termodinamik programında Yüksek Lisans Tezi olarak kabul edilmiştir.

Tez Jürisi



Yard. Doc. Dr. İ. Metin HASDEMİR(Danışman)
İstanbul Üniversitesi
Mühendislik Fakültesi



Prof. Dr. Umur DRAMUR
İstanbul Üniversitesi
Mühendislik Fakültesi



Prof. Dr. Ş. İsmail KIRBAŞLAR
İstanbul Üniversitesi
Mühendislik Fakültesi



Prof. Dr. Cemal ÖZEROĞLU
İstanbul Üniversitesi
Mühendislik Fakültesi



Doc. Dr. İsmail İNCİ
İstanbul Üniversitesi
Mühendislik Fakültesi

Bu alıřma İstanbul Üniversitesi Bilimsel Arařtırma Projeleri Yürütücü Sekreterliđinin 22691 numaralı projesi ile desteklenmiřtir.

ÖNSÖZ

Yüksek lisans öğrenimim boyunca benden bilgi, yardım ve birikimlerini esirgemeyen ve her türlü sorunun çözümünde yardımcı olan çok değerli hocam Yard.Doç.Dr.İ.Metin HASDEMİR'e en içten dileklerle teşekkür ederim.

Deneysel çalışmaların sırasında her türlü yardımı esirgemeyen sayın hocalarım Prof. Dr. Cemal ÖZEROĞLU, Yard. Doç. Dr. Selin Şahin SEVGİLİ, Arş. Gör. Aslı GÖK GAMSIZKAN, Arş. Gör. Selim AŞÇI, Arş. Gör. Melisa DEMİREL'eve Sayın Semih SEZER'eteşekkür ederim.

Ayrıca bugünlere gelmemi sağlayıp manevi desteklerini her zaman arkamda hissettiren aileme, çalışmam boyunca benden yardımlarını esirgemeyen sevgili arkadaşım Arş. Gör. Zeynep İLBAY'ave çalışmamın uygulama kısmını destekleyen İstanbul Üniversitesi'ne teşekkürü borç bilirim.

Kasım, 2013

Senem GÜNGÖR

İÇİNDEKİLER

	Sayfa No
ÖNSÖZ.....	i
İÇİNDEKİLER	ii
ŞEKİL LİSTESİ.....	v
TABLO LİSTESİ.....	vii
SİMGE VE KISALTMA LİSTESİ	viii
ÖZET.....	ix
SUMMARY	xi
1. GİRİŞ.....	1
2. GENEL KISIMLAR	2
2.1. AKTİF KARBONUN TANIMI	2
2.2. AKTİF KARBONUN TARİHÇESİ.....	2
2.3. FİZİKSEL ÖZELLİKLERİ.....	4
2.3.1. Molekül ve Kristal Yapı.....	4
2.3.2. Yüzey Alanı.....	6
2.3.3. Gözeneklilik (Porozite)	7
2.3.4. Yüzey Fonksiyonel Gruplar	9
2.4. KİMYASAL ÖZELLİKLERİ	10
2.5. AKTİF KARBON TÜRLERİ	12
2.5.1. Toz aktif karbon (PAC).....	12
2.5.2. Tanecikli (granüler)aktif karbon (GAC)	12
2.5.3. Pellet aktif karbon (Topak aktif karbon).....	13
2.5.4. Küresel aktif karbon	13
2.5.5. Emprenye karbonlar	13
2.5.6. Polimer kaplanmış aktif karbon	13
2.5.7. Karbon moleküler elek (KME)	13
2.5.8. Aktif karbon lifi.....	14

2.6.	AKTİF KARBON UYGULAMA ALANLARI	15
2.7.	AKTİF KARBON ÜRETİMİ	19
2.7.1.	Genel Bakış	19
2.7.2.	Hammadde Seçimi	21
2.7.3.	Hammaddeyi Boyutlandırma ve Kurutma	22
2.7.4.	Kül Giderimi	23
2.7.5.	Kimyasal Aktivasyon	23
2.7.5.1.	<i>Kuru Karıştırma</i>	24
2.7.5.2.	<i>Emdirme</i>	24
2.7.5.3.	<i>Yoğurma</i>	24
2.7.5.4.	<i>Isıl İşlem</i>	25
2.7.5.5.	<i>Asit İle Yıkama</i>	25
2.7.6.	Fiziksel Aktivasyon	25
2.7.6.1.	<i>Karbonizasyon</i>	25
2.7.6.2.	<i>Aktivasyon</i>	25
2.8.	ADSORPSİYON	26
2.8.1.	ADSORPSİYONA ETKİ EDEN PARAMETRELER	27
2.8.1.1.	<i>Adsorban</i>	27
2.8.1.2.	<i>Sıcaklık</i>	27
2.8.1.3.	<i>pH</i>	27
2.8.1.4.	<i>Adsorbat</i>	27
2.8.2.	ADSORPSİYON İZOTERMLERİ	28
2.8.2.1.	<i>Langmuir İzotermi</i>	28
2.8.2.2.	<i>Freundlich İzotermi</i>	29
2.8.2.3.	<i>Temkin İzotermi</i>	30
3.	MALZEME VE YÖNTEM	32
3.1.	MALZEME	32
3.1.1.	Kullanılan Malzemeler	32
3.1.2.	Kullanılan Cihazlar	32
3.2.	YÖNTEM	33
3.2.1.	Malzemelerin Hazırlanması	33
3.2.2.	Aktif Karbonların Hazırlanması	33
3.2.3.	Aktif Karbonların Verim Hesabı	34
3.2.4.	Aktif Karbonların Asetik Asit Adsorpsiyonunda Kullanılması	35

4. BULGULAR	37
4.1. AKTİF KARBONLARIN VERİM HESABI.....	37
4.2. ASETİK ASİT İLE ADSORPSİYONU ÇALIŞMALARININ SONUCU..	40
4.2.1. Fındıkkabuğundan Üretilen Aktif Karbonların Asit Adsorpsiyonu.....	40
4.2.2. Portakal Kabuğundan Üretilen Aktif Karbonların Asit Adsorpsiyonu	41
4.2.3. Kavun Çekirdeğinden Üretilen Aktif Karbonların Asit Adsorpsiyonu.....	42
4.3. ADSORPSİYON SONUÇLARININ İZOTERMLERE UYGULANMASI.....	45
4.4. FTIR SONUÇLARININ DEĞERLENDİRİLMESİ.....	53
4.5. SEM GÖRÜNTÜLERİNİN YORUMLANMASI.....	59
5. TARTIŞMA VE SONUÇ	64
KAYNAKLAR	66
ÖZGEÇMİŞ.....	72

ŞEKİL LİSTESİ

Sayfa No

Şekil 2.1: Grafit Kristalleri.....	5
Şekil 2.2:Aktif karbonun SEM ile alınan gözenek yapısı(Marsh ve Rodriguez-Reinoso, 2006).....	8
Şekil 2.3: Aktif Karbonun gözenek yapısı.....	8
Şekil 2.4: Karbon yüzeyindeki fonksiyonel gruplar.....	11
Şekil 2.5: Atık su saflaştırma mekanizması.....	17
Şekil 2.6: Aktif karbon üretimine ait akış şeması (Gündoğdu, 2010).	20
Şekil 3.1: Deney düzeneği.....	33
Şekil 3.2: Adsorpsiyon denemeleri.....	35
Şekil 4.1: Fındıkkabuğundan üretilen aktif karbonlar için farklı başlangıç konsantrasyonlarının yüzde adsorpsiyona etkisi.....	44
Şekil 4.2: Portakal kabuğundan üretilen aktif karbonlar için farklı başlangıç konsantrasyonlarının yüzde adsorpsiyona etkisi.....	44
Şekil 4.3: Kavun çekirdeğinden üretilen aktif karbonlar için farklı başlangıç konsantrasyonlarının yüzde adsorpsiyona etkisi.....	45
Şekil 4.4: %30'luk ZnCl ₂ çözeltisiyle 300°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon - asetik asit Langmuir izoterm grafiği.....	46
Şekil 4.5: %60'luk ZnCl ₂ çözeltisiyle 300°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon - asetik asit Langmuir izoterm grafiği.....	46
Şekil 4.6: %60'luk H ₃ PO ₄ çözeltisiyle 300°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon - asetik asit Langmuir izoterm grafiği.....	47
Şekil 4.7: %60'luk H ₃ PO ₄ çözeltisiyle 500°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon - asetik asit Langmuir izoterm grafiği.....	47
Şekil 4.8: %30'luk ZnCl ₂ çözeltisiyle 300°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon-asetik asit Freundlich izoterm grafiği.....	48
Şekil 4.9: %60'luk ZnCl ₂ çözeltisiyle 300°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon -asetik asit Freundlich izoterm grafiği.....	48
Şekil 4.10: %60'luk H ₃ PO ₄ çözeltisiyle 300°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon -asetik asit Freundlich izoterm grafiği.....	49
Şekil 4.11: %60'luk H ₃ PO ₄ çözeltisiyle 500°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon -asetik asit Freundlich izoterm grafiği.....	49
Şekil 4.12: %30'luk ZnCl ₂ çözeltisiyle 300°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon-asetik asit Temkin izoterm grafiği.....	50
Şekil 4.13: %60'luk ZnCl ₂ çözeltisiyle 300°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon -asetik asit Temkin izoterm grafiği.....	50
Şekil 4.14: %60'luk H ₃ PO ₄ çözeltisiyle 300°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon -asetik asit Temkin izoterm grafiği.....	51
Şekil 4.15: %60'luk H ₃ PO ₄ çözeltisiyle 500°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon -asetik asit temkin izoterm grafiği.....	51
Şekil 4.16: Fındıkkabuğu numunesinin FTIR analizi grafiği a)Aktivasyon öncesi b)ZnCl ₂ Aktivasyonu sonrası.....	54
Şekil 4.17Fındıkkabuğu numunesinin a) %30' luk H ₃ PO ₄ Aktivasyonu sonrası b) %60' luk H ₃ PO ₄ Aktivasyonu sonrası FTIR analizi grafiği.....	57
Şekil 4.18: Aktivasyon işlemi görmemiş fındıkkabuğu numunesinin SEM görüntüsü.....	59

Şekil 4.19: %60 ZnCl ₂ çözeltisi kullanılarak 300°C'de findıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon numunesinin SEM görüntüsü.	60
Şekil 4.20: %60 H ₃ PO ₄ çözeltisi kullanılarak 300°C'de findıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon numunesinin SEM görüntüsü.	60
Şekil 4.21: Aktivasyon işlemi görmemiş portakal kabuğu numunesinin SEM görüntüsü.	61
Şekil 4.22: %60 ZnCl ₂ çözeltisi kullanılarak 300°C'de portakal kabuğundan hazırlanmış aktif karbon numunesinin SEM görüntüsü.	61
Şekil 4.23: %60 H ₃ PO ₄ çözeltisi kullanılarak 300°C'de portakal kabuğundan hazırlanmış aktif karbon numunesinin SEM görüntüsü.	62
Şekil 4.24: %60 ZnCl ₂ çözeltisi kullanılarak 300°C'de kavun çekirdeğinden hazırlanmış aktif karbon numunesinin SEM görüntüsü.	62

TABLO LİSTESİ

Sayfa No

Tablo 2.1: Aktif karbonun gözenek ve yüzey alanı (Kirk-Othmer,1971).	6
Tablo 2.2: Tipik bir aktif karbondaki gözenek boyutları (Henning ve Degel, 1990).	9
Tablo 2.3: Çözücü geri kazanımına örnekler.	15
Tablo 2.4: Ticari aktif karbon üretiminde kullanılan bazı başlangıç maddeleri.	22
Tablo 2.5: Fiziksel ve kimyasal adsorpsiyon arasındaki farklar (Ülküseven, 1993).	27
Tablo 4.1: Fındıkkabuğundan elde edilen aktif karbonların verimleri.	37
Tablo 4.2: Portakal kabuğundan elde edilen aktif karbonların verimleri.	37
Tablo 4.3: Kavun çekirdeğinden elde edilen aktif karbonların verimleri.	38
Tablo 4.4: Kimyasal aktivatör kullanılmadan hammaddelerin karbonize edilmesi sonucu elde edilen ürünlerin verimi.	39
Tablo 4.5: %30 ZnCl ₂ kullanılarak 300°C’de fındıkkabuğundan üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.	40
Tablo 4.6: %60 ZnCl ₂ kullanılarak 300°C’de fındıkkabuğundan üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.	40
Tablo 4.7: %60 H ₃ PO ₄ kullanılarak 300°C’de fındıkkabuğundan üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.	41
Tablo 4.8: %60 H ₃ PO ₄ kullanılarak 500°C’de fındıkkabuğundan üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.	41
Tablo 4.9: %30 ZnCl ₂ kullanılarak 300°C’de portakal kabuğundan üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.	41
Tablo 4.10: %60 ZnCl ₂ kullanılarak 300°C portakal kabuğundan üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.	42
Tablo 4.11 : % 60 H ₃ PO ₄ kullanılarak 300 °C portakal kabuğundan üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.	42
Tablo 4.12: %60 H ₃ PO ₄ kullanılarak 500°C portakal kabuğundan üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.	42
Tablo 4.13: %30 ZnCl ₂ kullanılarak 300°C’de kavun çekirdeğinden üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.	42
Tablo 4.14: %60 ZnCl ₂ kullanılarak 300°C’de kavun çekirdeğinden üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.	43
Tablo 4.15 : % 60 H ₃ PO ₄ kullanılarak 300 °C’de kavun çekirdeğinden üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.	43
Tablo 4.16: %60 H ₃ PO ₄ kullanılarak 500°C’de kavun çekirdeğinden üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.	43
Tablo 4.17: Fındıkkabuğundan üretilen aktif karbon ile adsorpsiyon sonucu izoterm sabitleri ve korelasyon katsayıları.	46
Tablo 4.18: Portakal kabuğundan üretilen aktif karbon ile adsorpsiyon sonucu izoterm sabitleri ve korelasyon katsayıları.	52
Tablo 4.19: Kavun çekirdeğinden üretilen aktif karbon ile adsorpsiyon sonucu izoterm sabitleri ve korelasyon katsayıları.	52

SİMGE VE KISALTMA LİSTESİ

Simgeler	Açıklama
C_e	: Adsorpsiyon sonrasında çözeltide kalan maddenin konsantrasyonu (mg/l)
Q_e	: Birim adsorban üzerinde adsorplanan madde miktarı (mg/g)
K_L	: Adsorpsiyon enerjisine bağlı olan sabit (l/mg)
Q_m	: Tek tabakalı adsorpsiyon kapasitesi (mg/g)
C_o	: Adsorbatın başlangıç konsantrasyonu
R_L	: Adsorbat- adsorban arasındaki adsorpsiyon uygunluğunu
K_f	: Denge anında çözeltide kalan maddenin konsantrasyonu
n	: Freundlich adsorpsiyon sabiti
b,	: Temkin sabiti olup adsorpsiyon ısısı
K_t,	: Temkin izoterm sabiti (L/g)
R	: İdeal gaz sabiti (8,314 j/molK)

Kisaltmalar	Açıklama
IUPAC	: International Union of Pure and Applied Chemistry
BET	: Brunauer - Emmet – Teller
FTIR	: Fourier Kızılötesi Dönüşüm Spektroskopisi
SEM	: Taramalı Elektron Mikroskobu

ÖZET

YÜKSEK LİSANS TEZİ

TARIMSAL ATIKLARDAN AKTİF KARBON ÜRETİMİ

Senem GÜNGÖR

İstanbul Üniversitesi

Fen Bilimleri Enstitüsü

Kimya Mühendisliği

Danışman : Yard. Doç. Dr. İ. Metin HASDEMİR

Aktif Karbon; yapısında karbon içeren her türlü doğal ya da sentetik başlangıç maddesinden üretilen, sahip olduğu geniş iç yüzey alanı ve farklı çaplardaki gözenek sayısı sayesinde sıvı ve gaz uygulamalarında sıklıkla kullanılan bir adsorbandır.

Aktif karbon üretiminde hammadde için bir sınırlama olmamasına rağmen, düşük anorganik içerikli, yüksek karbon içeriğine sahip ucuz hammaddeler, aktif karbon üretimi için tercih edilmektedir. Aktif karbon üretimi, karbonizasyon ve aktivasyon olmak üzere iki aşamada gerçekleştirilir.

Karbonizasyon işlemi, hammaddedeki nem ve uçucu maddenin inert ortamda ısı ile uzaklaştırılarak temel gözenek yapısının oluştuğu işlemdir. Aktivasyon ise bir oksidasyon işlemi olup, fiziksel ve kimyasal olmak üzere iki farklı şekilde gerçekleştirilir. Genellikle su buharı veya karbondioksit ile fiziksel aktivasyon; fosforik asit, çinko klorür, sülfürik asit gibi kimyasal maddelerle kimyasal aktivasyon yapılmaktadır.

Bu çalışmada; fındık kabuğu, portakal kabuğu ve kavun çekirdeği gibi bitkisel kaynaklı atıklardan fiziksel ve kimyasal aktivasyon yöntemleriyle aktif karbon üretimi yapılmıştır. Farklı hammaddelerden elde edilen aktif karbonun verimi hesaplanmış. Aktif karbona ait fonksiyonel gruplar FTIR analizi ile belirlenmiş, hammaddelerin yüzey gözenekliliği ise SEM ile bakılmıştır. Ayrıca aktif karbonlar asetik asit

adsorpsiyonunda kullanılmıřtır. Adsorpsiyon sonuları izoterm grafiklerine uygulanmıřtır.

Kasım 2013, 73 sayfa.

Anahtar kelimeler: aktif karbon, adsorpsiyon, tarımsal atık, kimyasal aktivasyon, karakterizasyon.

SUMMARY

M. Sc. THESIS

PRODUCTION OF ACTIVATED CARBON FROM AGRICULTURAL WASTE

Senem GÜNGÖR

İstanbul University

Graduate School of Science and Engineering

Department of Chemical Engineering

Supervisor : Asst. Prof. Dr. İ. Metin HASDEMİR

Activated carbon; carbon-containing structure of all kinds of natural or synthetic starting material can be produced that have large internal surface area and number of pores with different diameters, a widely used liquid and gas applications.

Although there is no limit to the production of activated carbon raw materials, low inorganic content, cheap raw materials with high carbon content, are preferred for the production of activated carbon. Activated carbon production occurs in two stages. They are carbonization and activation.

Carbonization process; raw material by removing moisture and volatile matter with heat treatment in a inert environment that formed the basic structure of the pore. Activation process is an oxidation process. This is performed in two different method, physical and chemical. Generally, the physical activation is performed with water vapor and carbon dioxide. Chemical substances such as phosphoric acid, zinc chloride, sulfuric acid is performed chemical activation.

In this study; physical and chemical activation methods of agricultural waste such as nutshell, orange peel, and melon seeds were produced of activated carbon. The activated carbon was obtained from different raw materials, the solid product yields were calculated. Functional groups of activated carbon were determined by FTIR analysis and the surface porosity of the material was examined by SEM. And also

activated carbons were used acetic acid adsorption. The results of adsorption were applied adsorption isotherm charts.

November 2013, 73 pages.

Keywords: activated carbon, adsorption, agricultural waste, chemical activation, characterization.

1. GİRİŞ

Aktif Karbon; yüksek miktarda karbon içeren, yüksek iç yüzey alanı ve gözenekliliğe sahip olan çok eski çağlardan beri kullanılan ve kullanımı gittikçe artan bir adsorpsiyon malzemesidir.

Aktif karbonun kullanımının gittikçe artmasının nedeni olarak giderek büyüyen sanayi üretiminden bahsedebiliriz. Çünkü sanayileşme yanında çevreye birçok zarar getirmiştir. Havanın kirlenmesinin yanı sıra çıkan bu kirletici gazların su kaynaklarını etkilemesi de büyük zarar getirmektedir. Bu kirliliklerin temizlenmesi için bilim adamları birçok yöntem geliştirmişlerdir. Bunlardan biri adsorpsiyon metodudur. Adsorplayıcı malzeme olarak eski çağlarda ilk olarak kömürden elde edilen aktif karbonlar kullanılmaya başlanmıştır. Ancak kömürden elde etmek çok maliyetli olduğundan bitkisel malzemeleri kullanarak elde etme yöntemleri geliştirmişlerdir. Ayrıca elde edilen malzemelerin gözenek yapıları büyük olduğu görülmüş ve bu sayede bitkisel malzemelerin kullanımı artmıştır. Aktif karbon düşük inorganik madde içeriğine sahip ve yüksek karbon içeriğine sahip her türlü malzemedен elde edilebilmektedir.

Aktif karbon üretimi fiziksel ve kimyasal aktivasyon olmak üzere iki farklı yöntemle gerçekleştirilir. Fiziksel aktivasyonda karbonizasyon sonrası malzeme oksitleyici bir gaz ile ısıtılarak maruz kalırken; kimyasal aktivasyonda ise malzeme bir kimyasal aktivatör ($ZnCl_2$, KOH , H_3PO_4 vb.) varlığında ısıtılarak tabi tutulur.

Bu çalışmada, fındıkkağı, portakal kağı ve kavun çekirdeğinden kimyasal aktivasyon yöntemiyle aktif karbon elde edildi. Aktif karbon üretim aşaması farklı sıcaklıkta ve farklı konsantrasyonlarda H_3PO_4 ve $ZnCl_2$ varlığında gerçekleştirildi. Elde edilen aktif karbonların aktivasyon sonrası ağırlıkça verimleri hesaplandı. Ayrıca aktif karbonların çeşitli analizlerle fonksiyonel grupları ve gözenekliliğine hakkında bilgi verildi. Üretilen aktif karbonların asetik asit varlığında adsorpsiyon kapasitesi incelendi. Elde edilen adsorpsiyon sonuçları adsorpsiyon grafiklerine uygulandı ve bu izoterm denklemlerine uygunluğuna bakıldı.

2. GENEL KISIMLAR

2.1. AKTİF KARBONUN TANIMI

Karbon yeryüzündeki tüm organik bileşiklerde temel yapı taşlarının oluşumunu sağlar ve en çok bileşik yapan elementtir (Çankaya, 2007). Aktif Karbon, geniş yüzey alanı ve özgün gözenek yapısına sahip, herhangi bir yapısal formül veya kimyasal analiz ile karakterize edilemeyen, karbon içeriği yüksek olan bir adsorplayıcıdır(Hassler, 1974). Aktif karbonun genişletilmiş yüzey alanı, mikro gözenekli yapısı, yüksek adsorpsiyon kapasitesi ve yüzey reaktivitesi soğurgan olarak kullanılmasını sağlar. Aktif karbonların gözenek hacmi genellikle 0,2 ml/g 'dan daha büyük ve iç yüzey alanı ise 400m²'den daha yüksektir(Mc Dougall, 1991). 1 g karbonun yüzey alanı yaklaşık 300-2000 m² olabilmektedir (Gülensoy ve Şengil, 1981). Gözenek çapı ise 3Å ile birkaç bin Ångstrom arasında değişmektedir. Organik esaslı aktif karbon; bileşim olarak %87-97 oranlarında karbon içermekte olup geri kalan kısımda ise hidrojen, oksijen, kükürt ve azot içerebilir (Küçükgül, 2004). Diğer yandan kullanılan hammaddeye ve süreçte katılan diğer kimyasal maddelerin içeriğine bağlı olarak farklı elementleri içerebilmektedir. Aktif karbon bünyesinde ağırlıkça 5- 20 oranları arasında yararsız maddeler de içerebilir ancak bunlar kullanım öncesi ortamdan uzaklaştırılmalıdır. Bu işleme kül içeriğinin düşürülmesi denir ve adsorban olarak kullanımında kül içeriğinin %0,1-0,2 oranına getirilmesi gerekir(Küçükgül, 2004).

2.2. AKTİF KARBONUN TARİHÇESİ

Aktif karbonun üretiminde kullanılan teknolojinin gelişmesine endüstriyel ihtiyaçlar önderlik etmiş olup, tarihi çok eski yıllara dayanmaktadır. Eski çağlarda karbon sadece yakıt olarak değil, farklı amaçlar için de kullanılmıştır.

Aktif karbonun bilinen en eski kullanıcıları Mısırlılar ve Sümerlerdir. MÖ 3750 yılında, odun kömürü (wood char) bronz yapımı esnasında bakır ve çinkonun indirgenmesinde kullanmışlardır. Odun kömürünün tıp alanında kullanımını ilk belgeleyen yazılı kayıt Mısır Papirüsleridir (MÖ 1550). Burada odun kömürü, çürümekte olan yaralardan ve

bağırsak bölgesinden buharlaşan kokuların giderilmesinde kullanmışlardır. MÖ 460 yılında Hipokrat ve Pliny, odun kömürü tedavi amacıyla, epilepsi, chlorosis ve anthrax gibi hastalıkları da içine alan geniş bir alanda kullanmışlardır. Hint ve Portekizliler ise içme suyunun saflaştırılmasında kullandıklarına dair bilgilere dokümanlarda rastlanmaktadır. MS 157'de Claudius Galen, hem bitki hem hayvan orjinli karbonları, hastalık tedavisinde kullanımları üzerinde 500 tıbbi uygulama yapmıştır. 1773 yılında Scheele, farklı kaynaklardan ürettiği aktif karbonları gaz adsorpsiyonu işleminde kullanmıştır. 1785 yılında Lowitz, odun kömürünün tıbbi uygulamalardaki kokuları adsorbe edebilme özelliğinden yola çıkarak, organik kimyasalların büyük bölümünün de odun kömürü ile adsorbe edilebileceğini açıklamıştır. 1793 yılında Kehl, mide ülserlerinden buharlaşan gazın kontrolünde kömürlerin kullanımı konusunu gündeme getirdi ve hayvansal dokulardan hazırlanan karbonu çözeltilerdeki rengin uzaklaştırılmasında kullanmıştır. 1794 yılında ise bir İngiliz şeker üreticisi, şeker şurubunun renginin giderimini odun kömürü başarıyla kullanmıştır. 19. Yüzyılda da aktif karbon kullanımına yönelik çalışmalar yapılmıştır. 1805 yılında Gruillon, şurupların renk giderimi için, yıkanmış odun kömürünü ilk kez büyük ölçekli bir şeker rafinerisinde kullanmıştır. 1808 yılında Delessert odun kömürünü şeker pancarı sıvısının renk gideriminde kullanmıştır. 1822 yılında Bussy, kemik karbonlarının kandaki potasyum bileşikleriyle birlikte ısıtılması durumunda ağartma gücünün 30 kat arttığını tespit etmiştir. Klorür çözeltisinden altının adsorplanmasında aktif karbonun kullanımı ilk olarak 1847 yılında gerçekleştirilmiştir. 1865 yılında Hunter, Hindistan cevizi kömürlerinin gaz adsorpsiyon kapasitesinin oldukça yüksek olduğunu saptamıştır. 1880 yılında Davis, odun kömürü kullanılarak altının klorür ekstraksiyon çözeltisinden kazanılması prosesi konusunda patent almıştır. 1900'lü yılların başında, şu anki aktif karbon üretiminin temelini oluşturan patentler yayınlanmıştır. Bu patentler bugün de hala geçerli olan aktif karbon üretiminin iki temel prensibini açıklamaktadır. Bunlar kimyasal aktivasyon ve gaz aktivasyonudur. 1909 yılında Avusturya'da Fanto Works tarafından satışa sunulan Eponit isimli ve ağaç esaslı başlangıç malzemesi kullanılarak üretilen aktif karbon ile şeker rafinerisinde renk gideriminde kullanılmıştır. 1914-1918 yıllarında 1.Dünya savaşı esnasında, savaş alanlarında zehirli gazların kullanılmasıyla, gaz maskelerinde kullanılacak uygun adsorban olarak karbonun sentezine ve geniş çaplı üretimine imkân veren yöntemler önem kazanmıştır. Çinko klorürle aktive edilmiş odun kırıntıları kullanılarak, granül halde aktif karbonlar

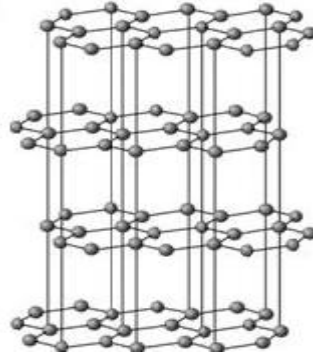
geliştirilmiştir. Bunlar adsorpsiyon ve fiziksel özellikleri kontrol edilerek üretilen ilk ticari aktif karbonlardır. 1920 yılından sonra ilk olarak aktif karbon su arıtımında kullanılmıştır. 1929 yılında, Hamm Water Works granüler formda, bundan bağımsız olarak 1930'da Harrison tarafından Michigan Bay City'de, yine 1929 yılında Spalding tarafından içme suyundaki kokuların uzaklaştırılmasında kullanılmıştır. 1932 yılında ise Amerika'da 400 fabrika, 1943 yılında yaklaşık 1200 fabrikada içme sularında kokuların giderilmesinde aktif karbon kontrollü bir şekilde kullanılmaya başlanmıştır (Kirk-Othmer,1971;Patrick, 1995;Lussier ve diğ., 1994).

2.3. FİZİKSEL ÖZELLİKLERİ

2.3.1. Molekül ve Kristal Yapı

Doğada bulunan karbonun 3 izotopu (^{11}C , ^{12}C , ^{13}C) olmasının yanında bir de 3 allotropu vardır (elmas, grafit, kömür). Elmasta, her karbon atomu komşu dört atoma bağlı iken; grafitte üç atoma bağlıdır. Grafit, tabaka yapısında moleküllerden meydana gelmektedir. Tabakalar arası uzaklık 3,4 Å'dur. Her karbon atomunun üç elektronu tabaka üzerinde bağ yapmakta kullanılırken dördüncü elektron serbestçe hareket edebilecek durumdadır. Grafit yumuşak bir maddedir, bunun nedeni karbon atomları arasında zayıf bir bağın bulunması ve tabakaların birbiri üzerinden kolayca kayabilmesidir. Aktif karbonun yapısı, grafitteki gibi tabakalar halinde olup tabakalar arası uzaklık 3-3,5 Å kadardır.

Aktif karbonun molekül ve kimyasal yapısını anlamak için bu maddenin yüzey kimyasını anlamak gerekmektedir. Aktif karbonla, karbon siyahı arasındaki fark karbon siyahının daha küçük iç yüzey alanına sahip olmasıdır. Aktif karbon yapısı hakkındaki birçok veri karbon siyahından elde edilmektedir. Karbon siyahı ile aktif karbonun temel birim yapısı saf grafitin yapısına benzemektedir. Karbon siyahı, boyama amacıyla kullanılan bir çeşit renk pigmentidir. Grafit kristalleri Şekil 2.1'de birleşik altıgen tabakalar halinde birbirlerine 3,354 Å uzaklıkta zayıf Van Der Waals kuvvetleri ile bağlanmaktadır.



Şekil 2.1: Grafit Kristalleri.

Karbon-karbon bağları arasındaki uzaklık $1,415 \text{ \AA}$ 'dır. Karbonun 3 elektronu komşu atomlarla düzenli olarak kovalent bağlar yapmakta, geriye kalan bir elektron bağ ise yapılar arasında salınmaktadır. Bu durum karbon atomları arasında çift bağ oluşumunu sağlamaktadır. Bu, grafit için baskın yapıdır. Aktif karbonun yapısı grafitten biraz farklıdır. Karbonizasyon işlemi süresince, birçok aromatik çekirdek (grafitteki benzer) oluşmaktadır. X-ışını ile yapılan incelemeler, bu yapıların altıgen olarak bağlanmış karbon atomlarını içeren mikrokristal yapısında olduğunu göstermektedir. Düzlemlerin yarıçapı 150 \AA 'dır. Mikrokristaller arasındaki uzaklık $20-50 \text{ \AA}$ 'dır (Cheremisinoff ve Ellerbusch, 1978). Hazırlama metodundan ve safsızlıkların olmasından dolayı mikrokristal yapıda bazı boşluklar oluşmaktadır. Garten ve Weiss'a (1957) göre hazırlama işlemi veya hammaddenin doğasından dolayı, düzlemin kenarındaki halka yapılar heterosiklidir. Heterosiklik gruplar, adsorpsiyon, desorpsiyon özelliklerini ve komşu düzlemin uzaklığını etkilemektedir (Cheremisinoff ve Ellerbusch, 1978). Aktif karbonun yapısı, grafitte göre düzensizdir. Aktivasyon işlemi süresince kristallerin yüzeylerindeki karbon bağlarının düzenli dizilişi bozulmaktadır. Yapının gelişimi karbonizasyon ve aktivasyon sıcaklıklarının fonksiyonudur. Hegzagonal karbon halkaları, bazı molekül kırılmasına uğramış, rastgele sıralanmış, biri diğeriyle doğrudan ilişkili grafit kristallerden oluşmaktadır. Bütün yapı bundan dolayı çok düzensizdir ve çoğunlukla 'turbo ince tabakalı' olarak belirtilebilmektedir. Aktif karbonlardaki yüksek mertebeden yapısal bozukluklar nedeniyle, düzlemsel katmanların köşelerindeki karbon atomları için birçok tepkime olasılığı vardır. Sonuç olarak, genellikle kırık grafitik halka sistemlerinin kenarlarında mevzilenmiş oksijen içeren organik fonksiyonel gruplar karbonun yüzeyinde bulunmaktadır (Mc Dougall, 1991).

2.3.2. Yüzey Alanı

Aktif karbonun en önemli fiziksel özelliği yüzey alanıdır. Aktif karbonun yüzey alanı BET (Brunauer-Emmet-Teller) yöntemi ile belirlenir. Bu yöntemde adsorplanan madde olarak genellikle azot ya da helyum gazları kullanılır. BET, gazların katı malzemelerin yüzeylerine fiziksel adsorpsiyon karakteristiğini kullanarak yüzey alanı hakkında bilgi veren bir yöntem olup, gazın bir katı yüzeyinde tek tabakalı fiziksel adsorpsiyonunu prensip alır. Farklı basınçlarda katı numune yüzeyine adsorbe olan gaz karışımı miktarlarından sonuca gidilir. BET cihazından numunenin gözenek hacmi, gözenekliliği ve aktif yüzey alanı hakkında detaylı bilgiler elde edilebilmektedir. Tipik ticari ürünler 500-2000 m²/g aralığında yüzey alanına sahiptir. Bununla beraber 3500-5000 m²/g yüzey alanlı ve sentetik orijinli aktif karbonlar ise yüksek adsorpsiyon kapasiteleri nedeniyle özel amaçlı kullanılmaktadır (Kroschwitz, 1992; Gündoğdu, 2010).

Su arıtımında kullanılan aktif karbon taneciklerinin iç yüzey alanının en az 1000 m²/g olması istenmektedir. Kirlilik oluşturan maddeler, aktif karbonun yüzeyinde tutulacağından, yüzey alanının büyüklüğü kirliliklerin giderilmesinde oldukça etkili faktördür. Prensip olarak, yüzey alanı ne kadar büyükse, adsorpsiyon merkezlerinin sayısının da o kadar büyük olduğu düşünülür. Literatürde bulunan aktif karbonun yüzey alanı ve gözenek sistemi ile ilgili sayısal değerler aşağıda verilmiştir (Müller ve Mehnert, 1997).

Tablo 2.1: Aktif karbonun gözenek ve yüzey alanı (Kirk-Othmer,1971).

Yüzey alanı	400-1600m ² /g (BET N ₂)
Gözenek hacmi	>30 m ³ /100g
Gözenek genişliği	0,3 nm-1000nm

2.3.3. Gözeneklilik (Porozite)

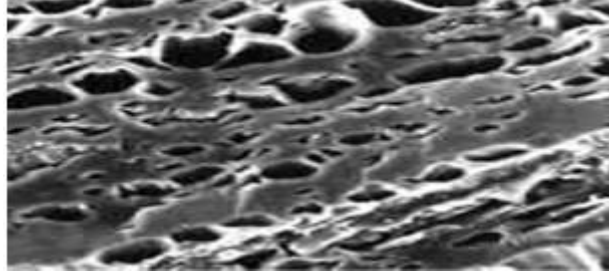
Aktif karbonun uygulama alanlarında tercih edilmesinde etkili olan bir diğer parametre de gözenek büyüklüğüdür (Kirk-Othmer,1971). Aktif karbonun gözenek yapısı, büyük gözeneklerin üzerinde bulunan ve adeta bir ağacın dalları gibi uzantılar oluşturan pek çok küçük gözenek şeklinde düşünülebilir (dallanmış gözenek teorisi).

Girinti çıkıntılar, kanallar, boşluklar veya yarıklar içeren herhangi bir katı materyal gözenekli kabul edilir(Patrick, 1995). Aktif karbon oluşumu sırasında; karbonizasyon sıcaklığını artması ile öncelikle H₂O, CO₂, CH₄, CH₃OH gibi küçük moleküller uzaklaşmaktadır ve bu sırada çıkan küçük moleküller yerine mikroporlar oluşmaktadır. Gaz halinde uzaklaşan maddeler ise katı faz içinde artan basınçları nedeniyle mikrokanallar açarlar. Bu esnada çapraz bağlı selülozik ana yapı asla erimez (Patrick, 1995).

Sıcaklık artışı ile selüloz yapısı karbon yapısına dönüştüğünden karbon olmayan atomların sistematik olarak uzaklaştırılmasıyla selülozik yapı termodinamik olarak daha kararlı yapıya dönüşür. Fakat bu proses mükemmellikten uzaktır ve karbon yapısı ilk şekillendiğinde birçok hata içermektedir. Oluşan karbon yapısı tabakasal değildir ve bu yüzden paralelliği yoktur. Bundan dolayı aktif karbon yapısı hala modellenememiştir(Patrick, 1995).

Aktif karbondaki gözenek boyutu aralığı moleküler boyuttan büyük granüllerde nm boyutuna kadar değişebilmektedir (Patrick, 1995). Mikroporlar (<2 nm) aktif karbonların daha yüksek yüzey alanına sahip olmasına katkıda bulunmakta, gazlar ve yaygın kullanılan çözücüler gibi küçük boyutlu moleküller için yüksek adsorpsiyon kapasitesi sağlamaktadır. Bu sayede bir gaz karışımından küçük molekülü gaz fraksiyonunu seçimli olarak filtre etmek mümkündür.

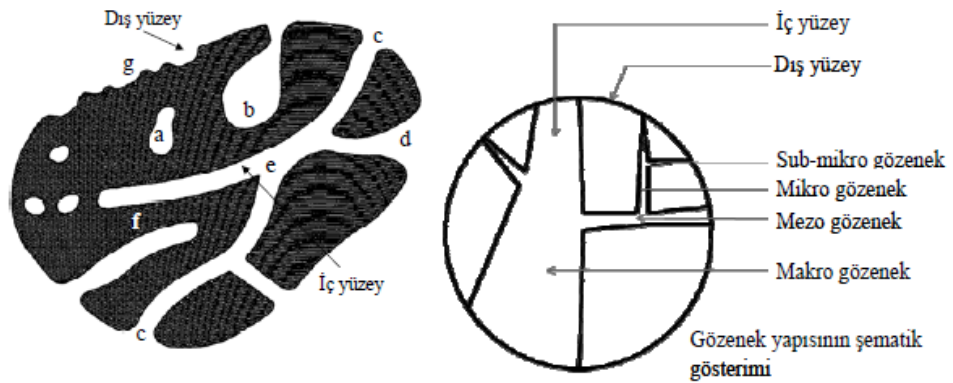
Mezoporlar (2-50 nm) renkli moleküller gibi daha geniş moleküllerin adsorplanması için önemlidir ve aktif karbon yapısında büyük oranda bulunmaktadır. Makroporların (>50 nm) adsorpsiyon için önemsiz olduğu düşünülür. Mikroporların asıl görevleri adsorplanan maddelerin geçişini sağlayan ana yollar olarak hizmet etmektir (Patrick, 1995).



Şekil 2.2: Aktif karbonun SEM ile alınan gözenek yapısı (Marsh ve Rodriguez-Reinoso, 2006).

Adsorpsiyon için gözenek yapısı, toplam iç yüzeyden daha önemli bir parametredir. Gözeneklerin büyüklükleri, uzaklaştırılacak olan kirliliklerin tanecik çaplarına uygun olmalıdır. Çünkü, karbon ve adsorplanan moleküller arasındaki çekim kuvveti, molekül büyüklüğü gözeneklere yakın olan moleküller arasındaki daha büyüktür (Marsh ve Rodriguez-Reinoso, 2006).

Adsorpsiyon ve desorpsiyon için önemli olan aktif karbon gözenek yapısı, Şekil 2.3’de şematik olarak görülmektedir (Marsh ve Rodriguez-Reinoso, 2006).



Şekil 2.3: Aktif Karbonun gözenek yapısı.

Şekil 2.3’da (a) ile gösterilen katının iç yüzeyinde hapsolmuş olan ve kendisine yakın başka bir gözenekle bağlantısı olmayan pozisyonudur. Bu tip boşluklar kapalı gözenek olarak adlandırılır ve bunlar adsorpsiyon esnasında inaktiftirler. (b), (c), (d), (e), (f) gibi katının dış yüzeyine ile bağlantısı olanlar açık gözenek olarak adlandırılır (Gündoğdu, 2010).

Gözenek yapısı, yani adsorpsiyon gözenekleri başlıca üç sınıfa ayrılır; makro gözenek, mezo gözenek (geçiş gözenekleri) ve mikro gözenek (Cheremisinoff ve Ellerbusch, 1978).

Tablo 2.2: Tipik bir aktif karbondaki gözenek boyutları (Henning ve Degel, 1990).

	Mikro Gözenek	Mezo Gözenek	Makro Gözenek
Çap (Å)	<20	20-500	>500
Gözenek Hacmi (cm³/g)	0,15-0,5	0,02-0,1	0,2-0,5
Yüzey Alanı (m²/g)	100-1000	10 - 100	0,5 - 2

2.3.4. Yüzey Fonksiyonel Gruplar

Aktif karbonun adsorplama kapasitesi sadece gözenek yapısı ile değil, ayrıca yüzeyin kimyasal doğasıyla da tanımlanmaktadır. Aktif karbonun yapısında tek atomlar ve/veya fonksiyonel gruplar halinde pek çok heteroatom (oksijen, hidrojen, azot ve diğerleri) bulunur(El-Hendawy, 2005). Oksijen, karbon matrisindeki en baskın heteroatomdur. Karbon-oksijen yüzey bileşikleri, aktif karbonun yüzey reaksiyonlarını ve yüzey davranışlarını etkileyen en önemli merkezlerdir. Sulu çözeltilerde karbon taneciklerinin yüzey yükü, yüzey fonksiyonel grupların doğası tarafından kontrol edilir. Başka bir deyişle, aktif karbonun adsorpsiyon özellikleri yüzey gruplarının modifikasyonu ile kontrol edilebilir.

Aktif karbonun yapısındaki grafit kristalitlerinin kenar bölgelerine oksijen içerikli doymamış karbon grupları bağlıdır. Aktif karbonda bulunan başlıca fonksiyonel gruplar Şekil 2.4'de gösterilmiştir. Bu gruplar hem önemli reaksiyon merkezleri görevi yapmakta ve hem de aktif karbonun polaritesini artırmaktadır. Bu yüzey oksitleri arasında en çok rastlananlar; karboksil grupları, fenolik gruplar, lakton halkaları, kinon türünden yapı taşları, siklik peroksitler ve karboksilik asit anhidritlerdir(Strelko ve diğ., 2002).

Aktif karbonun yüzey yapısını aydınlatmak için IR temelli spektroskopik yöntemler kullanılır (Başlıca FTIR). IR spektrumlarıyla aktif karbonun oluşumu esnasında

yüzeyinde meydana gelen deęişiklikler takip edilmektedir. Aktif karbonun hem asidik hem de bazik özellikler sergilediđi çok uzun yıllardır bilinmektedir. Asidik özellikler, fenolik ve karboksilik asit gruplarının varlığı ile açıklanabilir. Ancak bazik karakteri açıklamak çok daha zordur(Rouquerol ve diđ., 1999).

Ayrıca deęişik karakterli aktif karbonların elde edilmesi, üretimi sırasında uygulananaktivasyon yöntemine ve kullanılan hammaddenin fiziksel ve kimyasal yapısınabağılıdır (Lua ve Yang, 2004).

2.4. KİMYASAL ÖZELLİKLERİ

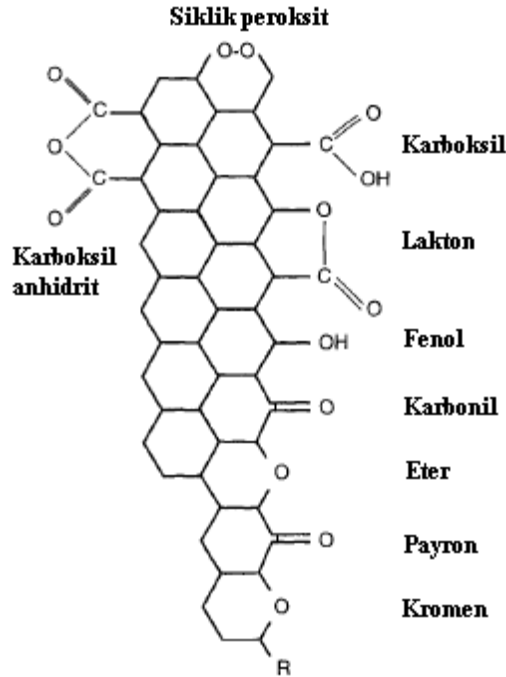
Kullanılan başlangıç maddesine (hammaddeye) bađlı olarak, aktif karbonlar %1-20 arasında mineral madde içerebilir. Aktif karbonda mineral madde içeriđini silikatlar, alüminatlar, eser miktardaki kalsiyum, magnezyum, demir, potasyum, sodyum, çinko, kurşun, bakır ve vanadyum gibi anorganik maddeler oluşturmaktadır. Gazlardan ve çözeltilerden elektrolitlerin ve non-elektrolitlerin adsorpsiyonunda, aktif karbon yapısındaki mineral madde içeriđi rol oynamaktadır. Yapıda bulunabilecek demir, kalsiyum ve diđer alkali bileşikler, su buharı ile yapılan aktivasyon işlemi sırasında katalizör görevi görmektedir. Sodyum ve potasyumun hidroksitleri ve karbonatları dar ve uzun şekilli mikroporların oluşumunu arttırdıkları; aynı zamanda bu toprak alkali bileşiklerin, metalik partiküllerin kanallaşması özellikleri ile mezopor oluşumunu zenginleştirdiđi bilinmektedir.

Aktif karbonun adsorpsiyon kapasitesi sadece por yapısı ile deđil, ayrıca yüzeyin kimyasal doğasıyla da ilgilidir. Çođu karbonlu malzemede karbon atomları aromatik halkalarda dizilmişlerdir ancak genelde düzenli bir yapılaşma göstermezler. Bu düzensizlikten dolayı temel kristal yapının kenarlarında bulunan karbon atomlarının kimyasal aktivitesi temel düzlemdaki karbon atomlarına göre çok daha fazladır. Özellikle oksijen, hidrojen ve halojenler gibi birçok gazın kimyasal sorpsiyonu sonucu yüzey fonksiyonel grupları veya yüzey kompleksleri oluşur.

Karbon ve oksijen arasındaki reaksiyon yüksek sıcaklıklarda çok hızlıdır. Ayrıca oksijenin aktif karbon yüzeyine kimyasal sorpsiyonunun oda sıcaklığı ve düşük

sıcaklıklarda da gerçekleştiği çok eski zamanlardan beri bilinmektedir. Kimyasal olarak bağlanmış oksijen ancak yüksek sıcaklıklarda yapıdan uzaklaştırılabilir.

Karbon oksijen yüzey grupları, yüzey reaksiyonlarını, yüzey davranışlarını, karbonun elektriksel ve katalitik özelliklerini etkileyen en önemli unsurdur. Yüzeydeki fonksiyonel gruplara bağlı olarak (asidik veya bazik) karbonun kation veya anyon değiştirme kapasitesi belirlenebilir. Başlangıç maddesine, karbonizasyon şartlarına ve aktivasyon sırasında kullanılan oksitleyici maddeye bağlı olarak yapıda bulunan fonksiyonel grupların miktarı ve türü değişkenlik gösterebilir. Aktif karbonun yapısındaki fonksiyonel grupları asidik ve bazik gruplar olmak üzere iki ana grupta incelenebilir. Bu grupların varlıkları potansiyometrik, FT-IR ve XPS gibi birçok farklı yöntemle belirlenebilir. Asidik yüzey grupların analizi için genellikle titrasyon metodu kullanılmaktadır. Farklı grupların (karboksil, fenol, lakton) asidik sabitleri farklı büyüklüktedir ve farklı kuvvetlerdeki bazlar ile titre edilerek miktarları hakkında bilgi edinilebilir (Marsh ve Rodriguez-Reinoso, 2006).



Şekil 2.4: Karbon yüzeyindeki fonksiyonel gruplar.

Asidik karakterdeki yüzey oksitlerinden en önemlileri karboksilik, fenolik, laktonik gruplar ile kinon türünden yapı taşlarıdır.

Asidik fonksiyonel grupların miktarı oksidasyon ile arttırılabildiği gibi 1273 K'in üstünde vakum altında ya da inert atmosferde tutularak azaltılabilir. Yüksek sıcaklıkta oksijen içeren yüzey grupları, ısıl bozunma sonucunda karbon oksitler, su ve hidrojen şeklinde yapıdan uzaklaşır (Strelko, 1999).

Bazik yüzey oksitlerinin varlığı asidik olanlardan çok daha önceden beri bilinmesine rağmen, yapıları yeterince anlaşılammıştır. Aktif karbon 973 K üzerinde ısıl işleme tabi tutulduktan sonra inert atmosferde soğutulursa bazik özellik kazanır. Karbonun asidik özelliklerini asidik yapıdaki yüzey grupları oluştururken, bazik özellikler hem bazik yüzey gruplarından hem de karbon yüzeyine yakın elektriksel çift tabakadan kaynaklanabilir. Karbonun bazal düzlemdeki π elektron sisteminin asidik çözeltilerden protonları bağlayabilecek yeterlilikte bazik olduğu bilinmektedir. Bununla birlikte π elektron sisteminden kaynaklanan baziklik nispeten zayıftır. Bazik yapı oksijen içeren yüzey gruplarından kaynaklanabildiği gibi poliaromatik tabakanın yan kenarlarındaki payron tipi (pyrone-type) yapıdan da kaynaklanır (Avcı, 2008).

2.5. AKTİF KARBON TÜRLERİ

2.5.1. Toz aktif karbon (PAC)

100 μm 'den daha küçük tane boyutuna sahip aktif karbonlardır. Ortalama yarıçap 15-25 μm aralığındadır. Bu tip aktif karbonun geniş yüzey alanı ve küçük difüzyon mesafesi vardır. Çözelti fazı adsorpsiyonu için kullanılmaktadır. Kullanımı oldukça kolaydır. Karbon, çözeltiliye eklenir, karıştırılır, kısa bir süre temas ettirilir. (5-30 dk) ve filtrasyonla ayrılır. Bu gruba giren aktif karbonlar, tıbbi amaçlar ve renk giderme için kullanılır.

2.5.2. Tanecikli (granüler)aktif karbon (GAC)

Toz aktif karbona göre daha büyük tanecik boyutu ve daha küçük dış yüzey alanına sahiptir. Yaklaşık 0,2-5mm aralığındaki boyutlardaki düzensiz şekillerdeki parçacıklar halindedirler. Gaz ve sıvı adsorpsiyonu uygulamalarına tercih edilir. Difüzyon hızı yüksektir. Karbon granüllerinin boyutu önemlidir. Adsorplanacak gaz aktif karbon yatağından geçirilir. Parçacık boyutu küçükse, yatak boyunca basınç düşüşü görülür ve gaz, karbon parçacıklarını sürükler. Parçacıkların boyutu, kullanılan yatağın

yüksekliğine bağlı olarak seçilir. Yüksekliğin fazla olması, granüllerin de boyutunu arttırır. Bu tip aktif karbonlar, suların saflaştırılmasında, renk giderme ve akış sistemlerinin bileşenlerinin ayrımında kullanılır.

2.5.3. Pellet aktif karbon (Topak aktif karbon)

Basınçla sıkıştırılmış ve 0,8-5 mm çapında silindirik yapıdadırlar. Düşük basınç, yüksek mekanik dayanıklılığından ve düşük toz içeriğinden dolayı başlıca gaz fazı uygulamalarında genel olarak gazların saflaştırılmasında kullanılır (Küçükgül, 2004).

2.5.4. Küresel aktif karbon

Katran, naftalin, ve tetralin içerisinde eritilerek küreler elde edilmektedir. Bu küreler nafta çözücüsü ile temas ettirilmekte ve naftalin ekstrakte edilmektedir. Bu şekilde gözenek yapısı oluşturulmaktadır. Bu gözenekli küreler ağırlıkça %30 oksijen içeren oksidasyon gazının varlığında 373-673 K arasındaki bir sıcaklığa ısıtılmaktadır. Katran küreler, oksijenin %10'unu kimyasal olarak adsorplar. Okside küreler, amonyak ile 423-973 K sıcaklıkları arasında ısıtılır. Daha sonra CO₂ veya buharla aktive edilir. Bu karbonların yüksek mekanik dayanıklılığı vardır. Ve SO₂, NO₂ adsorpsiyon kapasitesi çok yüksektir(Katori ve diğ., 1977).

2.5.5. Emprenye karbonlar

İyot, gümüş, alüminyum, magnezyum, çinko, demir, lityum, kalsiyum, ketonlar,tersiyer aminler içeren karbonlar kullanılarak hazırlanırlar(Zall, 1975). Örneğin; iyotla emrenye edilmiş aktif karbonlar, gazlardan SO₂ ve H₂S'in uzaklaştırılmasında katalizör olarak kullanılmaktadır.

2.5.6. Polimer kaplanmış aktif karbon

Pürüzsüz ve geçirgen bir 'biocompatible' polimeri, gözenekli karbonların etrafına ince bir tabaka halinde kaplayarak elde ettikleri karbondur (Fennimore ve diğ., 1978).

2.5.7. Karbon moleküler elek (KME)

Aktif karbon düzgün ve dar bir mikro gözenek yapısında üretildiğinden karbon moleküler elek etkisine sahip olmaktadır. Bu tür aktif karbon üretiminde hammadde ve aktivasyon koşullarının seçimi büyük önem kazanmaktadır. En yaygın kullanım alanı ayırma işlemleridir. Özellikle havadaki oksijen ve azot gazının ayrılması küçük mikro

gözenekler üzerinde farklı hızlarla olan difüzyondan sağlanılabilmektedir. KME gözenekleri birkaç Årgstrom çapındaki gözeneklerden oluşur. Zeolitlerle karşılaştırıldığında KME, birkaç avantajlı özellik gösterir;

- Düzlemsel olarak moleküller için mükemmel şekil seçiciliğe sahiptir.
- Yüksek hidrofobik özellikler gösterir.
- Yüksek sıcaklık ve korozyon dayanımına sahiptir.

Bu nedenle zeolit kullanılmayan yerlerde KME kullanılabileceği düşünülmektedir. Önemli olan nokta istenen gözenek boyutunda KME hazırlanabilmesidir. KME'nin gözenek oluşumu tamamıyla anlaşılmadığından ve günümüzdeki KME üretim teknolojisi kesin gözenek kontrolü sağlayamadığından KME kullanımı zeolit kullanımı kadar yaygın değildir (Suzuki ve Kyonati, 1999).

2.5.8. Aktif karbon lifi

Aktif karbon lifleri: fenolik reçine, poliakrilik reçine, viskon gibi sentetik liflerin yüksek sıcaklık ve inert atmosferde karbonizasyonu ve ardından dikkatlice aktivasyonu ile elde edilen yapılardır. Elde edilen yapının diğer aktif karbonlara göre başlıca üstünlükleri:

- Dar ve düzgün mikro gözenek yapısı ile soğurulacak faz ile daha kolay etkileşim sağlaması,
- Küçük ve düzgün lif yarıçapı ile daha hızlı adsorpsiyon ve desorpsiyon sağlaması,
- Grafitik yapısı sayesinde daha yüksek elektrik iletkenliğe ve daha yüksek sıcaklık dayanımına sahip olması,
- Daha kuvvetli ve elastik yapısıyla kâğıt ve giysi gibi farklı uygulama alanlarında kullanılabilmesi.

Tüm bu özellikleriyle aktif karbon liflerinin gelecekte çok geniş kullanım alanlarına sahip olacakları düşünülmektedir (Yang, 2003; Stavitskaya, 2000).

2.6. AKTİF KARBON UYGULAMA ALANLARI

Günümüzde aktif karbonun yaygın kullanım alanları sıvı ve buhar fazı uygulamaları şeklinde sınıflandırılabilir (Kirk-Othmer,1971).

Gaz fazı uygulamalarında 1000-2000 m²/g yüzey alanına sahip aktif karbonlar kullanılmaktadır. Gaz fazı uygulamalarında en geniş kullanım olarak; çözücü geri kazanımı, koruyucu filtreler, gaz saflaştırma, gaz emisyon kontrolü, kimyasal tepkimeyle kontrol, gaz depolama ve kataliz alanlarında kullanılmaktadır (Smisek ve Cerny,1970; Orbak, 2005).

Çözücü geri kazanımı; aktif karbon kullanılarak çözücünün geri kazanıldığı sistemler etkili ve hızlı çalışmaktadır. Çözücülerin kazanımı %85-95 oranında sağlanmaktadır. Çözücü geri kazanımı için kullanılan aktif karbonların yapısı çoğunlukla mikro gözeneklidir. Mikro gözenekler, hava içinde derişik derişimlerde bulunan aseton gibi küçük buhar moleküllerini yakalamak için güçlü adsorpsiyon özellikleri sağlarlar. Ancak son yıllarda benzen ve sikloheksanon gibi daha ağır buharların geri kazanımında daha çok mezo gözenekli aktif karbonlar kullanılmaya başlanmıştır (Kroschwitz, 1992). Çeşitli endüstriyel uygulamalarda çözücü geri kazanımına örnekler aşağıdaki Tablo 2.3 verilmiştir.

Tablo 2.3:Çözücü geri kazanımına örnekler.

Endüstri Alanı	Çözücü
Plastik, film, folyo	Eter, aseton, metil etil keton, alkoller, metil klorür, tetrahidrofur
Baskı	Toluen, triklor etan, n-heksan, petrol eteri
Lastik, kauçuk	Benzen, toluen, petrol eteri
Kuru temizleme	Tetrakloreten, floroklorohidrokarbon
Sentetik deri ve fiberler	Alkol, aseton, esterler, heksan, toluen, dimetilformamit
Yapıştırıcılar	Petrol eteri, heksan, toluen

Koruyucu filtreler; Askerialanda; gaz maskelerinin, ince veya fiberler şeklinde aktif karbon içeren koruyucu giysilerin üretiminde kullanılmaktadır. Endüstriyel alanda; havadaki kirleticilerin giderilmesinde aktif karbon filtreler kullanılmaktadır. Nükleer alanda; iyot bileşikleriyle doyurulmuş aktif karbon atmosferdeki radyoaktif iyot bileşiklerinin uzaklaştırılmasında kullanılır.

Gaz saflaştırma; saf gazların üretimi, zehirli gazlara karşı koruma, havalandırma sistemleri, sıkıştırılmış havadaki kompresör yağlarının uzaklaştırılması ve kirli havanın saflaştırılması gibi birçok süreçte aktif karbon kullanılmaktadır. İstenmeyen buhar veya gaz aktif karbon üzerine adsorplanır.

Gaz emisyon kontrolü; gaz emisyon kontrolünde kullanılan aktif karbonların yüksek sertlik, buhar altında çalışma kapasitesi ve yüksek doygunluk derecesine sahip olması gerekmektedir. Motorlu taşıtlardan çıkan gazların çevreyi kirletmesini önlemek için aktif karbon filtreler kullanılmaktadır.

Kimyasal tepkimeyle kontrol; emisyonları önlemek için gazların tutulması, aktif karbonun veya emdirilen maddelerin kimyasal özelliklerine bağlıdır.

Gaz depolama; kuvvetli adsorplanamayan sıkıştırılmış gazları depolamak için aktif karbon, basınç düşüren ortam olarak belirlenmiştir. Örneğin, doğal gaz ile çalışan yolcu taşıma araçlarında depolana doğalgaz, ticari olarak taşınabilir silindirik tüplerde kullanılmaktadır.

Kataliz; katalizör mevcut aktivasyon şartlarında ilerleyen tepkimelerin hızını arttıran ve tepkime sonucunda hiç bir şekilde ürünler tarafında yer almayan maddelerdir. Aktif karbonun da geniş iç yüzey alanı ve yüzey aktivitesi katalizör ve katalizör destekleyici olarak kullanılmasına olanak sağlar.

Sıvı faz uygulamalarında daha yüksek yoğunluğa sahip tanecikli halde, toz veya şekillendirilmiş aktif karbonlar kullanılır. Toz haldeki aktif karbonlar 0,18 mm'den küçük boyutlarda, tanecikli veya şekilli aktif karbonlarda parçacık boyu 0,2-5 mm arasındaki boyutlardır (Kroschwitz, 1992). Sıvı faz uygulamalarında kullanılmak için üretilen aktif karbonların %60'ı toz halindedir.

Tanecikli ve şekilli aktif karbonlar genellikle sıvının sabit bir yataktan geçirildiği sürekli sistemlerde kullanılmaktadır. Toz aktif karbon ise en çok karıştırma tanklarında kullanılır. Bu sistemlerde karbon sistemden filtrasyon veya çöktürme yoluyla ayrılır. Sıvı faz uygulamalarında örnek olarak atık su saflaştırma mekanizması örnek olarak verilebilir.



Şekil 2.5: Atık su saflaştırma mekanizması.

İçme suyu uygulamalarında; aktif karbonların %24'ü içme suyu işlemlerinde kullanılmaktadır. Bu işlemlerde tanecikli aktif karbon filtreleri kullanılır. Zehirli ve diğer organik maddelerin uzaklaştırılması ve buna ek olarak kötü kokuların giderilmesi için kullanılır (Kroschwitz, 1992).

Yeraltı sularının iyileştirilmesi; 1984 yılında kurulan Yeraltı Sularının Koruma Örgütü, yeraltı sularının iyileştirilmesinde aktif karbon kullanımını %4 arttırmıştır. İki yöntem kullanılmaktadır. Bunlardan biri toz halindeki tanecikli veya şekilli formdaki aktif karbonun kirletici maddeleri doğrudan adsorplamasıdır. Diğer bir yöntem ise uçucuların sudan hava yardımıyla sıyrılması ve sonra bu havanın karbon yataktan geçerken uçucularında ayrılması metodudur.

Renk Giderme; sıvı faz aktif karbonların %21'i şeker ve mısır şurubu saflaştırılmasında kullanılmaktadır. Beyaz şeker, şeker kamışı ve şeker pancarı suyundan elde edilmektedir. Elde edilen çözeltide renk giderimi aktif karbon veya iyon değişimli reçine ile yapılmaktadır.

Kimyasal süreçlerde; aktif karbonun kullanımı toplamın %8'i kadardır. Yüksek kaliteli ürün için kirlilikler aktif karbon yardımıyla uzaklaştırılmaktadır. Şap, soda külü ve potasyum hidroksit üretimi sırasında, çözeltideki organik bileşiklerin giderilmesi buna örnek verilebilir (Kroschwitz, 1992).

Yiyecek, iecek, yemeklik yaę; bu alanda sıvı faz uygulamalarında kullanılan aktif karbonların %6'sı kullanılmaktadır. Hayvansal yağlar aktif karbon kullanılarak organik ve inorganik bileşiklerinden arındırılarak rafine edilirler. Gıda alanında aktif karbon saflaştırma işlemlerinde yaygın olarak kullanılırlar. Aktif karbon ile sadece safsızlıklar giderilir, ürünün başka değerlerine zarar verilmez (Kroschwitz, 1992).

Alkollü içkilerde kullanımı; aktif karbon alkollü ieceklerde istenmeyen tat ve kokuların giderilmesinde kullanılır (Aygün,2002). Alkollerin yapısında bulunan fenol ve trihalometanlar uzaklaştırılır.

Eczacılıkta kullanımı; sıvı ve gaz fazı uygulamalarının %6 kadarını içermektedir. Aktif karbon pek çok kimyasal ve ilaç üretim süreçlerinde kullanılmaktadır. Bu sayede düşük maliyet ve kolay depolanma avantajı sağlar.

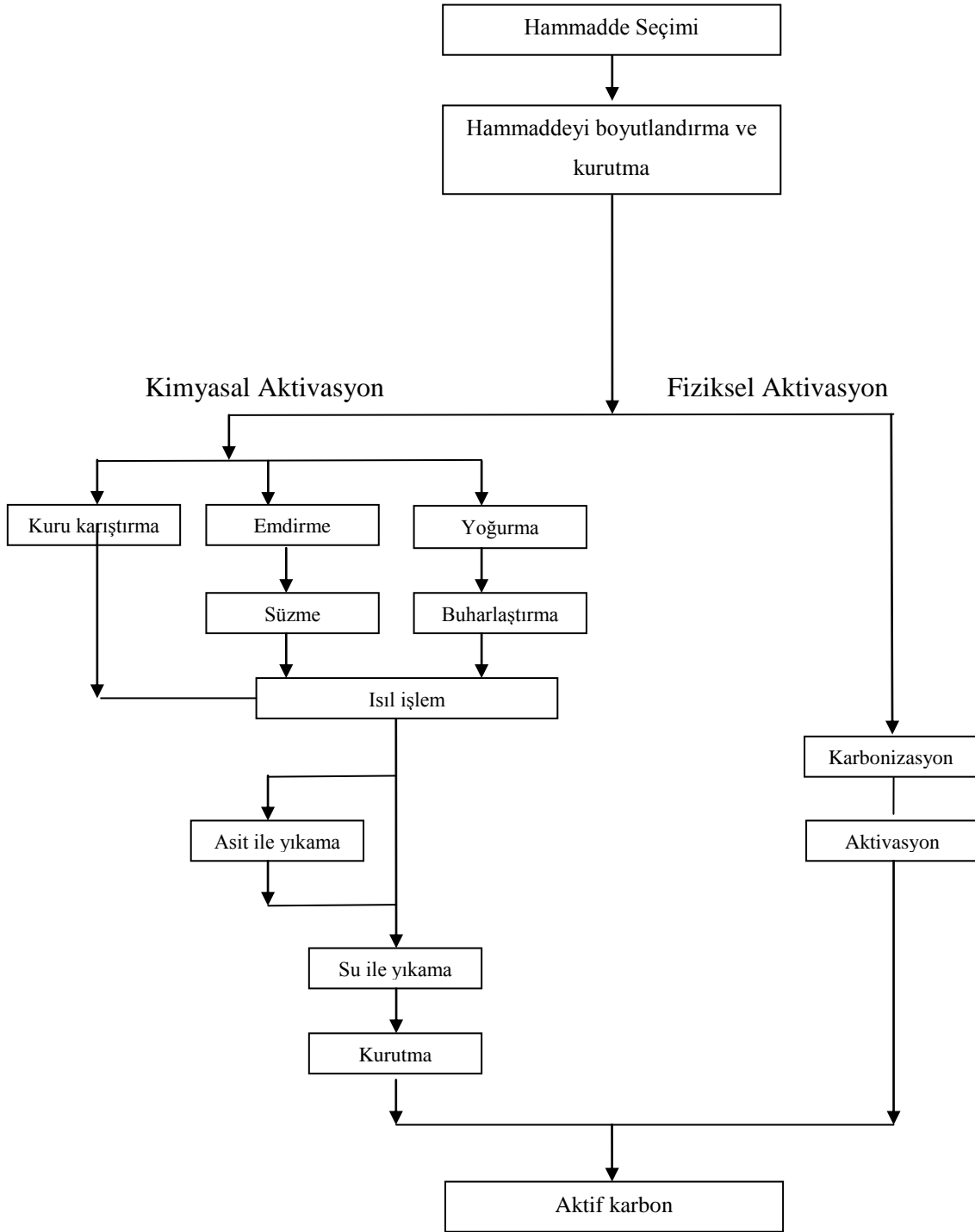
2.7. AKTİF KARBON ÜRETİMİ

2.7.1. Genel Bakış

Aktif karbon karbonik yapılı maddelerin inert ortamda ve yüksek sıcaklıklarda aynı anda veya peş peşe uygulanan iki aşama sonucu elde edilir; karbonizasyon (piroliz) ve aktivasyondur(Cheremisinoff ve Ellerbusch, 1978). Aktif karbon üretimi esnasında karbon içeren hammaddeden, karbon içermeyen kısımların (H,N,O ve S) uzaklaştırılması gerekmektedir. Ağırlıklı uçucular ilk olarak salıverilirler. Bununla beraber aromatikler ve en sonunda da hidrojen gazı salınır. Böylece yeni bağlar oluşur ve yüksek miktarda gözenek içeren yapı elde edilir(Aygün, 2002). Ancak bu yapıda kristallerin dizilişleri düzenli değildir. Bu yüzden kristaller arasında boşluklar kalır. Bu nedenle karbonizasyon sonucu elde edilen ürünün adsorplama yeteneği düşüktür. Oluşan bu kömürün iç yüzeyini arttırmak için aktivasyona gereksinim vardır(Hucknall, 1985; Gündoğdu, 2010).

Karbonizasyon sonucu üretilmiş olan karbonlu madde aktivasyon işlemiyle oluşmuş olan gözeneklerinin yarıçapı ve hacmi artar, yeni gözenekler oluşur. Oluşan bu gözeneklerin yapısı ve dağılımı hammaddenin yapısına ve karbonizasyonun şartlarına bağlıdır(Gergovave Eser,1996).

Aktifleştirilmiş karbon üretiminde kullanılan iki yöntem vardır. Bunlar kimyasal aktivasyon ve fiziksel aktivasyondur. Şekil 2.6'da aktif karbon üretim aşamaları gösterilmiştir.



Şekil 2.6: Aktif karbon üretimine ait akış şeması (Gündoğdu, 2010).

2.7.2. Hammadde Seçimi

Aktif karbon üretiminde kullanılacak olan başlangıç maddesi, yeterli miktarda karbon içeren, kolay elde edilebilen ve düşük maliyete sahip olan her madde olabilir. Kullanılacak olan hammaddelerin aşağıdaki kriterleri içermesi gerekmektedir (Ahmadpour ve Do,1995).

- Yüksek karbon içeriği
- Yüksek üretim verimi
- Düşük mineral madde içeriği
- Kolay elde edilebilme
- Düşük maliyet
- Kolay karbonize edilebilme
- Kolay aktive edilebilme
- Depolama sırasında bozulmama

Ticari aktif karbon üretiminde odun talaşı, odun, odun kömürü, turbo, linyit ve Hindistan cevizi kabukları yaygın olarak kullanılmaktadır. Kömür ve linyitten aktif karbon üretimi, yüksek oranda inorganik madde içermesinden dolayı üretim aşamasında ve sonrasında yıkama işlemi yapılır. Bu yüzden uzun ve maliyetli işlemdir (Galiatsatouve diğ., 2001). Ticari aktif karbon üretiminde kullanılan bazı başlangıç maddeleri ve kullanım oranları Tablo 2.4'te görülmektedir. Ticari aktif karbonun maliyetinin yüksek olmasından dolayı son yıllarda tarımsal atıklardan ucuz, etkili ve farklı karakterlerde aktif karbon üretilmektedir. Yapılarında sülfür ve ağır metallerin olmaması sebebiyle uzun süreli ve maliyetli işlem adımlarına gerek kalmaz (Avcı, 2008). Doğal malzemeden üretilen aktif karbonlar yüksek saflık gerektiren gıda ve ilaç endüstrisinde de kullanılabilirler. Tarımsal atıklar hemiselüloz, selüloz ve lignin olmak üzere 3 temel yapısal bileşen içeren lignoselülozik maddelerdir. Bunların dışında ayrıca ekstaktif bazı bileşenlerde içerirler. Genel olarak bu üç bileşen toplam kütleye çok büyük katkı yapan oldukça yüksek molekül külesine sahiptir. Ancak ekstraktifler düşük moleküler yapıya sahip olduklarından ana kütleye katkıları çok düşüktür. Lignoselülozik yapılar fotosentezin bir sonucu olarak oluştuklarından fotokütle olarak da adlandırılırlar (David ve Hon, 1995).

Tablo 2.4: Ticari aktif karbon üretiminde kullanılan bazı başlangıç maddeleri.

Başlangıç Maddesi	Kullanım (%)
Odun	35
Kömür	28
Linyit	14
Hindistan cevizi kabuğu	10
Turbo	10
Diğer	3

Aktif karbon üretiminde kullanılacak hammadde, aktif karbonun kullanılması amaçlanan alana, presesin yapısına, adsorplanması istenen maddenin özelliklerine ve maliyete göre seçilmektedir. Örneğin başlıca mikrogözenek içeren aktif karbonlar büyük molekülleri adsorplama yetenekleri çok düşüktür. Buna ilaveten mezo ya da makrogözenek ağırlıklı aktif karbonlar da küçük molekülleri adsorplamada düşük kapasiteye sahiptir. Yüksek lignin içeriğine sahip materyaller (üzüm ve kiraz çekirdeği) kullanıldığında başlıca makrogözenek yapısında aktif karbonlar üretilir. Öte yandan, badem ve kayısı çekirdeği gibi selüloz içeriği yüksek materyallerden de mikrogözenek içeriği yüksek aktif karbonlar elde edilir. Ancak gözenek oluşumunu özellikle kimyasal aktivasyonda kullanılan aktivasyon ajanının tipi de etkileyebilir (Savovo ve diğ.; Gündoğdu, 2010).

2.7.3. Hammaddeyi Boyutlandırma ve Kurutma

Aktif karbon üretiminde hammaddeden kullanılmadan önce nemi uzaklaştırılır. Hammaddeyi kurutmak bozulmasını önler. Özellikle odun kurutulmazsa, içerisinde bulunan bitki özsuğu içindeki dolaylı fermantasyona uğrayabilir ya da mantar oluşabilir (Diaz-Diez ve diğ., 2004).

Hammaddenin tanecik boyutu aktif karbon üretim prosesinin hızını etkileyen önemli bir faktördür. Tanecik boyutundaki artış taneciğin içinde sıcaklık gradyanlarının oluşmasına neden olur, böylece verilen zaman diliminde merkezdeki sıcaklığın yüzeye

göre daha düşük olduğu kabul edilir. Tanecik boyutu küçük olduğunda piroliz hızı artar ve gözenek hacmi artar(Encinar ve diğ., 1998).

2.7.4. Kül Giderimi

Aktif karbonların yüksek miktarda kül miktarı içermeleri istenmez. Çünkü mekanik dayanıklılık ve adsorpsiyon kapasitesini azaltır(Moreno-Castilla ve diğ., 2001). Eğer hammaddenin kül miktarı yüksek ise kullanımdan önce asitle ve/veya saf su ile yıkanmalıdır. Kimyasal aktivasyondan sonra yıkama işlemi yapma zorunluluğu vardır, bu arada hammaddenin kül içeriğinde giderilmiş olur. Ancak bazı araştırmacılar (Olivares-Marin ve diğ., 2006; Ismadji ve diğ., 2005) kimyasal aktivasyondan önce kül giderimi yapmayı tercih etmiştir. Bazı araştırmalarda (Encinar ve diğ., 1998; Ahmadpour ve diğ., 1995) ise kimyasal aktivasyondan önce yapılan kül gideriminin aktif karbon üzerinde etkisinin olmadığını göstermiştir. Kimyasal aktivasyonun aksine fiziksel aktivasyonda aktivasyon aracı oksitleyici bir gazdır. Bu yüzden aktivasyondan sonra yıkama işlemi yapılmaz. Kullanılan hammaddenin kül içeriği yüksek ise ve yöntem olarak fiziksel aktivasyon kullanılıyor ise aktivasyondan önce ya da sonra kül giderimi yapılması faydalı olabilir (Vural, 2007).

2.7.5. Kimyasal Aktivasyon

Kimyasal aktivasyonda hammaddeye bir aktivasyon kimyasalı karıştırılır veya emdirilir, daha sonra bu karışım inert ortamda ısıtılarak işleme tabi tutulur (Hayashi ve diğ., 2005). Kimyasal aktivatör olarak $ZnCl_2$, KOH , H_3PO_4 , $NaOH$ ve K_2CO_3 en çok kullanılan bileşiklerdir. Aktivasyonda kullanılan kimyasalın türü ve miktarı, elde edilen aktif karbonun kalitesini ve verimini arttırmak için önemlidir. Kimyasal aktivasyon fiziksel aktivasyona göre daha avantajlıdır(Malik ve diğ.,2006; Martinez ve diğ., 2006). Bu avantajlar;

- ✓ Fiziksel aktivasyonda iyi gelişmiş bir gözenekli yapı elde etmek için yüksek miktarda karbon tüketilir, bu yüzden katı ürün verimi oldukça azdır (Malik ve diğ.,2006).
- ✓ Fiziksel aktivasyon yüksek sıcaklarda ($800-1000^{\circ}C$), kimyasal aktivasyonda ise daha düşük sıcaklıklarda ($400-700^{\circ}C$) gerçekleştirilir (Sudaryanto, 2006).

- ✓ Aktif karbon üretiminde kimyasal aktivasyon fiziksel aktivasyona göre daha esneklerdir. Kimyasal aktivasyonda gözenek boyut dağılımının kontrolü daha kolaydır(Ahmadpour, 1995).
- ✓ Tek başına fiziksel aktivasyonda çok yüksek yüzey alanları elde edilemez, bu sadece kimyasal aktivasyonla veya kimyasal+fiziksel aktivasyonla sağlanabilir.
- ✓ Fiziksel aktivasyonda ısı işlemi iki basamakta yapılır, kimyasal aktivasyon ise tek basamaktır.

Fiziksel aktivasyonun da bazı avantajları vardır, sistemin daha az korozif olması ve emdirme-yıkama gibi işlemlere gereksinim duyulmamasıdır (Ganan, ve diğ., 2006; Vural, 2007).

2.7.5.1. *Kuru Karıştırma*

Kimyasal aktivasyon işlemi ısı işleminden önce hammaddenin kimyasal ile karıştırılması gerekir. Hammaddeye belirli miktarda kimyasal ilave edilerek fiziksel olarak karıştırılır. Bu işlem kısa sürelidir ve sonunda malzeme ısı işleme hazır hale gelir. Ancak eklenen kimyasal hammaddenin içine işlemez, yüzeyde kalır.

2.7.5.2. *Emdirme*

Emdirme yöntemi, aktif karbon üretimi için önemli bir işlemdir. Toz halde aktif karbon üretilirken, hammaddenin kimyasal ile karışım homojenliği yüksektir ama granül şeklinde aktifleştirilmiş karbon üretilecekse hammaddenin kimyasal ile karışımından emin olmak için emdirme işlemi önemlidir (Molina-Sabio ve diğ., 2004).

Emdirme yönteminde, belli bir miktar kimyasal suda çözünür ve hammadde ile belli süre de karıştırılır. Kimyasal miktarı ile hammadde miktarına ağırlıkça oranı “emdirme oranı” denir. Kuru karışım metoduna göre daha daha avantajlıdır çünkü kimyasalın maddenin içine dağılımı daha iyidir (Ahmadpour ve diğ., 1995).

2.7.5.3. *Yoğurma*

Yoğurma işlemi hammadde aktivasyon kimyasalı ve su ile karıştırılır ve yoğrulur. Yoğurma işlemi aktivasyon kimyasalını hammaddeye yedirilir. Yoğurma işleminden sonra hammadde kurutulur (Hayashi ve diğ., 2005; Adinata ve diğ., 2007).

2.7.5.4. Isıl İşlem

Kimyasal ile hammadde kuru karıştırma, emdirme, yoğurma işlemlerinden biriyle temas ettirildikten sonra ısıtma işlemine tabi tutulur. Isıl işlemde süre, sıcaklık, ısıtma hızı ve gaz kullanılması ve gazın akış hızı parametreleri vardır(Molina-Sabio. ve diğ., 2004).

2.7.5.5. Asit İle Yıkama

Kimyasal aktivasyon işlemi bittikten sonra aktif karbonun yıkama işleminden geçirilmesi iki sebepten dolayı önemlidir;

- Temas ettiği akışkanı kirletmemesi
- Tıkanmış olan gözeneklerin açılması ve adsorpsiyon kapasitesinin artması

Yıkama işlemi sonrasında hem aktivasyon kimyasalı hem de gözenek girişlerinde birikmiş olan is giderilmiş olur. Asit ile yıkama işlemi sonucunda karbondaki bulunan tüm alkali ve toprak alkali metaller uzaklaştırılır. Su ile yıkama işleminde ise, asitle yıkamadan sonra kalan asit giderilmiş olur (Ahmadpour ve diğ., 1995).

2.7.6. Fiziksel Aktivasyon

Fiziksel aktivasyon iki aşamadan oluşur. İlk olarak hammadde inert atmosferde düşük bir sıcaklıkta karbonize edilir ve uçucu maddelerin uzaklaşması sağlanır, sonra elde edilen madde reaktif bir atmosferde (CO₂, hava, su buharı..vb) daha yüksek bir sıcaklıkta aktive edilir (Hayashi, ve diğ., 2005).

2.7.6.1. Karbonizasyon

Hammadde içerisindeki nemin ve uçucu maddenin inert ortamda giderilmesi sonucu temel gözenekli yapının oluştuğu aşamadır. Karbonizasyon işlemi, ürünün karbon içeriği ve mineral madde miktarına göre kül içeriği göreceli olarak artmaktadır. Yavaş karbonizasyon da ısıtma hızı düşük süresi uzundur. Yavaş karbonizasyonda, yüksek verim elde edilir. Hızlı karbonizasyonda verim düşüktür. Fiziksel aktivasyonda gözenek gelişimi için ilk basamak karbonizasyon sürecidir (Encinar ve diğ.,1998).

2.7.6.2. Aktivasyon

Karbonizasyon sonucu elde edilmiş çarın reaktif bir atmosferde ısıtılması sonucu elde edilen aktif karbondur. Reaktif olarak CO₂, hava veya su buharıdır. CO₂ yardımıyla aktifleştirme endotermik bir reaksiyondur ve hızı yavaştır (Encinar, ve diğ.,1998).

2.8. ADSORPSİYON

Atom, iyon ya da moleküllerin, bir katı yüzeyde yoğunlaşması ve birikmesi işlemi adsorpsiyon denir. Tutunan taneciklerin yüzeyden ayrılmasına desorpsiyon, yüzeyde biriken maddeye adsorplanan (adsorben), adsorplayan maddeye adsorbent ya da adsorban denir (Sarıkaya, 1993). Adsorpsiyon sıvı-sıvı, sıvı-gaz, sıvı-katı ya da gaz-katı gibi iki faz arasında oluşur. Bu iki fazı ayıran yüzeyler ara yüzey olarak isimlendirilir (Gündoğdu, 2010). Adsorpsiyon olayı ilk olarak gazlar için 1773 yılında, çözeltiler içinse 1785 yılında gözlemlenmiştir (Kraemer, 1930). Sabit sıcaklık ve basınçta kendiliğinden gerçekleştiği için, adsorpsiyon esnasında entalpi değişimi daima negatiftir. Gaz ve sıvı ortamda tanecikler daha düzensiz olduğundan katı yüzeyine tutunarak daha düzenli hale gelirler ve bu yüzden entropi değişimi de negatif işaretlidir (Şen, 2009).

Moleküller ve atomlar yüzeylere çekim kuvvetlerine bağlı olarak fiziksel, kimyasal adsorpsiyon ve iyonik şekilde üç yolla tutunabilirler.

Fiziksel adsorpsiyona neden olan kuvvetler bir gazın yoğunlaşarak sıvı faza dönüşmesine neden olan kuvvetlerle aynıdır, buna van der Waals kuvvetleri denir. Adsorplanan madde, katının kristal örgüsü içine girmez, adsorbanın yüzeyinde birikir ve gevşek bir tabaka oluşturur. Burada adsorplanan moleküller yüzeyin belirli bir bölgesinden ziyade tüm yüzeyde dağılım gösterir. Düşük sıcaklık aralığında oluşabildiğinden ideal adsorpsiyon olarak kabul edilir (Alberty ve diğ., 1992; Gregg ve diğ., 1982) Kimyasal adsorpsiyon ise kimyasal bağların oluşumunu gerektirir. Entalpi değişimi fiziksel adsorpsiyona göre çok daha yüksektir (Şen, 2009; Alberty ve diğ., 1992). Adsorbat yüzey üzerinde bir molekül kalınlığında tabaka oluşturur, moleküller yüzey üzerinde hareket etmezler. Adsorban yüzeyin tamamı monomoleküler tabaka ile kaplandığında, adsorbanın adsorplama kapasitesi bitmiş olur. Bu yüzden tersinmezdir (Bailey ve diğ., 1999).

İyonik adsorpsiyonda ise, iyonlar yüzeydeki yüklü bölgelere elektrostatik çekim kuvvetlerinin etkisi ile tutunur. Burada adsorplayan ve adsorplanan maddelerin iyonik özellikleri önemlidir. Zıt yüklü adsorbat ile adsorban yüzeyinin birbirini çekmesi önemlidir. İyonlar es yüklü ise, ilk olarak daha küçük olan yüzeyde tutunur.

Adsorpsiyon olaylarında farklı adsorpsiyon türleri beraber veya ard arda görülebilir (Berkem ve diğ. 1984).

Tablo 2.5: Fiziksel ve kimyasal adsorpsiyon arasındaki farklar (Ülküseven, 1993).

Parametre	Fiziksel Adsorpsiyon	Kimyasal Adsorpsiyon
Adsorban	Bütün katılar	Bazı katılar
Adsorplanan	Çözünmüş maddeler	Çözünmüş maddeler
Sıcaklık sınırı	Kritik sıcaklık altında bütün gazlar	Bazı kimyasal reaktif gazlar
Adsorpsiyon ısısı	Düşük sıcaklık	Yüksek sıcaklık
Hız (aktivasyon enerjisi, E_a)	Düşük	Yüksek (tepkime ısisına uygun)
Geri dönüşüm hızı	Çok hızlı (düşük E_a)	Aktif olmayan, düşük E_a
Önem	Aktif olan, yüksek E_a	Tersinmez
	Tersinir	
	Yüzey alanı ve gözenek boyutu	
	tayini için	Aktif merkez alanının tayini için

2.8.1. ADSORPSİYONA ETKİ EDEN PARAMETRELER

2.8.1.1. Adsorban

Adsorbanın yüzey yapısı ve miktarı adsorpsiyonun verimi için önemlidir. Adsorplanan madde miktarı yüzey alanı arttıkça artar. Adsorplanan yüzeyin gözenekli olması veya öğütülmüş olması yüzeye tutulmayı sağlar. Aktif karbonun gözenek büyüklüğü adsorpsiyon izotermini etkiler (Ekici, 2007; Döşemen, 2009).

2.8.1.2. Sıcaklık

Adsorpsiyon işlemi genellikle ekzotermik olarak gerçekleşen tepkime olduğundan sıcaklık arttıkça azalır (Weber, 1972).

2.8.1.3. pH

Adsorpsiyon genellikle azalan pH ile artma gösterir. pH'nın nötral olduğu durumları adsorpsiyon hızı en yüksektir.

2.8.1.4. Adsorbat

Adsorbatın çözelti fazındaki çözünürlüğü arttıkça adsorpsiyon şiddeti azalır. Çözünürlüğünün yanı sıra adsorbatın molekül büyüklüğünde adsorpsiyonu etkiler. Molekül yapısı küçük olan moleküller için daha hızlı gerçekleşir. Adsorbatın iyonlaşma özelliğide adsorpsiyonu etkiler. İyonik olmayan adsorbatlar, iyonik olanlara göre daha

kolay ve hızlı adsorplanırlar. Adsorbatın polar ve apolar olması da adsorpsiyonu etkiler. Apolar çözücü içerisinde bulunan polar bileşik, polar bir adsorban tarafından daha kolay adsorplanır; ancak polar bir çözücü apolar adsorbana tercih edeceğinden adsorpsiyon zorlaşır (Ho, 1999; Weber, 1972).

2.8.2. ADSORPSİYON İZOTERMLERİ

Sabit sıcaklıkta adsorban tarafından adsorplanmadan kalan madde konsantrasyonu C_e ile adsorbanın birim miktarı başına tuttuğu madde miktarı q_e arasındaki bağıntıya adsorpsiyon izotermi denir. Adsorpsiyon, adsorban üzerinde biriken madde konsantrasyonu ve çözeltide kalan madde konsantrasyonu arasında denge meydana gelinceye kadar devam eder. Denge anında sabit sıcaklıkta çözeltide kalan adsorbat konsantrasyonuna karşı, adsorbe edilen madde miktarı arasında grafik çizilerek adsorpsiyon izotermi elde edilir. Bir adsorplamanın hangi modele uygun olduğunun anlaşılması için sonuçlar bütün denklemlere uygulanır. Elde edilen sonuçlarda doğrusal bir grafik oluşturulması sonucu elde edilen eğrinin R^2 değerinin 1'e yakın olan adsorplama için en uygun izotermdir (Kılıç, 2004; Qada, 2006) . Gazlar için konsantrasyon genellikle mol yüzdesi ve kısmi basınç ile ifade edilirken, sulu çözeltiler için ise mg.L^{-1} , mol.L^{-1} , ppm vs. ile ifade edilir (Gündoğdu, 2010).

Giles and Smith (1974), çözeltiden adsorpsiyon izotermelerini dört gruba ayırmışlardır. Bu dört tip izotermden en önemlileri S ve L tipi izotermeldir. L tipi izoterm, konsantrasyon eksenine konkavdır (IUPAC göre sınıflandırmada I. Tip). S tipi izoterm ise konsantrasyon eksenine önce konveks daha sonra konkavdır (IUPAC göre sınıflandırmada III. Tip veya V. Tip)

2.8.2.1. Langmuir İzotermi

Langmuir izotermi Amerikan bilim adamı Irving Langmuir tarafından 1916 yılında kimyasal adsorpsiyon için türetilmiştir. Tek tabakalı fiziksel adsorpsiyon ve çözeltiden adsorpsiyon uygulamalarında kullanılır. Moleküllerin hiç hareket etmediği, doygun bir tabakanın oluştuğu andaki adsorplamadır. Şu denklemle ifade edilir.

$$\frac{C_e}{Q_e} = \frac{1}{K_L Q_m} + \frac{C_e}{Q_m} \quad (3.1)$$

C_e = adsorpsiyon sonrasında çözültide kalan maddenin konsantrasyonu (mg/l)

Q_e = birim adsorban üzerinde adsorplanan madde miktarı (mg/g)

K_L = adsorpsiyon enerjisine bağlı olan sabit (1/mg)

Q_m = tek tabakalı adsorpsiyon kapasitesi (mg/g)

C_e / Q_e değerinin C_e değerini karşı değişiminin grafikte gösterilmesiyle ortaya çıkan doğrunun eğimi $1 / Q_m$ ve kesim noktası ise $1 / K_L \times Q_m$ değerlerini verir (Langmuir, 1916). Q_m değeri adsorbanın maksimum adsorplama kapasitesini verecektir. Ancak tek tabakalı adsorpsiyonun meydana geldiği heterojen sistemlerde langmuir çok açıklayıcı olmaz.

Adsorpsiyonun elverişliliği konusunda yorum yapabilmek için boyutsuz bir sabit ve ayırma faktörü olan R_L eşitliği kullanılır.

$$R_L = \frac{1}{1 + b \times C_o} \quad (3.2)$$

C_o = adsorbatın başlangıç konsantrasyonu (mg.L⁻¹)

b = langmuir sabiti (L. Mg⁻¹)

R_L = adsorbat- adsorban arasındaki adsorpsiyon uygunluğunu ifade eder.

1. $0 < R_L < 1$, adsorpsiyon uygundur.
2. $R_L > 1$, adsorpsiyon uygun değildir.
3. $R_L = 1$, adsorpsiyonun doğrusallığını gösterir.
4. $R_L = 0$, adsorpsiyon tersinmezdir (Hall, 1966).

2.8.2.2. Freundlich İzotermi

Freundlich izotermi Alman Fizikokimyacı Herbert Max Finley Freundlich tarafından geliştirilmiştir. Belli bir miktardaki adsorbent tarafından adsorplanan madde miktarı (x/m), başlangıçta basınçla veya konsantrasyonla hızla artar ve daha sonra katı

yüzeyinin dolmasıyla daha yavaş artış gösterir. (Q_e)'in basınçla veya konsantrasyonla değişimi Freundlich eşitliğidir (Freundlich,1906). Seyreltik çözeltiler ve dar konsantrasyon aralıkları için uygundur(İskeçeli, M., 2010). Freundlich izotermi aşağıdaki gibi belirtilir;

$$(Q_e) = K_f \times C_e^{1/n} \quad (3.3)$$

$$(Q_e) = K_f \times P_e^{1/n} \quad (3.4)$$

şeklinde ifade edilir. Bu denklem lineerleştirilirse,

$$\log(Q_e) = \log K_f + 1/n \log C_e \quad (3.5)$$

denklemini elde edilir.

Q_e = dengedeki birim adsorban üzerine adsorplanan madde miktarı

C_e = denge anında çözeltide kalan maddenin konsantrasyonu

K_f = freundlich adsorpsiyon kapasitesi

n = freundlich adsorpsiyon sabiti

$\log Q_e$ 'nin $\log C_e$ 'ye karşı çizildiği grafik bir doğru belirtir. Grafiğin eğimi $1/n$ 'yi, kesim noktası ise $\log K_f$ 'yi vermektedir. Bu eşitlik hem fiziksel hem de kimyasal adsorpsiyona uygulanabilir (Ng, 2003; İskeçeli, 2010).

2.8.2.3. Temkin İzotermi

Temkin izotermi, adsorbanla adsorbat arasındaki etkileşimden dolayı adsorpsiyon enerjisinde lineer bir azalma olacağı tahmininden giderek Temkin ve Phyzhem tarafından türetilmiştir (Kabak, 2008). Bu eşitlik;

$$Q_e = \frac{RT}{b} \ln(K_t \times C_e) \quad (3.6)$$

Eşitliğin lineer duruma getirirsek;

$$Q_e = B \ln K_t \quad (3.7)$$

$$Q_e = B \times \ln K_t + B \times \ln C_e \quad (3.8)$$

Bu eşitlikte B , temkin sabiti olup adsorpsiyon ısısı ile ilgilidir (J/mol). K , temkin izoterm sabiti (L/g), R ideal gaz sabiti (8,314 j/molK), T ortam sıcaklığı ve lineer halde bulunan $B=RT/b$ oranıdır.

Adsorpsiyon kapasitesinin Q_e 'nin, denge konsantrasyonu C_e 'ye karşılık grafik çizilerek izoterm sabitleri hesaplanır (Otun ve diğ., 2006;İskeçeli, 2010).

3. MALZEME VE YÖNTEM

3.1. MALZEME

3.1.1. Kullanılan Malzemeler

Deneysel çalışmalarda Giresun yöresinden temin edilen fındık kabuğu, Fethiye yöresinden temin edilen portakal kabuğu ve Adana yöresinden temin edilen kavun çekirdeği kullanılmıştır. Kimyasal aktivasyon işlemine tabi tutulan numunelerde aktivatör olarak Merck marka H_3PO_4 ve $ZnCl_2$ çözeltileri kullanılmıştır. Adsorpsiyon çalışmasında Merck marka asetik asit (% 99,5) kullanılmıştır.

H_3PO_4 kimyasal aktivatörü aktivasyon yöntemlerinde en çok kullanılan kimyasallardan biridir. En önemli özelliği düşük sıcaklıkta ve tek aşamada gerçekleşmesidir. $ZnCl_2$ ise aktivasyon işlemlerinde çok kullanılan bir Lewis asididir.

Ayrıca tüm çalışmalarda destile su kullanılmıştır.

3.1.2. Kullanılan Cihazlar

Deneysel çalışmalarda karbonizasyon ve aktivasyon işlemleri için Elektromag marka dijital göstergeli 1000 °C sıcaklığa kadar ulaşabilen fırın kullanıldı. Çalışmaların inert ortamda gerçekleştirileceği için fırın içine azot gazı geçişi yapılacak şekilde düzenekte yapıldı. FTIR analizleri için Perkin Elmer model FTIR analizi cihazı ile 650 cm^{-1} – 4000 cm^{-1} arası ölçüm yapıldı. SEM fotoğrafları FEI Quanta FEG-450 model cihaz ile yapıldı.



Şekil 3.1: Deney düzeneği.

3.2. YÖNTEM

3.2.1. Malzemelerin Hazırlanması

Deneysel çalışmalarda kullanılacak hammaddeler (findikkabuğu, portakal kabuğu, kavun çekirdeği) ilk olarak safsızlıkların ayrılması için destile su ile yıkanmıştır. Yıkanan malzemeler belirli bir süre laboratuvarında kurutulmaya bırakılmıştır. Tamamen neminden arındırılan hammaddeler havanda dövülerek, 50 – 100 µm arası tanecik büyüklüğüne getirilmiştir. Ardından eleklerden geçirilerek istenilen boyutlarda malzemeler elde edilmiştir. Bu numuneler kimyasal aktivasyonda kullanılmak üzere ağzı kapalı kaplarda muhaza edilmiştir.

3.2.2. Aktif Karbonların Hazırlanması

Deneysel çalışmalarda kullanılacak aktif karbonlarfindikkabuğu, portakal kabuğu, kavun çekirdeğinin $ZnCl_2$ ve H_3PO_4 kimyasal aktivatörleri kullanılarak aktive edilmesiyle üretilmiştir.

Aktivatör kullanılmadan; Kurutulup, havanda dövülmüş malzemeler 100 µm'den elenerek 20 gramlık findikkabuğu, portakal kabuğu, kavun çekirdeği örnekleri elde edilmiştir. Bu örneklerden her seferinde 1'er gram alınarak 300°C – 500°C ısıtılmış kül fırınında 50 ml/ dk N_2 gazı varlığında 1 saat piroliz edilmiş ve sonrasında N_2 varlığında soğutulmaya bırakılmıştır. Soğutulan örnekler destile su ile nötral oluncaya kadar 3-4 defa yıkanmıştır. Yıkanan örnekler 100°C etüvde kurutulmuştur. Sonrasında örnekler

tekrar havanda dövülerek 0-50 µm'lik elekten elenmiştir. Elde edilen örnekler deneylerde kullanılmak üzere saklanmıştır.

ZnCl₂ kullanılarak; Kurutulup, havanda dövülmüş malzemeler 100 µm'den elenerek 20 gramlık fındikkabuğu, portakal kabuğu, kavun çekirdeği örnekleri elde edilmiştir. Bu örneklerden her seferinde 1'er gram alınarak %30 ve %60'lık hazırlanan ZnCl₂çözeltisinin 2 gramı (1:2)ile ıslatılarak bir süre bekletilmiştir. Aktivasyon kimyasalı ile ıslatılmış örnekler 100°C etüvde bekletilmiştir. Kurutulan örnekler 300°C – 500°C ısıtılmış kül fırınında 50 ml/ dk N₂ gazı varlığında 1 saat piroliz edilmiş ve sonrasında N₂ varlığında soğutulmaya bırakılmıştır. Soğutulan örnekler fırından alınarak ZnCl₂fazlasının arındırılması için 0,5M HCl çözeltisiyle ve ardından ılık destile su ile 3-4 defa yıkanmıştır. Yıkanan örnekler 100°C etüvde kurutulmuştur. Sonrasında örnekler tekrar havanda dövülerek 0-50 µm'lik elekten elenmiştir. Elde edilen örnekler deneylerde kullanılmak üzere saklanmıştır.

H₃PO₄ kullanılarak; Kurutulup, havanda dövülmüş malzemeler 100 µm'den elenerek 20 gramlık fındikkabuğu, portakal kabuğu, kavun çekirdeği örnekleri elde edilmiştir. Bu örneklerden her seferinde 1'er gram alınarak %30 ve %60'lık hazırlanan H₃PO₄ çözeltisinin 2 gramı (1:2)ile ıslatılarak bir süre bekletilmiştir. Aktivasyon kimyasalı ile ıslatılmış örnekler 100°C etüvde bekletilmiştir. Kurutulan örnekler 300°C – 500°C ısıtılmış kül fırınında 50 ml/ dk N₂ gazı varlığında 1 saat piroliz edilmiş ve sonrasında N₂ varlığında soğutulmaya bırakılmıştır. Soğutulan örnekler fırından alınarak H₃PO₄ fazlasının arındırılması için ılık destile su 3-4 defa yıkanmıştır. Yıkanan örnekler 100°C etüvde kurutulmuştur. Sonrasında örnekler tekrar havanda dövülerek 0-50 µm'lik elekten elenmiştir. Elde edilen örnekler deneylerde kullanılmak üzere saklanmıştır.

3.2.3. Aktif Karbonların Verim Hesabı

Farklı sıcaklık ve konsantrasyonda fındikkabuğu, portakal kabuğu, kavun çekirdeği kullanılarak yapılan aktivasyon sonucu elde edilen aktif karbonların verimleri hesaplandı. Hammaddelerin başlangıç miktarı, kimyasal aktivatör ile emdirilmiş miktarı ve aktivasyon sonucu elde edilen aktif karbon miktarları kayıt edilmiştir. Verim hesabı yapılırken;

Verim=(100 x elde edilmiş aktif karbon)/emdirilme sonrası miktar

3.2.4. Aktif Karbonların Asetik Asit Adsorpsiyonunda Kullanılması

Fındıkkabuğu, portakal kabuğu, kavun çekirdeğinden elde edilen aktif karbonların; asetik asit (%99,5) kullanılarak adsorplama kapasitelerinin karşılaştırılması yapılmıştır.

Her bir üretilmiş aktif karbon için adsorpsiyon parametreleri belirlenmiş ve uygulanmıştır. Adsorplama kapasitelerinin karşılaştırılıp adsorpsiyon izotermelerinin hesaplanabilmesi için sadece başlangıç asit konsantrasyonu değiştirilmiştir.

Bu işlem; 4 adet erlen içerisine 0,1 g aktif karbon ve 4 farklı konsantrasyona sahip (%4 - %6 - %8 - %10) asit çözeltilerinden 4 ml ilave edilmiştir. Asit çözeltisiyle temas ettirilen aktif karbonlar dengeye gelene kadar iki saat oda sıcaklığında su banyosunda karıştırılmıştır.

İki saat sonunda her bir örnek süzgeç kağıdı yardımıyla süzölmüştür. Süzöntüden alınan belli bir miktar 0,1 N NaOH ile titre edilmiştir.



Şekil 3.2: Adsorpsiyon denemeleri.

Titrasyon sonucunda elde edilen sarfiyat kayıt edilerek, aşağıdaki formüller yardımıyla denge konsantrasyonu ve adsorpsiyon yüzdesi hesaplanmıştır.

$$X = C_o - C_e$$

X = Adsorbe edilmiş asit miktarı

C_o = Başlangıç asit konsantrasyonu (mg/L)

C_e = Son asit konsantrasyonu (mg/L)

$$Q_e = \frac{C_o - C_e}{m} \times V$$

Q_e = Dengeki birim adsorban üzerine adsorplanan madde miktarı (mg/g)

M = Adsorban miktarı (g)

V = Hacim (L)

Adsorplama yüzdesi de aşağıdaki formülle hesaplanmıştır;

$$\%R_e \times Ac = \frac{C_o - C_e}{C_o} \times 100$$

$\%R_e$. Ac = Adsorplama yüzdesi

C_o = başlangıçtaki adsorbat konsantrasyonu (mg/L)

C_e = dengedeki adsorbat konsantrasyonu (mg/L)

4. BULGULAR

4.1. AKTİF KARBONLARIN VERİM HESABI

Başlangıç hammaddeleri fındikkabuğu, portakal kabuğu, kavun çekirdeği ile 300°C ve 500°C sıcaklığında ve %30 - %60 konsantrasyon da ZnCl₂ ve H₃PO₄ aktivatörleri kullanılarak yapılan kimyasal aktivasyon sonucunda elde edilen aktif karbonların verimleri aşağıda listelenmiştir.

Tablo 4.1: Fındikkabuğundan elde edilen aktif karbonların verimleri.

Aktivatör	Aktivatör Kons.	Aktivasyon sıcaklığı (°C)	Emdirme oranı (g/g)	İlk ağırlık (g)	Karbonizasyon sonrası ağırlık (g)	Verim (%)
ZnCl ₂	%60	300°C	1:2	3,086	1,982	64,22
H ₃ PO ₄	%60	300°C	1:2	3,025	1,700	56,18
ZnCl ₂	%30	300°C	1:2	3,095	1,700	54,93
H ₃ PO ₄	%30	300°C	1:2	3,068	1,130	36,84
ZnCl ₂	%60	500°C	1:2	3,074	0,846	27,52
H ₃ PO ₄	%60	500°C	1:2	3,105	0,725	23,33
H ₃ PO ₄	%30	500°C	1:2	3,117	0,682	21,88
ZnCl ₂	%30	500°C	1:2	3,100	0,609	19,65

Tablo 4.2: Portakal kabuğundan elde edilen aktif karbonların verimleri.

Aktivatör	Aktivatör Kons.	Aktivasyon sıcaklığı (°C)	Emdirme oranı (g/g)	İlk ağırlık (g)	Karbonizasyon sonrası ağırlık (g)	Verim (%)
H ₃ PO ₄	%60	300°C	1:2	3,082	1,081	35,08
ZnCl ₂	%60	300°C	1:2	3,094	1,047	33,85
H ₃ PO ₄	%30	300°C	1:2	3,088	0,972	31,49
ZnCl ₂	%30	300°C	1:2	3,033	0,804	26,51
H ₃ PO ₄	%60	500°C	1:2	3,099	0,719	23,20
ZnCl ₂	%60	500°C	1:2	3,138	0,703	22,40
H ₃ PO ₄	%30	500°C	1:2	3,165	0,686	21,66
ZnCl ₂	%30	500°C	1:2	3,262	0,496	15,20

Tablo 4.3: Kavun çekirdeğinden elde edilen aktif karbonların verimleri.

Aktivatör	Aktivatör Kons.	Aktivasyon sıcaklığı (°C)	Emdirme oranı (g/g)	İlk ağırlık (g)	Karbonizasyon sonrası ağırlık (g)	Verim (%)
H ₃ PO ₄	%60	300°C	1:2	3,036	0,956	31,48
H ₃ PO ₄	%30	300°C	1:2	3,090	0,887	28,69
ZnCl ₂	%60	300°C	1:2	3,117	0,893	28,65
ZnCl ₂	%30	300°C	1:2	3,057	0,856	27,99
H ₃ PO ₄	%60	500°C	1:2	3,090	0,795	25,71
ZnCl ₂	%30	500°C	1:2	3,057	0,524	17,15
ZnCl ₂	%60	500°C	1:2	3,040	0,288	9,49
H ₃ PO ₄	%30	500°C	1:2	3,023	0,255	8,42

Fındikkabuğundan elde edilen aktif karbonların verimlerine bakıldığında en yüksek 300°C sıcaklıkta ZnCl₂'nin %60'lık çözeltisi kullanılarak elde edilen malzemenin veriminin (%64,22) olduğu görülmektedir. 500°C sıcaklıkta ZnCl₂'nin %60'lık çözeltisi kullanılarak elde edilen aktif karbon veriminin (27,52) ise daha düşük olduğu görülmektedir. Buna göre sıcaklık arttırıldığında verimin azaldığı söylenebilir. Karbonizasyon verimi büyük ölçüde hammaddeyi oluşturan organik grupların karbonizasyon esnasında daha küçük moleküllere parçalanarak ortamdan ayrılmasına bağlıdır. Sıcaklık arttıkça karbon dışındaki elementler (H,N,O ve S) ile uçucu moleküllerin ayrılması mümkün olmakta ve geriye karbon içeriği daha yüksek ürün kalmaktadır. Aktifleştirme sonrasında fosforik asit ve çinko klorür fazlası yıkama sonrası ortamdan tamamen uzaklaştırılamayacağı için, elde edilen ürünlerde bulunmaktadır. Aynı ortam şartlarında ancak kullanılan aktivatör ve konsantrasyondeğiştirdiğimizde; elde edilen verimin az miktarda değişim gösterdiği görülmektedir.

Portakal kabuğu ile yapılan deneysel çalışmaların sonucunda; en yüksek verimin (%35,08) %60'lık çözeltisi hazırlanan H₃PO₄ aktivatörü ile gerçekleştiği görülmektedir. Burada fındikkabuğu ile yapılan çalışmaya benzer olarak sıcaklık arttırıldığında verim azalmaktadır. Ancak malzemenin verimlerine bakıldığında fındikkabuğuna göre daha az olduğu görülmektedir. Bu yüzden portakal kabuğunda karbon dışında bulunan elementler ve uçucu madde miktarı daha fazla olduğu söylenebilir.

Kavun çekirdeği ile yapılan çalışmaların sonucunda en yüksek verimin (%35,08) 300°C'de %60'lık çözeltisi hazırlanan H₃PO₄ aktivatörü ile elde edildiği görülmektedir.

Verimin portakal kabuğu ile yakın olduğu söylenebilir. Ancak sıcaklık arttırıldığında uçucu madde miktarının kavun çekirdeğinde daha yüksek olduğu söylenebilir.

Tablo 4.4: Kimyasal aktivatör kullanılmadan hammaddelerin karbonize edilmesi sonucu elde edilen ürünlerin verimi.

Hammadde	Aktivasyon sıcaklığı (°C)	İlk ağırlık (g)	Karbonizasyon sonrası ağırlık (g)	Verim (%)
Fındıkkabuğu	300°C	1,03	0,487	47,05
Portakal kabuğu	300°C	1,02	0,348	34,22
Kavun çekirdeği	300°C	1,04	0,385	36,90
Fındıkkabuğu	500°C	1,02	0,377	36,89
Portakal kabuğu	500°C	1,10	0,316	28,56
Kavun çekirdeği	500°C	1,06	0,300	28,37

Tablodan da görüldüğü gibi fındıkkabuğundan elde edilen ürünün verimi daha yüksektir. Aynı zamanda sıcaklık arttırıldıkça karbon dışındaki elementlerin ve uçucu maddelerin artması, üründe bulunan külün karbonizasyon ürünü içerisindeki ağırlığını arttırmaktadır. Bu yüzden sıcaklık arttırıldıkça verim düşmektedir.

4.2. ASETİK ASİT İLE ADSORPSİYONU ÇALIŞMALARININ SONUCU

Yukarıdaki çalışmalar sonucunda elde edilen aktif karbonlardanyüksek ve düşük verime sahip olan örneklerden seçilmiş ve adsorplama kapasitelerinin karşılaştırılması yapılmıştır. Farklı hammaddeden üretilen aktif karbonların karşılaştırılması yapılabilmesi için, adsorpsiyon parametrelerinden sadece başlangıç konsantrasyonun etkisi incelenmiştir. Adsorpsiyonu etkileyen diğer parametreler olan; dengeye gelme süresi (2 saat), başlangıç aktif karbon miktarı (0,1g) ve sıcaklık (oda sıcaklığında)her bir örnek için aynı alınmıştır.

4.2.1. Fındikkabuğundan Üretilen Aktif Karbonların Asit Adsorpsiyonu

Tablo 4.5: %30 ZnCl₂ kullanılarak 300°C’de fındikkabuğundan üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.

C _o (mg/l)	Ads. min (g)	V (ml)	C _e (%)	C _e (mg/l)	X= C _o -C _e	Q _e (mg/g)	% Adsorpsiyon
40000	0,1	2,47	3,72	37195,34	2804,66	112,19	7,01
60000	0,1	4,23	5,66	56593,61	3406,39	136,26	5,68
80000	0,1	6,77	7,59	75874,88	4125,12	165,00	5,16
100000	0,1	7,13	9,51	95077,55	4922,45	196,90	4,92

Tablo 4.6: %60 ZnCl₂ kullanılarak 300°C’de fındikkabuğundan üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.

C _o (mg/l)	Ads. min (g)	V (ml)	C _e (%)	C _e (mg/l)	X= C _o -C _e	Q _e (mg/g)	% Adsorpsiyon
40000	0,1	2,60	3,65	36499,89	3500,11	140,00	8,75
60000	0,1	4,47	5,61	56103,07	3896,93	154,03	6,49
80000	0,1	6,07	7,57	75685,95	4314,05	159,78	5,39
100000	0,1	7,80	9,54	95402,35	4597,65	170,28	4,60

Tablo 4.7: %60 H₃PO₄ kullanılarak 300°C’de findikkabuğundan üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.

C _o (mg/l)	Ads. min (g)	V (ml)	C _e (%)	C _e (mg/l)	X= C _o -C _e	Q _e (mg/g)	% Adsorpsiyon
40000	0,1	2,75	3,59	35906,09	4093,91	163,76	10,23
60000	0,1	3,85	5,58	55840,72	4159,28	166,37	6,93
80000	0,1	4,60	7,48	74760,88	5239,12	209,56	6,55
100000	0,1	8,05	9,43	94335,81	5664,19	226,57	5,66

Tablo 4.8: %60 H₃PO₄ kullanılarak 500°C’de findikkabuğundan üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.

C _o (mg/l)	Ads. min (g)	V (ml)	C _e (%)	C _e (mg/l)	X= C _o -C _e	Q _e (mg/g)	% Adsorpsiyon
40000	0,1	2,10	3,41	34100,00	5900	236,00	14,75
60000	0,1	4,30	5,24	52430,00	7570	302,80	12,62
80000	0,1	3,80	7,18	71750,00	8250	330,00	10,31
100000	0,1	5,00	9,18	91750,00	8250	330,00	8,25

4.2.2. Portakal Kabuğundan Üretilen Aktif Karbonların Asit Adsorpsiyonu

Tablo 4.9: %30 ZnCl₂ kullanılarak 300°C’de portakal kabuğundan üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.

C _o (mg/l)	Ads. min (g)	V (ml)	C _e (%)	C _e (mg/l)	X= C _o -C _e	Q _e (mg/g)	% Adsorpsiyon
40000	0,1	2,43	3,87	38698,14	1301,86	52,07	3,25
60000	0,1	3,97	5,82	58199,04	1800,96	72,04	3,00
80000	0,1	6,20	7,80	77980,55	2019,45	80,78	2,52
10000	0,1	6,53	9,72	97205,67	2794,33	111,77	2,79

Tablo 4.10: %60 ZnCl₂ kullanılarak 300°C portakal kabuğundan üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.

C _o (mg/l)	Ads. min (g)	V (ml)	C _e (%)	C _e (mg/l)	X= C _o -C _e	Q _e (mg/g)	% Adsorpsiyon
40000	0,1	3,07	3,82	38180,16	1819,84	72,79	4,55
60000	0,1	4,20	5,74	57397,12	2602,88	104,12	4,34
80000	0,1	4,70	7,71	77067,23	2932,77	117,31	3,67
100000	0,1	7,30	9,70	97040,98	2959,02	118,36	2,96

Tablo 4.11 : % 60 H₃PO₄ kullanılarak 300 °C portakal kabuğundan üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.

C _o (mg/l)	Ads. min (g)	V (ml)	C _e (%)	C _e (mg/l)	X= C _o -C _e	Q _e (mg/g)	% Adsorpsiyon
40000	0,1	1,40	3,78	37752,81	2247,19	89,89	5,62
60000	0,1	5,00	5,68	56796,67	3203,33	128,13	5,34
80000	0,1	4,10	7,62	76160,99	3839,01	153,56	4,80
100000	0,1	5,00	9,61	96061,48	3938,52	157,54	3,94

Tablo 4.12: %60 H₃PO₄ kullanılarak 500°C portakal kabuğundan üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.

C _o (mg/l)	Ads. min (g)	V (ml)	C _e (%)	C _e (mg/l)	X= C _o -C _e	Q _e (mg/g)	% Adsorpsiyon
40000	0,1	2,10	3,45	34486,80	5513,20	220,53	13,78
60000	0,1	3,90	5,38	53829,05	6170,95	246,84	10,28
80000	0,1	4,90	7,21	72050,56	7949,44	317,98	9,94
100000	0,1	4,80	9,19	91895,35	8104,65	324,19	8,10

4.2.3. Kavun Çekirdeğinden Üretilen Aktif Karbonların Asit Adsorpsiyonu

Tablo 4.13:%30 ZnCl₂ kullanılarak 300°C’de kavun çekirdeğinden üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.

C _o (mg/l)	Ads. min (g)	V (ml)	C _e (%)	C _e (mg/l)	X= C _o -C _e	Q _e (mg/g)	% Adsorpsiyon
40000	0,1	1,50	3,89	38860,10	1139,90	45,60	2,85
60000	0,1	2,50	5,87	58731,40	1268,60	50,74	2,11
80000	0,1	3,20	7,80	78048,78	1951,22	78,05	2,44
100000	0,1	3,60	9,76	97649,19	2350,81	94,03	2,35

Tablo 4.14: %60 ZnCl₂ kullanılarak 300°C’de kavun çekirdeğinden üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.

C _o (mg/l)	Ads. min (g)	V (ml)	C _e (%)	C _e (mg/l)	X= C _o -C _e	Q _e (mg/g)	% Adsorpsiyon
40000	0,1	2,20	3,88	38834,95	1165,05	46,60	2,91
60000	0,1	3,30	5,77	57725,95	2274,05	90,96	3,79
80000	0,1	4,80	7,70	77005,35	2994,65	119,79	3,74
100000	0,1	6,20	9,69	96875,00	3125,00	125,00	3,13

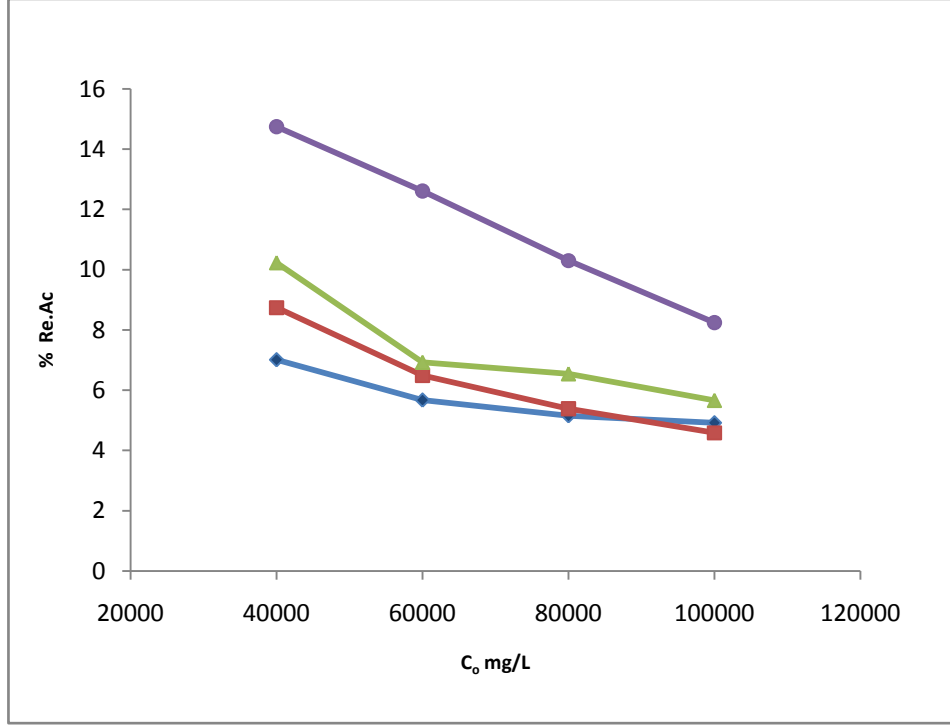
Tablo 4.15 : % 60 H₃PO₄ kullanılarak 300 °C’de kavun çekirdeğinden üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.

C _o (mg/l)	Ads. min (g)	V (ml)	C _e (%)	C _e (mg/l)	X= C _o -C _e	Q _e (mg/g)	% Adsorpsiyon
40000	0,1	1,50	3,89	38860,10	1139,90	45,60	2,85
60000	0,1	2,50	5,84	58365,76	1634,24	65,37	2,72
80000	0,1	3,20	7,80	78048,78	1951,22	78,05	2,44
100000	0,1	3,60	9,77	97737,56	2262,44	90,50	2,26

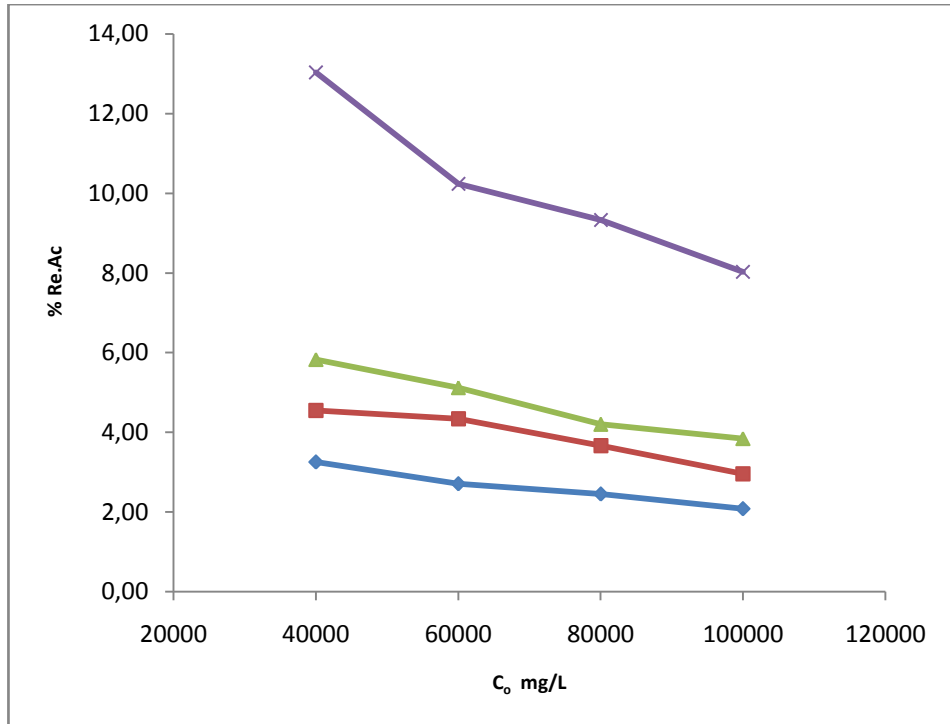
Tablo 4.16: %60 H₃PO₄ kullanılarak 500°C’de kavun çekirdeğinden üretilen aktif karbon ile asit adsorpsiyonu.

C _o (mg/l)	Ads. min (g)	V (ml)	C _e (%)	C _e (mg/l)	X= C _o -C _e	Q _e (mg/g)	% Adsorpsiyon
40000	0,1	1,63	3,78	37781,95	2218,05	88,72	5,55
60000	0,1	2,73	5,60	56013,10	3986,90	159,48	6,64
80000	0,1	3,55	7,50	75039,96	4960,04	198,40	6,20
100000	0,1	4,73	9,38	93820,98	6179,02	247,16	6,18

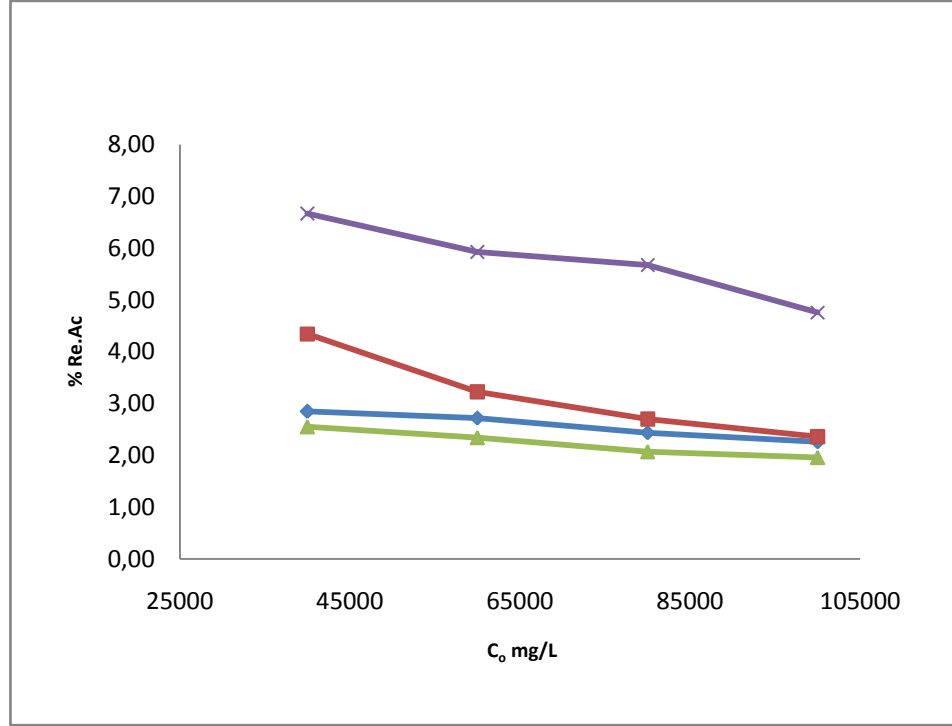
Farklı hammaddeler kullanılarak yapılan adsorpsiyon çalışmalarında başlangıç konsantrasyonu değiştirilmiştir. Yukarıdaki tablolarda her bir malzeme için değişen konsantrasyonun % Adsorpsiyon ve Q_e değerleri hesaplanmıştır. Şekil 4.1, Şekil 4.2 ve Şekil 4.3’te hesaplanan değerler kullanılarak başlangıç konsantrasyonuna karşı % adsorpsiyonun etkisini gösteren grafikler çizilmiştir. Bu grafikler incelendiğinde, başlangıç konsantrasyonu arttıkça yüzde adsorpsiyon değerinin azaldığı görülmektedir. Yüksek konsantrasyonlarda yüzde adsorpsiyon değerinin azalması adsorban yüzeyindeki uygun alanların doygunluğa ulaşması ile açıklanabilir (Çiçek vd., 2007).



Şekil 4.1: Fındıkkaşuğundan üretilen aktif karbonlar için farklı başlangıç konsantrasyonlarının yüzde adsorpsiyona etkisi.



Şekil 4.2: Portakal kaşuğundan üretilen aktif karbonlar için farklı başlangıç konsantrasyonlarının yüzde adsorpsiyona etkisi.



Şekil 4.3: Kavun çekirdeğinden üretilen aktif karbonlar için farklı başlangıç konsantrasyonlarının yüzde adsorpsiyona etkisi.

4.3. ADSORPSİYON SONUÇLARININ İZOTERMLERE UYGULANMASI

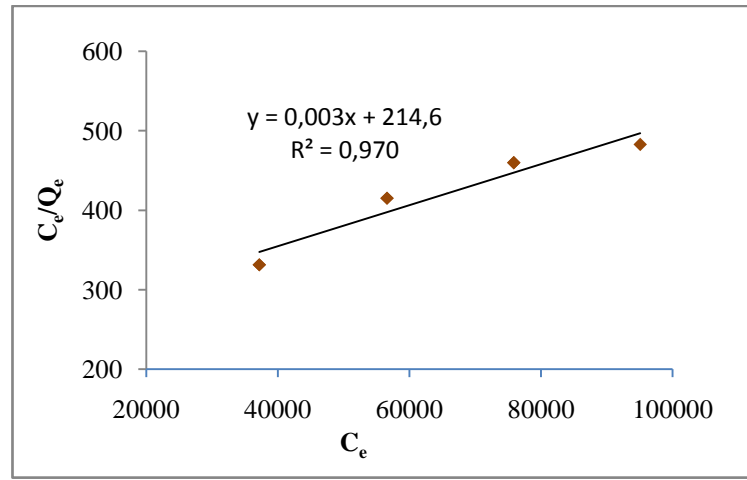
Fındıkkabuğu, portakal kabuğu ve kavun çekirdeği kullanılarak üretilen aktif karbonlar kullanılarak asetik asit adsorpsiyonu başlangıç konsantrasyonu değiştirilerek gerçekleştirildi. Farklı başlangıç konsantrasyonlarında elde edilen adsorpsiyon sonuçları sırasıyla Langmuir, Freundlich ve Temkin izotermine uygulanmıştır.

Langmuir izotermine C_e/Q_e değerinin C_e değerine karşı grafiği çizilmiş ve ortaya çıkan doğrunun eğiminden Q_m değeri, kesim noktasından ise K_L değerleri hesaplanmıştır. Farklı ortam şartlarında fındıkkabuğundan elde edilmiş aktif karbonun asit ile adsorpsiyonu sonucunun Langmuir izotermine uygulanmış grafikleri Şekil 4.4, Şekil 4.5, Şekil 4.6, Şekil 4.7 görülmektedir. Grafikler doğrultusunda deneysel veriler Tablo 4.17’te görüldüğü üzere Langmuir izotermine iyi uyum göstermektedir.

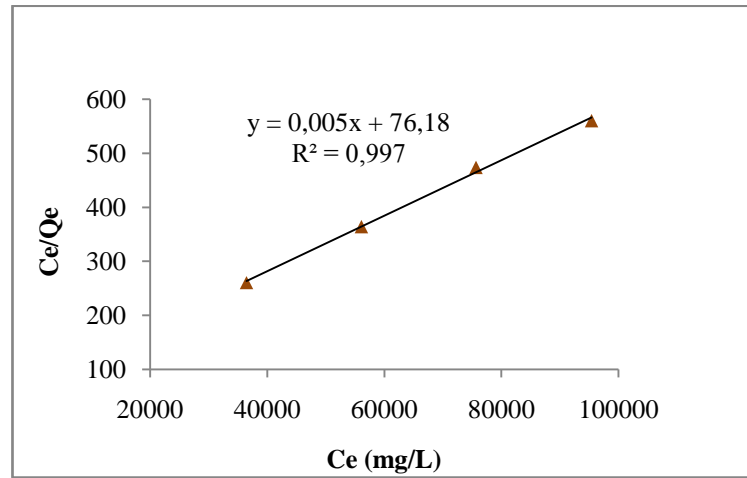
Tablo 4.17: Fındıkkabuğundan üretilen aktif karbon ile adsorpsiyon sonucu izoterm sabitleri ve korelasyon katsayıları.

	Langmuir			Freundlich			Temkin		
	Q_m	K_L	R^2	K_f	$1/n$	R^2	B	K_t	R^2
a ₁	333,33	$1,39 \times 10^{-5}$	0,970	0,210	0,594	0,985	88,44	$8,98 \times 10^{-5}$	0,959
a ₂	200,00	$6,56 \times 10^{-5}$	0,997	17,900	0,195	0,985	30,18	$2,83 \times 10^{-3}$	0,983
b ₁	333,33	$3,04 \times 10^{-5}$	0,998	3,580	0,360	0,839	64,40	$3,52 \times 10^{-4}$	0,999
b ₂	500,00	$3,43 \times 10^{-5}$	0,980	6,456	0,348	0,882	0,029	$7,94 \times 10^{-5}$	0,978

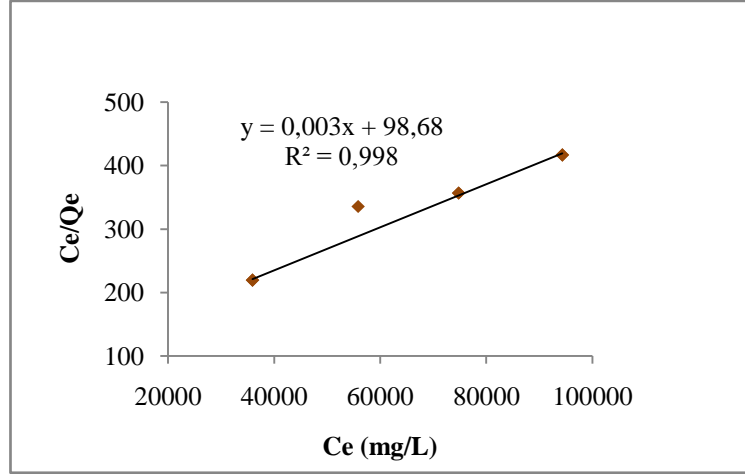
*a₁; %30'luk ZnCl₂ çözeltisiyle 300°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon, a₂; %60'luk ZnCl₂ çözeltisiyle 300°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon, b₁; %60'luk H₃PO₄ çözeltisiyle 300°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon, b₂; %60'luk H₃PO₄ çözeltisiyle 500°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon



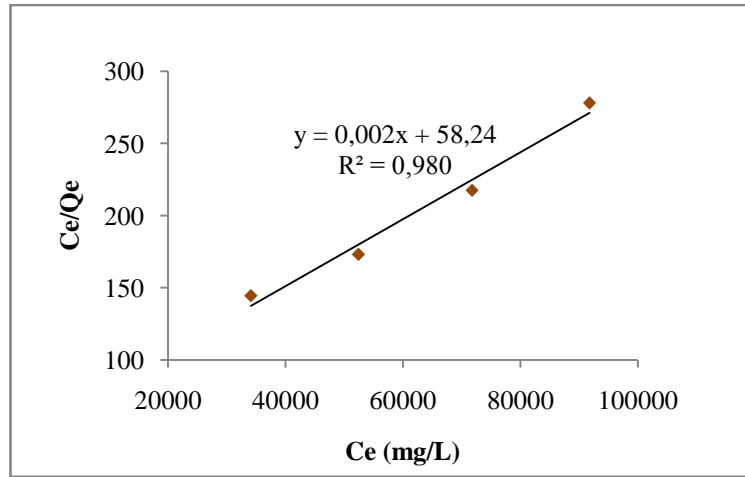
Şekil 4.4: %30'luk ZnCl₂ çözeltisiyle 300°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon - asetik asit Langmuir izoterm grafiği.



Şekil 4.5: %60'luk ZnCl₂ çözeltisiyle 300°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon - asetik asit Langmuir izoterm grafiği.

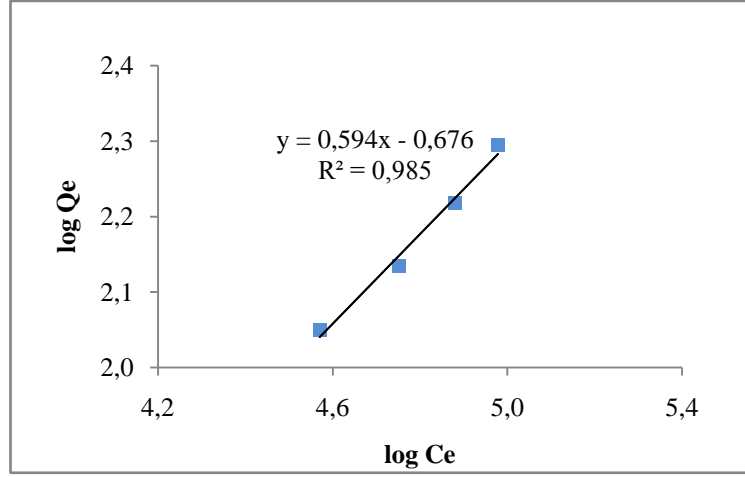


Şekil 4.6: %60'luk H_3PO_4 çözeltisiyle 300°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon – asetik asit Langmuir izoterm grafiği.

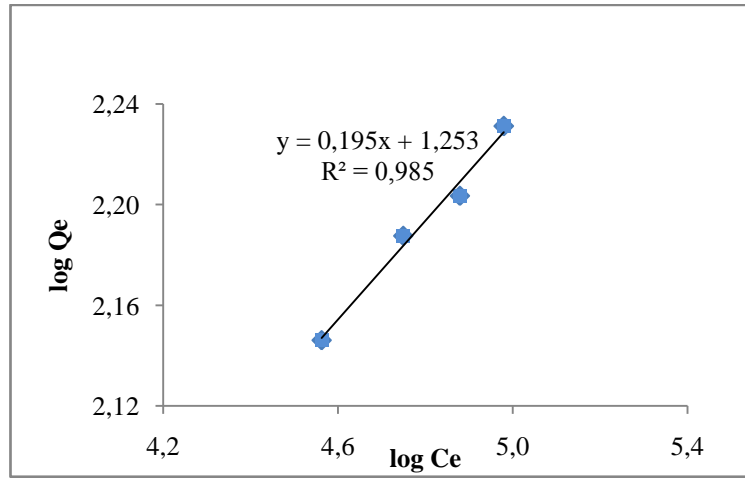


Şekil 4.7: %60'luk H_3PO_4 çözeltisiyle 500°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon – asetik asit Langmuir izoterm grafiği.

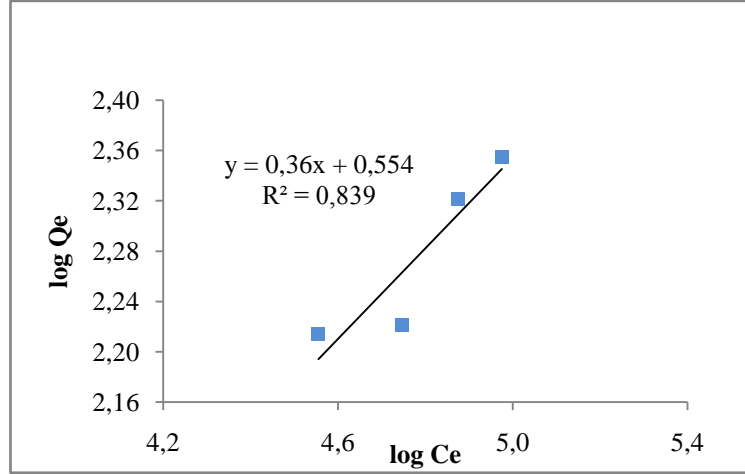
Freundlich izotermine $\log C_e$ 'ye karşı $\log Q_e$ grafiği çizilmiş (Şekil 4.8, Şekil 4.9, Şekil 4.10, Şekil 4.11) ve grafikten yararlanılarak $1/n$ ve K_f değerleri hesaplanmıştır (Tablo 4.17). Hesaplamalar sonucunda adsorpsiyon yoğunluğu ifade eden n değeri 1'den büyük olduğu bulunmuştur. Ancak a_1 ve a_2 deneylerinde korelasyon katsayısı 0,98 olduğundan Freundlich izotermine uyumlu olduğu söylenebilir. Yani asetik asit adsorpsiyonunda yüzeyde heterojen dağılmış olan aktif bölgelerin rol oynadığı söylenebilir. Diğer çalışmalar, b_1 ve b_2 için ise Freundlich uygunluğu söz konusu değildir.



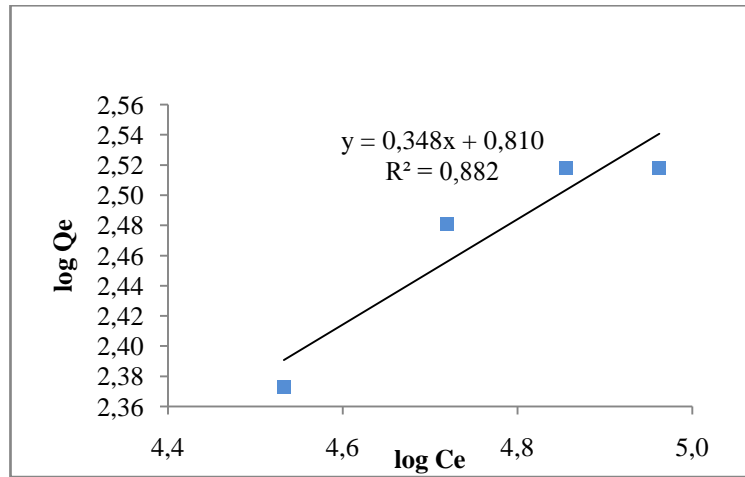
Şekil 4.8: %30'luk $ZnCl_2$ çözeltisiyle 300°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon-asetik asit Freundlich izoterm grafiği.



Şekil 4.9: %60'luk $ZnCl_2$ çözeltisiyle 300°C fındıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon - asetik asit Freundlich izoterm grafiği.

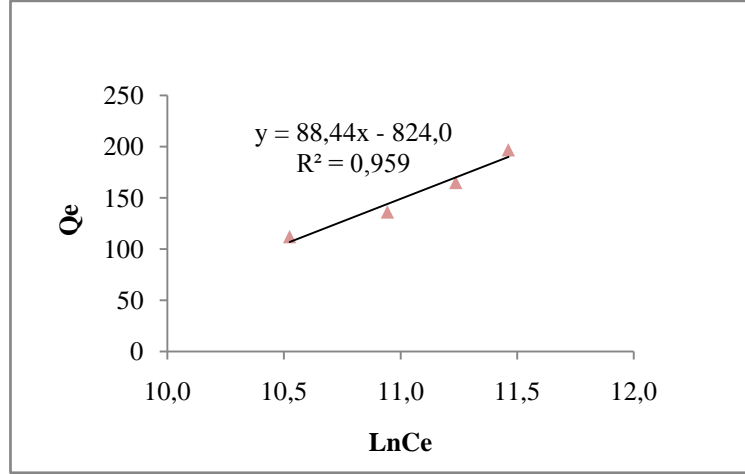


Şekil 4.10: %60'luk H_3PO_4 çözeltisiyle 300°C fındıkkağundan hazırlanmış aktif karbon – asetik asit Freundlich izoterm grafiği.

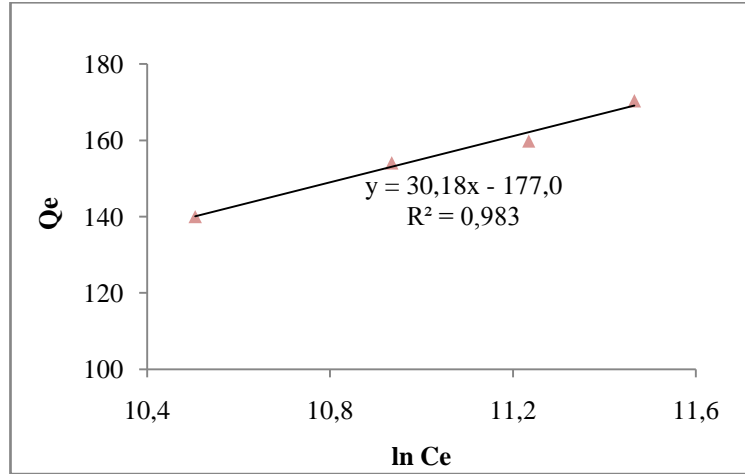


Şekil 4.11: %60'luk H_3PO_4 çözeltisiyle 500°C fındıkkağundan hazırlanmış aktif karbon – asetik asit Freundlich izoterm grafiği.

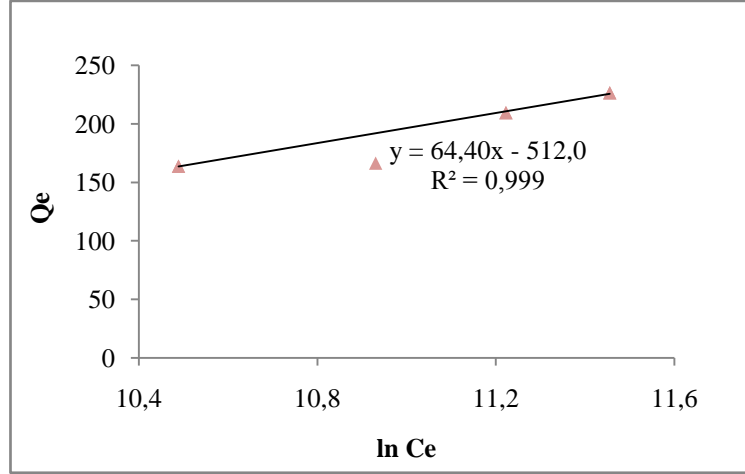
Temkin izoterminde $\ln Ce$ 'nin Q_e 'ye karşı grafiğinin (Şekil 4.12, Şekil 4.13, Şekil 4.14, Şekil 4.15) çizilmesiyle B ve Kt sabit değerleri Tablo 4.17'te görüldüğü üzere, hesaplanmıştır. Korelasyon katsayıları karşılaştırıldığında a_2 , b_1 ve b_2 değerleri 1' yakın olması(sırasıyla 0,983 - 0,999 - 0,978) sebebiyle Temkin izotermine daha iyi uyum sağladığı söylenebilir.



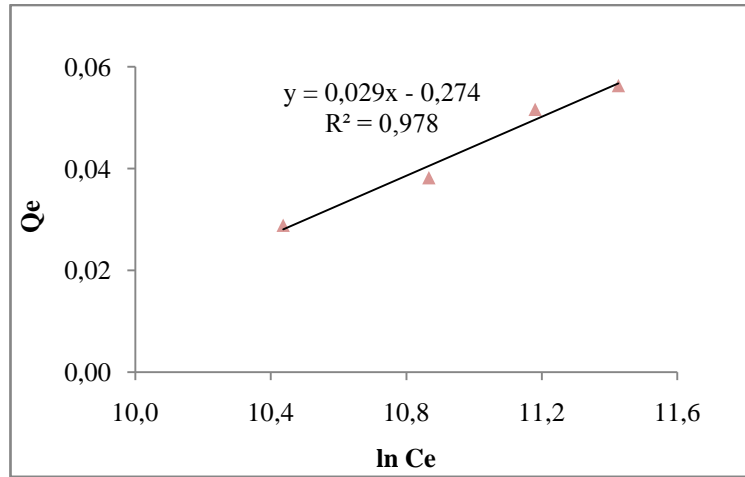
Şekil 4.12: %30'luk $ZnCl_2$ çözeltisiyle 300°C fındikkabuğundan hazırlanmış aktif karbon-asetik asit Temkin izoterm grafiği.



Şekil 4.13: %60'luk $ZnCl_2$ çözeltisiyle 300°C fındikkabuğundan hazırlanmış aktif karbon -asetik asit Temkin izoterm grafiği.



Şekil 4.14: %60'lık H_3PO_4 çözeltisiyle 300°C fındıkkağuşundan hazırlanmış aktif karbon – asetik asit Temkin izoterm grafiđi.



Şekil 4.15: %60'lık H_3PO_4 çözeltisiyle 500°C fındıkkağuşundan hazırlanmış aktif karbon – asetik asit temkin izoterm grafiđi.

İzoterm grafikleri portakal kabuşu kullanılarak üretilen aktif karbonlar ile asetik asit adsorpsiyonuna da uygulanmıştır. Dört farklı ortam şartlarında üretilmiş aktif karbonun kullanıldığı deneylerde çizilen izoterm grafikleri sonucunda Tablo 4.18'da verilmiş olan sabit değerler ve korelasyon katsayıları hesaplanmıştır. Tablo 4.18'de korelasyon sayılarına bakıldığında en uygun izotermin Temkin izotermi olduğu görölmektedir. Denemelerden d_2 'nin Langmuir izotermine daha iyi uyum gösterdiği ve adsorpsiyonun tek tabakada gerçekleştiđi söylenebilir. Ayrıca c_1 denemesi için Freundlich izotermine bakıldığında korelasyon katsayısının 1'e yakın ve ayrıca n , adsorpsiyon yoğunluğunun 1'den büyük olması nedeniyle iyi uyum sağladığı söylenebilir.

Tablo 4.18: Portakal kabuğundan üretilen aktif karbon ile adsorpsiyon sonucu izoterm sabitleri ve korelasyon katsayıları.

	Langmuir			Freundlich			Temkin		
	Q_m	K_L	R^2	K_f	$1/n$	R^2	B	K_t	R^2
c_1	500,00	$3,03 \times 10^{-6}$	0,542	0,014	0,774	0,956	0,031	$6,31 \times 10^{-5}$	0,977
c_2	200,00	$1,68 \times 10^{-5}$	0,918	0,270	0,534	0,891	0,030	$5,22 \times 10^{-5}$	0,977
d_1	333,30	$1,07 \times 10^{-5}$	0,907	0,130	0,622	0,939	0,030	$5,22 \times 10^{-5}$	0,977
d_2	500,00	$2,18 \times 10^{-5}$	0,942	2,360	0,432	0,918	0,029	$6,9 \times 10^{-5}$	0,972

* c_1 ; %30'luk $ZnCl_2$ çözeltisiyle 300°C portakal kabuğundan hazırlanmış aktif karbon, c_2 ; %60'luk $ZnCl_2$ çözeltisiyle 300°C portakal kabuğundan hazırlanmış aktif karbon, d_1 ; %60'luk H_3PO_4 çözeltisiyle 300°C portakal kabuğundan hazırlanmış aktif karbon, d_2 ; %60'luk H_3PO_4 çözeltisiyle 500°C portakal kabuğundan hazırlanmış aktif karbon

Aynı şekilde izoterm grafikleri kavun çekirdeğinden dört farklı ortam şartlarında üretilen aktif karbonun asetik asit ile adsorpsiyonuna uygulanmıştır. Tablo 4.19'de çizilen grafiklerden elde edilen sonuçlar görülmektedir. Bu sonuçlar doğrultusunda e_1 , e_2 , f_1 , f_2 denemelerinin Langmuir, Freundlich ve Temkin izotermine iyi uyum gösterdiği söylenebilir.

Tablo 4.19: Kavun çekirdeğinden üretilen aktif karbon ile adsorpsiyon sonucu izoterm sabitleri ve korelasyon katsayıları.

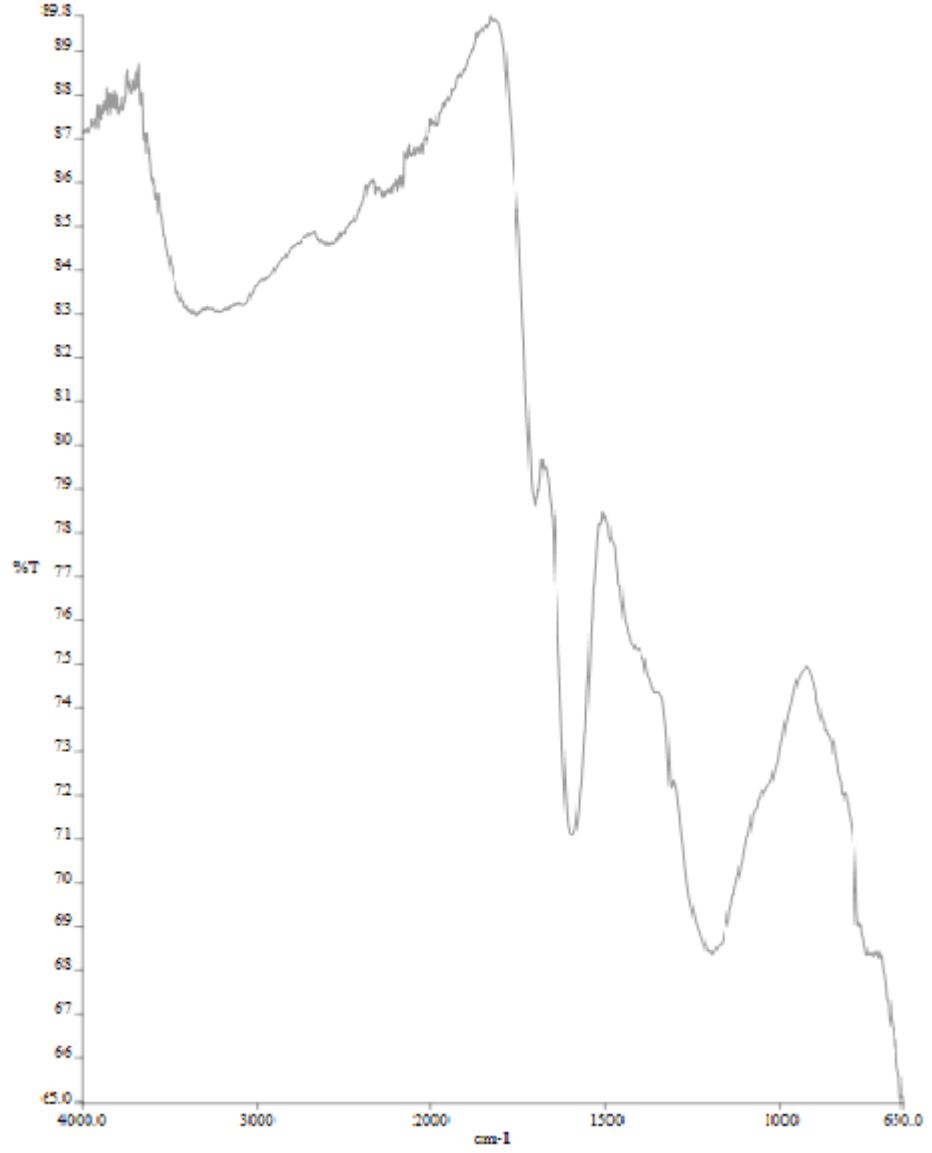
	Langmuir			Freundlich			Temkin		
	Q_m	K_L	R^2	K_f	$1/n$	R^2	B	K_t	R^2
e_1	250	$5,87 \times 10^{-6}$	0,974	0,018	0,738	0,991	0,031	$6,31 \times 10^{-5}$	0,977
e_2	125	$3,08 \times 10^{-5}$	0,991	2,170	0,327	0,988	0,030	$5,38 \times 10^{-5}$	0,976
f_1	200	$6,66 \times 10^{-6}$	0,983	0,500	0,031	0,977	0,696	0,1	0,995
f_2	500	$7,86 \times 10^{-6}$	0,936	0,110	0,650	0,973	0,030	$5,38 \times 10^{-5}$	0,976

* e_1 ; %30'luk $ZnCl_2$ çözeltisiyle 300°C kavun çekirdeğinden hazırlanmış aktif karbon, e_2 ; %60'luk $ZnCl_2$ çözeltisiyle 300°C kavun çekirdeğinden hazırlanmış aktif karbon, f_1 ; %60'luk H_3PO_4 çözeltisiyle 300°C kavun çekirdeğinden hazırlanmış aktif karbon, f_2 ; %60'luk H_3PO_4 çözeltisiyle 500°C kavun çekirdeğinden hazırlanmış aktif karbon

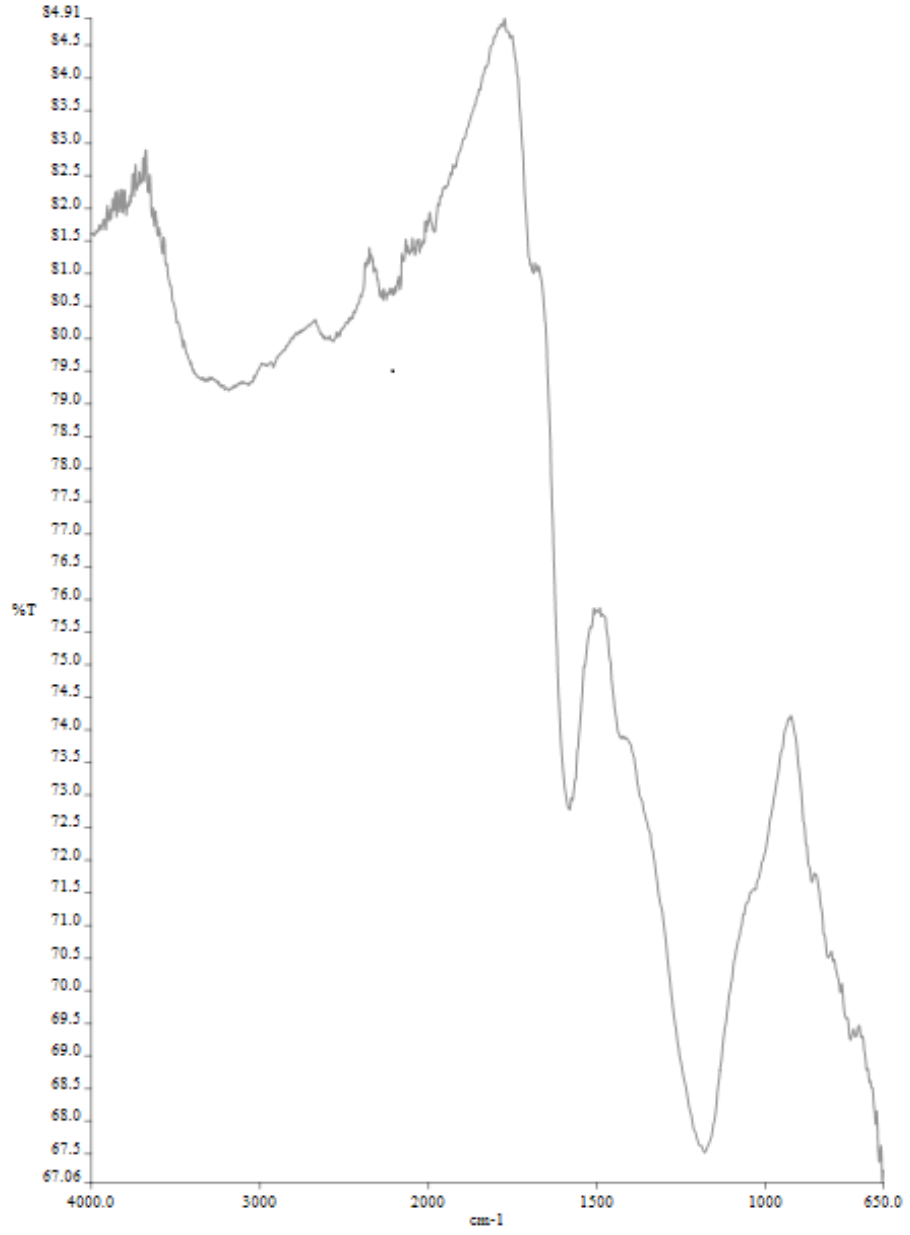
4.4. FTIR SONUÇLARININ DEĞERLENDİRİLMESİ

Aktivasyon öncesi ve sonrası numunelerin FTIR analizi sonuçları Şekil 5.16'da verilmektedir.

a)



b)



Şekil 4.16: Fındıkkabığı numunesinin FTIR analizi grafiği a)Aktivasyon öncesi
b)ZnCl₂Aktivasyonu sonrası.

2800-3600 cm^{-1} Aralığında farklı şiddet ve genişliklerdeki çıkan bant yapıdaki alifatik C-H gruplarının yanında hidroksil (-OH) yapıları da aittir. Şekil 4.16 (b)'de ZnCl_2 'ün aktivatör etkisi göz önüne alındığında aktivasyon sonrası grafitleşmenin daha fazla olduğu gözlenmektedir. Ham fındikkabuğu numunesinde 3331 cm^{-1} civarında -OH gerilemesine ait pik görülmektedir. Bu bant aralığı aktivasyon sonrasında belirginliğini kaybetmektedir.

2700-2900 cm^{-1} arasındaki pikler aldehit grubundan gelme C-H gerilmesinden kaynaklanır. Bu piklerin aktivasyon sonrası daha azaldığı söylenebilir.

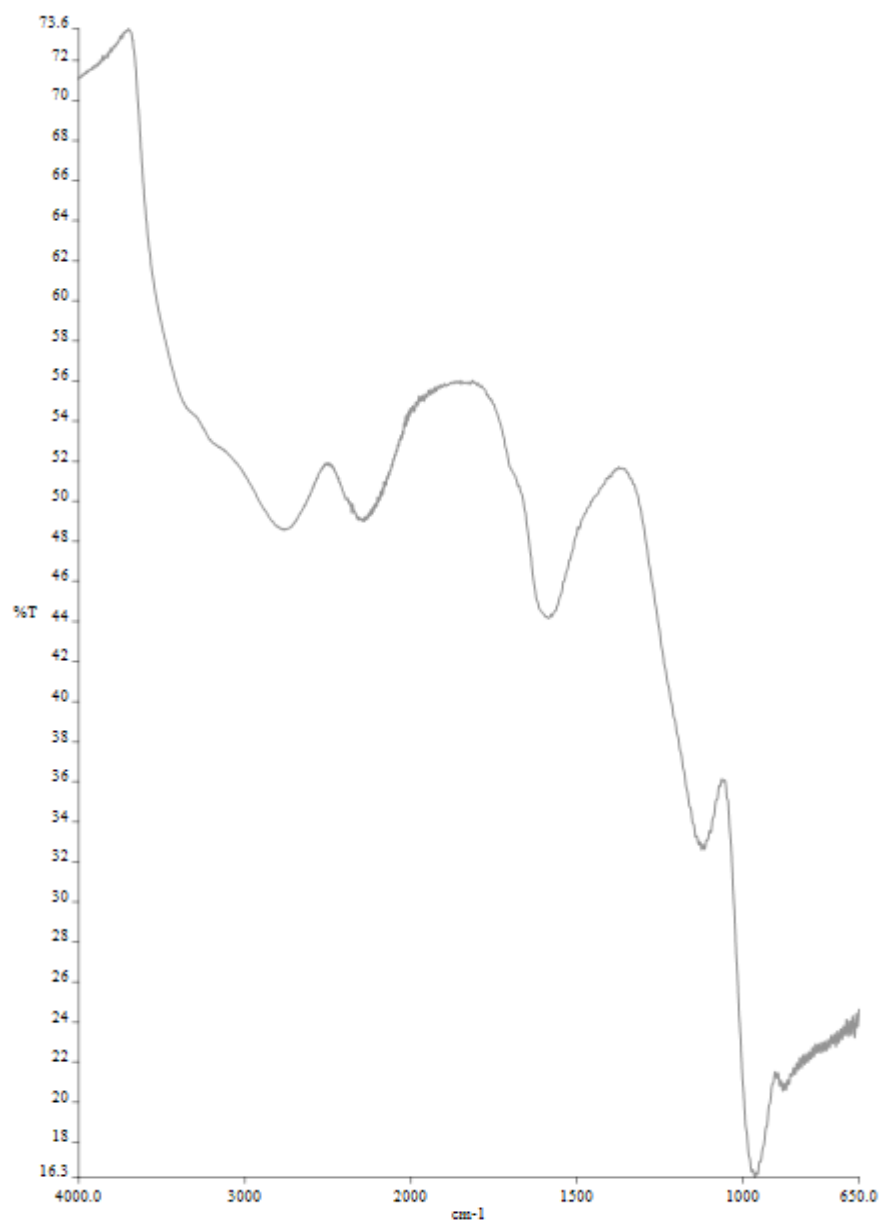
1700 cm^{-1} civarında görülen pik karboksilik asitlerin varlığından kaynaklanabilir. 1600 cm^{-1} civarında görülen pikler henüz net olarak açıklanamamış olsada, aromatik C=C gerilmesinden kaynaklandığı söylenebilir. 1400 cm^{-1} civarındaki pik ise C-CH₃ deformasyonundan ileri gelir. 1700 cm^{-1} , 1600 cm^{-1} , 1500 cm^{-1} 'de görülen piklerin aktivasyon sonrası azaldığı; 1400 cm^{-1} civarındaki pikin ise neredeyse yok olduğu görülmektedir.

1000- 1200 cm^{-1} değerleri arasındaki pikler alkolleri, alifatik eterlerdeki C-O grupları ve fenolik gruplardaki C-OH ve O-H gerilimlerini gösterir. Bu banttaki piklerin büyüklüğünde aktivasyonla azalmıştır (Gomez-Serrano, 1999; Chunlan ve Diğ.,2005; Tan ve Diğ, 2008)

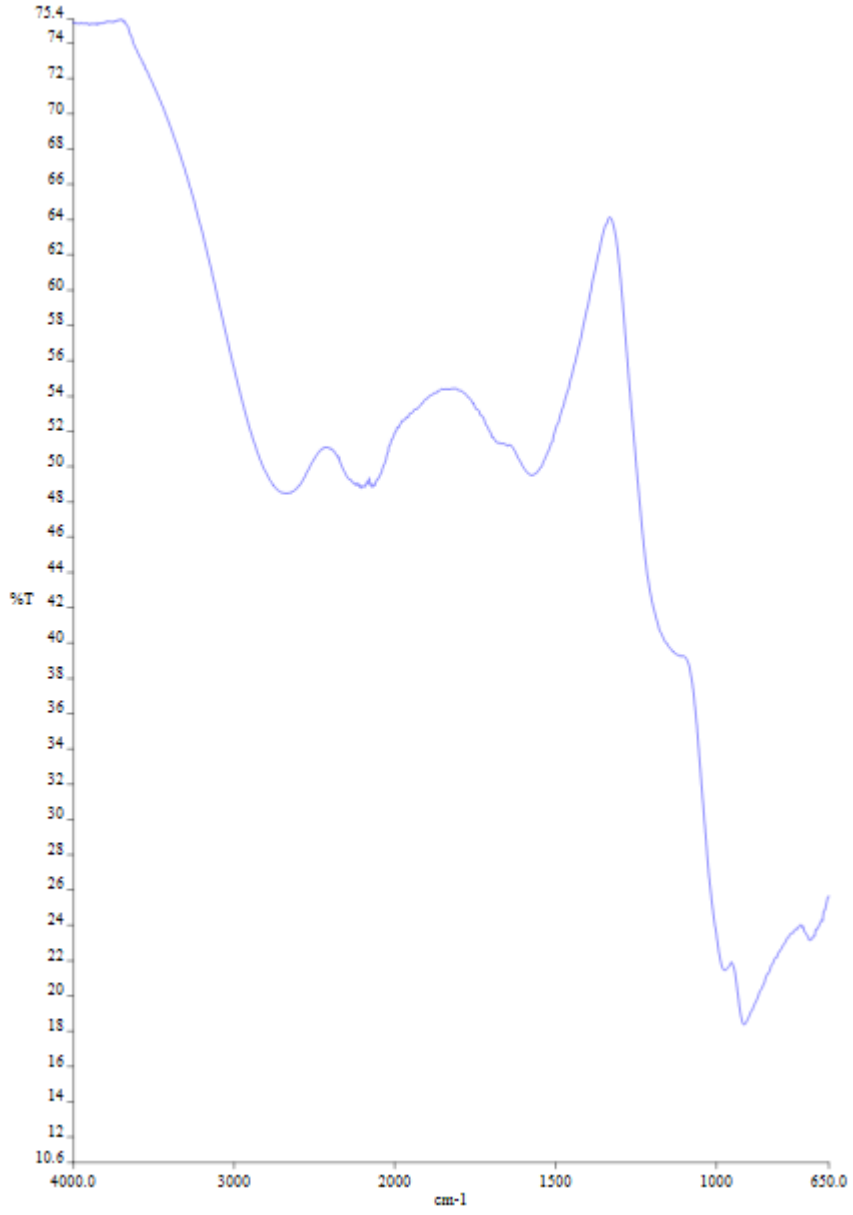
Aktivasyon sonrası örnekte 779 cm^{-1} - 870 cm^{-1} civarındaki piklerin daha belirgin olduğu söylenebilir. 779 cm^{-1} 'daki pik alifatik CH₂ deformasyonunu göstermektedir. 870 cm^{-1} 'deki ise 1 komşu H deformasyonunu göstermektedir.

1070 cm^{-1} , 2900 cm^{-1} , 3600 cm^{-1} ' de tespit edilen pikler, adsorpsiyon için önemli olan alkol, fenol ve karboksilik grupların C-O, C-OH ve O-H yapılarına karşılık gelmektedir (Guo ve Bustin 1998 ; Figueiredo ve diğ., 1999).

a)



b)

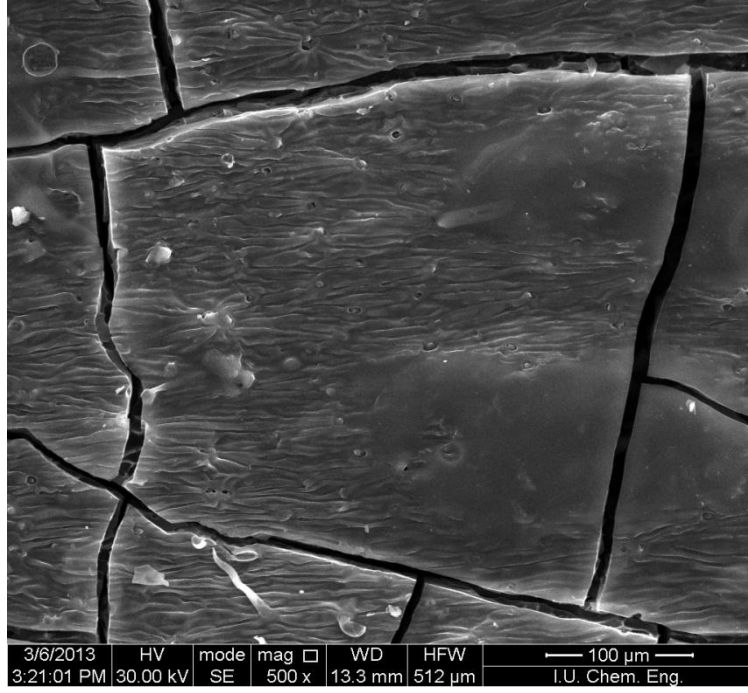


Şekil 4.17Fındıkkađu numunesinin a) %30' luk H_3PO_4 Aktivasyonu sonrası b) %60' lık H_3PO_4 Aktivasyonu sonrası FTIR analizi grafiđi.

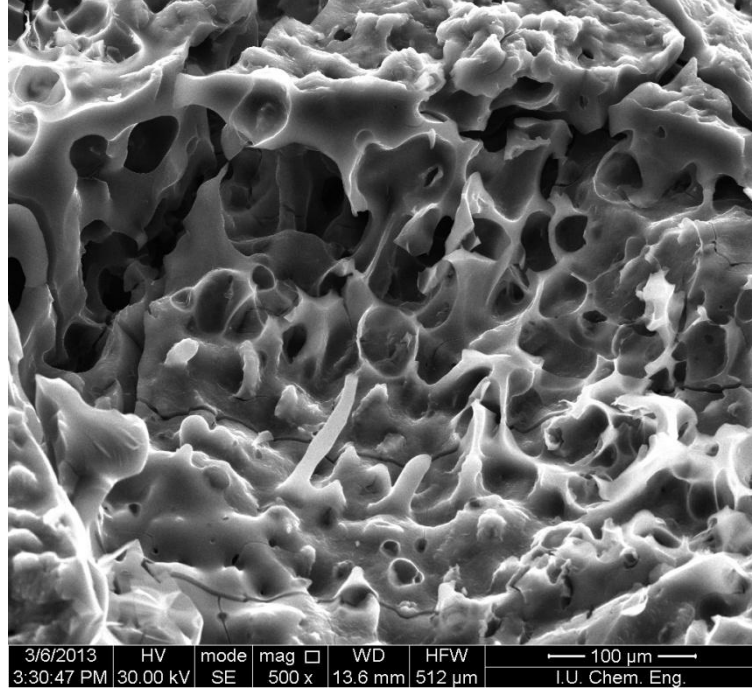
Şekil 4.17’de farklı aktivator konsantrasyonunda H_3PO_4 aktivasyonu sonucu elde edilen aktif karbonun FTIR grafiğine bakıldığında; $700\text{ cm}^{-1} - 900\text{ cm}^{-1}$ bant aralığında gözlenen pikler her iki konsantrasyon içinde bulunmakta ve genellikle inorganik yapıların varlığını göstermektedir (Akyıldız, 2007). $900\text{ cm}^{-1} - 1300\text{ cm}^{-1}$ Aralığında P=O, C-O-P, P=O-OH gruplarının varlığını ifade etmektedir (Guo ve Rockstraw, 2007). Her iki farklı konsantrasyonda da farklı şiddetlerde olmak üzere görülmektedir. Konsantrasyon arttıkça piklerin bulunduğu iki bandın birbirine yaklaştığı görülmektedir. 1600 cm^{-1} aralığında C=C aromatik yapılarının varlığını göstermektedir. Bu pik her iki farklı konsantrasyonda da bulunmaktadır. $2225\text{ cm}^{-1} - 2500\text{ cm}^{-1}$ Aralığında P-H gruplarının varlığını gösteren pikler her iki farklı konsantrasyon içinde görülmektedir (Puziy ve diğ., 2005).

4.5. SEM GÖRÜNTÜLERİNİN YORUMLANMASI

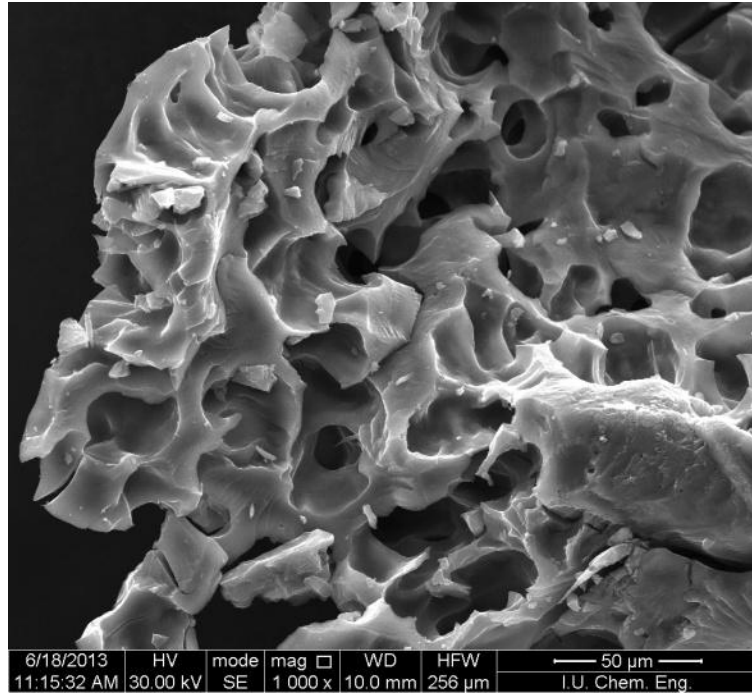
Deneysel çalışmalarda kullanılan tarımsal kaynaklı atıklardan fındikkabuğu, portakal kabuğu ve kavun çekirdeğinin aktivasyon öncesi ve aktive edildikten sonraki hallerinin taramalı elektron mikroskobu ile görüntüleri aşağıda verilmiştir.



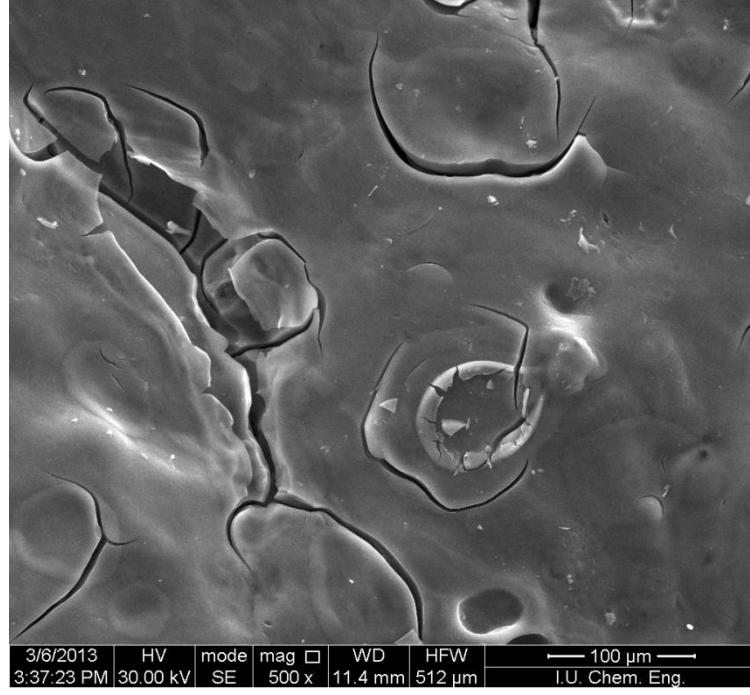
Şekil 4.18: Aktivasyon işlemi görmemiş fındikkabuğu numunesinin SEM görüntüsü.



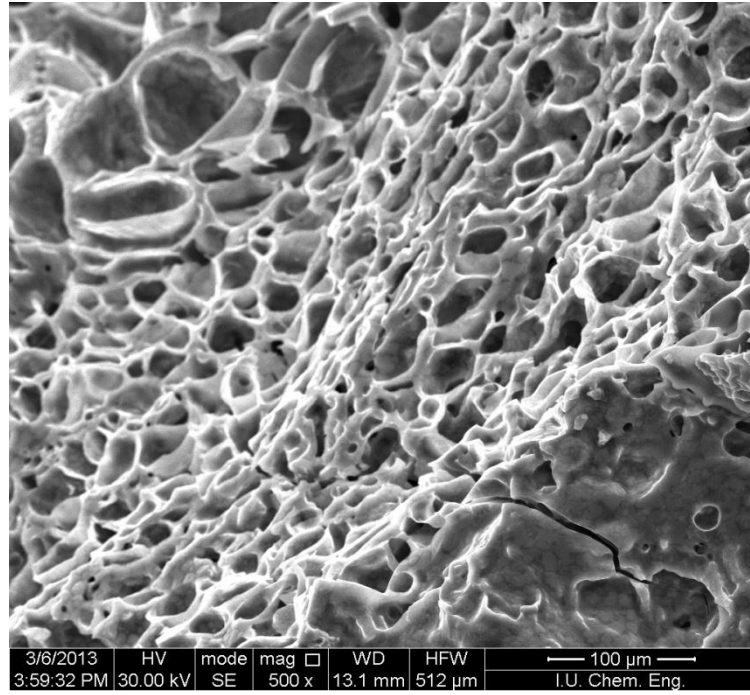
Şekil 4.19: %60 $ZnCl_2$ çözeltisi kullanılarak $300^\circ C$ 'de findıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon numunesinin SEM görüntüsü.



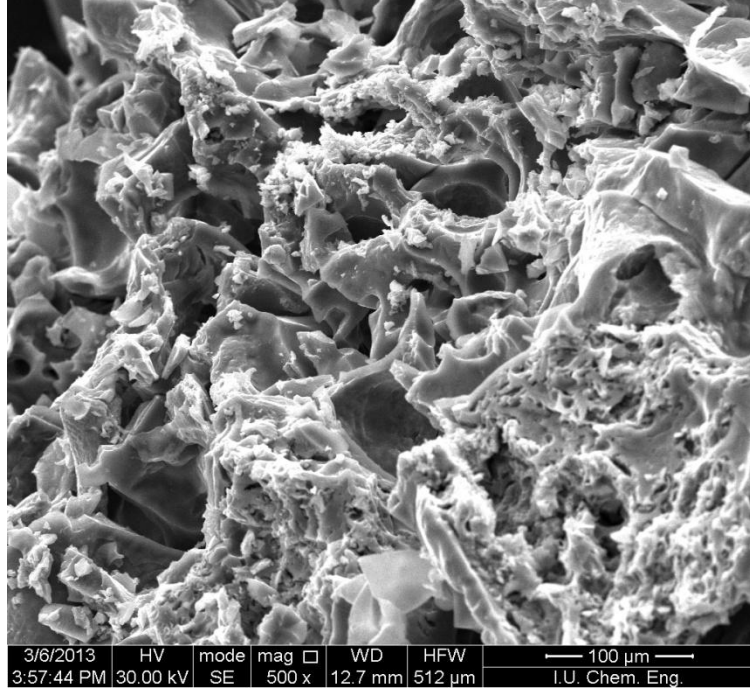
Şekil 4.20: %60 H_3PO_4 çözeltisi kullanılarak $300^\circ C$ 'de findıkkabuğundan hazırlanmış aktif karbon numunesinin SEM görüntüsü.



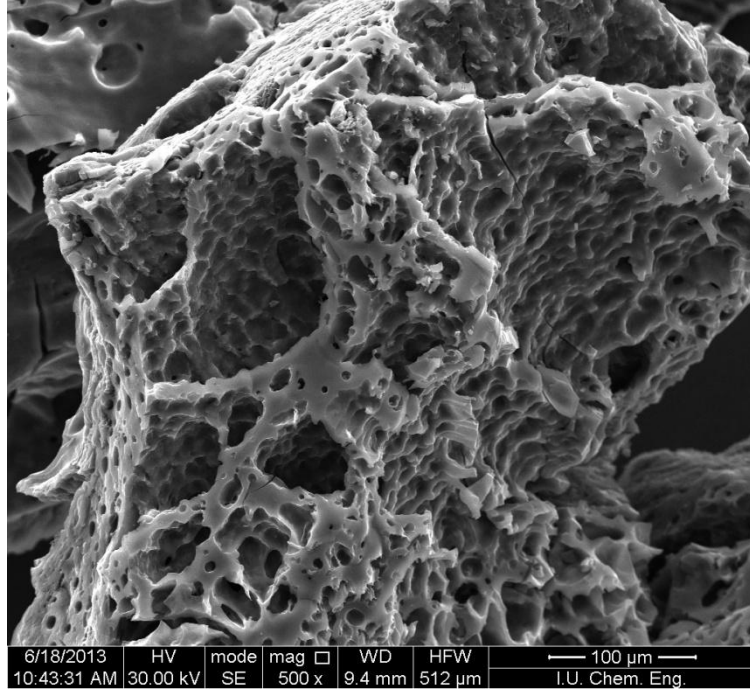
Şekil 4.21: Aktivasyon işlemi görmemiş portakal kabuğu numunesinin SEM görüntüsü.



Şekil 4.22: %60 $ZnCl_2$ çözeltisi kullanılarak $300^\circ C$ 'de portakal kabuğundan hazırlanmış aktif karbon numunesinin SEM görüntüsü.



Şekil 4.23: %60 H_3PO_4 çözeltisi kullanılarak $300^\circ C$ 'de portakal kabuğundan hazırlanmış aktif karbon numunesinin SEM görüntüsü.



Şekil 4.24: %60 $ZnCl_2$ çözeltisi kullanılarak $300^\circ C$ 'de kavun çekirdeğinden hazırlanmış aktif karbon numunesinin SEM görüntüsü.

Şekil 4.18’da ham fındıkkabuğunun SEM görüntüsü incelendiğinde yüzeyin genel olarak gözenekli olmayan bir yapıda olduğu görülmektedir. $ZnCl_2$ aktivasyonu sonrası çekilen Şekil 4.19’ye bakıldığında ise yapıda oluşan farklılaşma vardır. Yüzeyde oluşan girintili çıkıntılı yapı ve oyuklar görülmektedir. Şekil 4.20’de ise aynı koşullarda H_3PO_4 aktivasyonu sonucu oluşan aktif karbonun gözenekli yapısı görülmektedir.

Aynı şekilde işlem görmemiş portakal kabuğunun (Şekil 4.21) SEM fotoğrafı incelendiğinde genel olarak gözenekli bir yapıdan söz edilemez. Ancak Şekil 4.22 ‘da $ZnCl_2$ aktivasyonu sonucu derin gözeneklere sahip bir yapıdan söz edebiliriz. Şekil 4.23’de yine aynı ortam şartlarında H_3PO_4 aktivasyonu sonucu oluşan aktif karbonun Şekil 4.22’ye göre daha düzensiz bir gözenekli yapısı olduğunu söyleyebiliriz.

Bunun yanı sıra kavun çekirdeğine örneğine bakıldığında $ZnCl_2$ aktivasyonu sonucu gözenekli bir yapının oluştuğu ancak gözeneklerin portakal ve fındıkkabuğunda olduğu gibi derin gözenekler halinde olmadığı görülmektedir(Güngör, 2010; Seydioğlu, 2009).

5. TARTIŞMA VE SONUÇ

Tarımsal kaynaklı atık olan fındikkabuğu, portakal kabuğu ve kavun çekirdeği kullanılarak elde edilen aktif karbonun asetik asit çözeltisi adsorpsiyonun da kullanılması sonucu elde edilen sonuçlar özetlenecek olursa;

- 1) Üç farklı atık maddeden elde edilen aktif karbon verimlerine bakıldığında, fındikkabuğuyla yapılan çalışmanın veriminin daha yüksek olduğunu görebiliriz. Ancak her üç madde için yapılan çalışmada, karbonizasyon sıcaklığı arttıkça verimin azaldığı görülmektedir. Fındikkabuğunun %60 ZnCl₂ aktivasyonu 300 °C de % 64,21 iken 500 °C' ye gelindiğinde verim % 27,51 olduğu bulunmuştur.
- 2) Portakal kabuğu ve kavun çekirdeğinin verimlerine bakıldığında birbirine çok yakın olduğu bulunmuştur.
- 3) Farklı çözelti konsantrasyonları için verimler karşılaştırıldığında, konsantrasyon değişimiyle verimin değiştiği ancak sıcaklık kadar büyük farklılıklar olmadığı bulunmuştur.
- 4) Başlangıç konsantrasyonu değiştirilmek üzere farklı hammaddeler kullanılarak üretilen aktif karbonların kullanıldığı adsorpsiyon deneyleri yapılmıştır. Bu denemelerde başlangıç adsorbatkonsantrasyonu arttıkça yüzde adsorpsiyon değerinin azaldığı ve birim adsorban başına adsorplanan adsorbat miktarının arttığı görülmüştür. Artan konsantrasyonlarda düşük adsorpsiyon yüzdesi bulunması, adsorban üzerindeki alanların doygunluğa ulaştığı ile açıklanabilir. Adsorbat konsantrasyonunu artması birim adsorban başına daha çok asetik asidin tutulduğunu gösterir.
- 5) Asetik asit adsorpsiyonu sonucu elde edilen sonuçlar adsorpsiyon izotermlerinden Langmuir, Freundlich ve Temkin'e uygulandı. Fındikkabuğundan üretilen aktif karbonun izoterm grafiklerine bakıldığında bütün çalışmaların Langmuir ve Temkin izotermine iyi uyum gösterdiği görülmektedir. Adsorpsiyon kapasiteleri dikkate alındığında % 60'luk H₃PO₄ çözeltisiyle 500 °C üretilmiş adsorbanın kullanıldığı ortam olduğunu bulunmuştur. H₃PO₄ ile üretilen aktif karbonların Freundlich

izotermine uyum sağlamadığı, $ZnCl_2$ ile üretilenlerin ise iyi uyum sağladığı görülmüştür.

- 6) Portakal kabuğundan üretilen aktif karbonların adsorban olarak kullanıldığı izoterm grafiklerine bakıldığında aktivatör olarak $ZnCl_2$ ve H_3PO_4 kullanılarak üretilen bütün çalışmaların Temkin izoterm modeline iyi uyum sağladığı görülmektedir. Langmuir izotermine korelasyon katsayısı 1'e en yakın olan ortam şartları % 60'luk H_3PO_4 çözeltisiyle 500°C'de ($R^2= 0,942$) üretilen adsorban kullanımımıdır. Aynı şekilde Freundlich için ise % 30'luk $ZnCl_2$ çözeltisiyle 300 °C ($R^2= 0,956$) üretilen adsorban kullanımımıdır.
- 7) Kavun çekirdeğinden üretilen aktif karbonların adsorban olarak kullanıldığı asetik asit adsorpsiyonu sonucu izoterm grafiklerine bakıldığında her üç izoterm çeşidine de iyi uyum gösterdiği görülmektedir. Langmuir izotermine iyi uyum sağlayan; % 60'luk $ZnCl_2$ çözeltisiyle 300 °C ($R^2=0,991$) hazırlanmış adsorbanın kullanıldığı sistem, Freundlich izotermine göre iyi uyum sağlayan % 30'luk $ZnCl_2$ çözeltisiyle 300 °C ($R^2=0,991$) hazırlanmış adsorbanın kullanıldığı sistem, Temkine göre uyum sağlayan % 60'luk H_3PO_4 çözeltisiyle 300 °C ($R^2=0,995$) hazırlanmış adsorbanın kullanıldığı sistemdir.
- 8) FTIR analizi sonucunda aktifleştirilmiş maddenin; 1070 cm^{-1} , 2900 cm^{-1} , 3600 cm^{-1} de tespit edilen pikler, adsorpsiyon için önemli olan alkol, fenol ve karboksilik grupların C-O, C-OH ve O-H yapılarına sahip olduğu görülmektedir. Aktifleşmede kullanılan aktivatörün konsantasyonu değiştikçe elde edilen pik genişliklerinin değiştiği görülmektedir.
- 9) SEM fotoğraflarına bakıldığında aktivasyon öncesi hammaddenin yüzeyinin gözeneksiz bir yapıda olduğu ancak aktivasyon sonrası yüzeyde girintili çıkıntılı yapı ve gözenekli bir yapının oluştuğu gözlemlenmiştir.

KAYNAKLAR

- Adinata, D., Daud, W. M. A. W. and Aroua, M. K., 2007, Preparation and characterization of activated carbon from palm shell by chemical activation with K_2CO_3 , *Bioresource Technology*, 98, 145-149.
- Ahmadpour, A. and Do, D.D., 1995, The Preparation of Active Carbons from Coal by Chemical and Physical Activation, *Carbon*, 34, 471–479.
- Akyıldız, H., 2007, *H₃PO₄ aktivasyonu ile zeytin çekirdeğinden aktif karbon üretimi*, Yüksek Lisans Tezi, İstanbul Teknik Üniversitesi Fen bilimleri enstitüsü, İstanbul.
- Alberty, R. A. and Silbey, R. J., 1992, *Physical chemistry*, John Wiley & Sons Inc., 898 p.
- Avcı, A.Ö., 2008, *Kayırsı çekirdeğinden üretilen aktif karbon ile sulu çözeltilerden krom (VI) giderimi*, Yüksek Lisans Tezi, Yıldız Teknik Üniversitesi Fen bilimleri enstitüsü, İstanbul.
- Aygün, A., 2002, *Yerli Doğal Hammaddelerden Aktif Karbon Üretimi ve Adsorpsiyon Özelliklerinin İncelenmesi*, Yüksek Lisans Tezi, G.T.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul.
- Bailey, S.E., Olin, T.J., Bricka, R.M., Adrian, D.D., 1999, A review of potentially low – cost sorbents for heavy metals, *Water Research*, 33, 2469 – 2479.
- Berkem, A.R., Baykut, S., 1984, *Fizikokimya*, İstanbul.
- Cheremisinoff P.N., Ellerbusch F., 1978, *Caron adsorption handbook*, Ann Arbor Science Publishers, Inc., New York.
- Chunlan, L., Shaoping, X., Yixiong, G., Shuqin, L. and Changhou, L., 2005, “Effect of Precarbonization of Petroleum Cokes on Chemical Activation Process with KOH”, *Carbon*, 43:2295–2301.
- Çankaya, M., 2007, *Elektrokimyasal yöntemle aktif karbon üretimi ve karakterizasyonu*, Lisans Tezi, Yıldız Teknik Üniversitesi, Kimya Metalurji Fakültesi.
- David, N. and Hon, S., 1995, Chemical Modification of Lignocellulosic Materials, *Marcel Dekker Inc.*, New York, s.97–128.
- Diaz-Diez, M. A., Gomez-Serrano, V., Gonzalez, C. F., Cuerda-Correa, E. M. Andmacias-Garcia, A., 2004, Porous texture of activated carbons prepared by phosphoric acid activation of woods, *Applied Surface Science*, 238, 309-313.

- Döşemen, Y., 2009, *Kestane kabuğundan aktif karbon üretimi*, İstanbul Teknik Üniversitesi Fen bilimleri Enstitüsü, İstanbul.
- Ekici, H.Suda, 2007, *Kayıt çekirdeğinden elde edilen aktif karbonla sulardan fosfat ve bakır(II) giderimi*, Fırat Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Elazığ
- El-Hendawy, A.A., 2005, Surface and adsorptive properties of carbons prepared from biomass, *Applied Surface Science*, 252, 287-295.
- Encinar, J. M., Beltran, F. J., Ramiro, A. and Gonzalez, J. F., 1998, Pyrolysis/gasification of agricultural residues by carbon dioxide in the presence of different additives: influence of variables, *Fuel Processing Technology*, 55, 219-233.
- Fennimore, J., Ruder, G. Simmonite, D., 1978, U.S. Patent, No: 4076892.
- Figueiredo, J. L., Pereira, M. F. R., Freitas, M. M. A., Crfao, J. J. M., 1999, Modification of surface chemistry of activated carbons, *Carbon*, 37, 1379 – 1389.
- Freundlich, H.M.F., 1906, Über die Adsorption in Lösungen, *Zeitschrift für Physikalische Chemie*, 57, 385–470.
- Galiatsatou, P., Metaxas, M. and Kasselouri-Rigopoulou, V., (2001), “Mesoporous Activated Carbon from Agricultural Byproducts”, *Mikrochimica Acta*, 136: 147-152.
- Ganan, J., Gonzalez, J. F., Gonzalez-Garcia, C. M., Ramiro, A., Sabio, E. and Roman, S., 2006, Air-activated carbons from almond tree pruning: Preparation and characterization, *Applied Surface Science*, 252, 5988-5992.
- Gergova, K. and Eser, S., 1996, Effects of Activation Method the Pore Structure of Activated Carbons From Apricot Stone, *Carbon*, 34, 879–888.
- Gomez-Serrano, V., Piriz-Almeida, F., Duran-Valle, C. J. and Pastor-Villegas, J., 1999, Formation of Oxygen Structures by Air Activation. A Study by FT-IR Spectroscopy, *Carbon*, 37:1517–1528.
- Guo Y., Rockstraw D.A., 2007, Activated carbons prepared from rice hull by one-step phosphoric acid activation, *Microporous and Mesoporous Materials*, 100, 12-19
- Guo, Y., Bustin, R. M., 1998. FTIR Spectroscopy and reflectance of modern charcoals and fungal decayed woods: implications for studies of intertinite in coals, *International Journal of Coal Geology*, 37, 29 - 53.
- Gülensoy, H., Şengil, A., 1981, Aktif karbon ve üretimi, *Sakarya Devlet Mühendis ve Mimarlık Akademisi Dergisi*, Sayı: MMA-11, Sakarya, 77-90.

- Gündođdu, Ali, 2010, *Fabrika ay atıklarından aktif karbon üretimi, karakterizasyonu ve adsorpsiyon özelliklerinin incelenmesi*, Doktora tezi, K.T.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul.
- Güngör, C., 2010, *Üzüm küspesinden aktif karbon üretimi ve bakır gideriminde kullanımı*, Yüksek Lisans Tezi, Osmangazi Üniversitesi, Eskişehir.
- Gregg, S.J., Sing, K.S.W., 1982. Adsorption Surface Area and Porosity, *Academic Press Inc.* (Edinildiđi Kaynak: DÖŞEMEN, Y., 2009, *Kestane kabuğundan aktif karbon üretimi*, İstanbul Teknik Üniversitesi Fen bilimleri Enstitüsü, İstanbul.)
- Hall, K.R., Eagleton, L.C., Acrivos, A. and Vermeulen, T., 1966, Pore- and Solid-Diffusion Kinetics in Fixed-Bed Adsorption Under Constant-Pattern Conditions, *Industrial and Engineering Chemistry Fundamentals*, 5, 212–223 (Edinildiđi Kaynak: DÖŞEMEN, Y., 2009, *Kestane kabuğundan aktif karbon üretimi*, İstanbul Teknik Üniversitesi Fen bilimleri Enstitüsü, İstanbul.)
- Hassler, J. W., 1974, Purification with activated carbon, Second Ed., *Chemical Publishing Co. Inc.*, 169-199, New York.
- Hayashi, J., Yamamoyo, N., Horikawa, T., Muroyama, K. and Gomes, V. G., 2005, Preparation and characterization of high-specific-surface-area activated carbons from K₂CO₃-treated waste polyurethane, *Journal Of Colloid And Interface Science*, 281, 437-443.
- Henning, K.D., Degel, J., 1990, Activated carbon for solvent recovery.
- Ho Y.S., Mackay, G., 1999. Pseudo- second order model for sorption processes, *Process Biochemistry*, 34-5, 451-465.
- Hucknall, D.J., 1985, Chemistry of Hydrocarbon Combustion, *Chapman and Hall*, New York.
- International Union Of Pure and Applied Chemistry (Iupac), Physical Chemistry Division, Commission On Colloid and Surface Chemistry, Subcommittee On Characterization Of Porous Solids, 1994, Recommendations for the characterization of porous solids (Technical report), *Pure and Applied Chemistry*, 66,8, 1739-1758.
- Ismadji, S., Sudaryanto, Y., Hartono, S. B., Setiawan, L. E. K. and Ayucitra, A., 2005, Activated carbon from char obtained from vacuum pyrolysis of teak sawdust:pore development and characterization, *Bioresource Technology*, 96, 1364-1369.
- İskeçeli, M., 2010, *Kestane kabuklarından sentetik aktif karbon hazırlaması ve metilen mavisi gideriminde kullanılması*, Yıldız Teknik Üniversitesi Fen bilimleri enstitüsü, İstanbul.

- Kabak, H., 2008, *Kullanılan Bazı Tıbbi İlaçların Canlı Aktif Çamur Biyokütlesi Tarafından Adsorplanma Özelliğinin İncelenmesi*, Doktora Tezi, Çukurova Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Katori K., Nagai, H., Shük, Z., 1977, U.S. Patent, No:4045368
- Kılıç, M., 2004, *Kurşun (II) ve Cıva (II) iyonlarının biyokütle üzerine adsorpsiyonunun incelenmesi*, Süleyman Demirel Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Doktora Tezi, Isparta 156s.
- Kirk, O., 1971, *Encyclopedia of Chemical Technology*, Mercei Decker Inc., Vol II, 880-920.
- Kraemer, E.O., 1930, *A Treatise on Physical Chemistry*, H.S.Taylor (ed), 2nd Ed., Vol:2, D. Van Nostrand Company, Inc., New York.
- Kroschwitz, J.I. (Ed.), 1992, *Kirk-Othmer Encyclopedia of Chemical Technology*, John Wiley & Sons, 4th Ed., 4, 1015-1035
- Küçükgül, E. Y., 2004, Ticari aktif karbon üretimi ve özelliklerinin belirlenmesi, *DEU Mühendislik Fakültesi Fen ve Mühendislik Dergisi*, 6(3):41-56.
- Kyonati T., 1999, Control of poer Structure in carbon, *Carbon*, 269-286.
- Langmuir, I., 1916, The Constitution and Fundamental Properties of Solids and Liquids, *Journal of American Chemistry Society*, 38, 2221-2232.
- Lua, A.C. and Yang, T., 2004, Effects of vacuum pyrolysis conditions on the characteristics of activated carbon derived from pistachio-nut shells, *Journal of Colloid and Interface Science*, 276, 364-372.
- Lussier, M.G., Shull, C.J., Miller, D.J., 1994, Activated carbon from cherry stones, *Carbon*, 32,8,1493-1498.
- Malik, R., Ramteke, D. S. and Wate, S. R., 2006, Adsorption of malachite green on groundnut shell waste based powdered activated carbon, *Waste Management*, InPress.
- Marsh, H., Rodriguez-Reinoso, F., 2006, Activated carbon, *Elsevier Science & Technology Books*, Oxford.
- Martinez, M. L., Torres, M. M., Guzman, C. A. and Maestri, D. M., 2006, Preparation and characterization of activated carbon from olive stones and walnut shells, *Industrial Crops And Products*, 23, 23-28.
- Mc Dougall, G.J., 1991, The physical nature and manufacture of activated carbon, *Journal of South African Institute Mining and Metallurgy*, 91-4, 109-120.

- Molina-Sabio, M. and Rodriguez-Reinoso, F., 2004, Role of chemical activation in the development of carbon porosity, *Colloids And Interfaces*, 241, 15-25.
- Moreno-Castilla, C., Carrasco-Marin, F., Lopez-Ramon, M. V. and Alvarez-Merino, M. A., 2001, Chemical and physical activation of olive-mill waste water to produce activated carbons, *Carbon*, 39, 1415-1420.
- Müller, R.H., Mehnert, W., 1997, Particle and surface characterization methods, *Medpharm Scientific Publishers*, Stuttgart.
- Ng, J. C. Y., Cheung, W. H. and McKay, G., (2003), Equilibrium Studies for the Sorption of Lead from Effluents Using Chitosan, *Chemosphere*, 52(6):1021-1030.
- Olivares-Marin, M., Fernandez-Gonzalez, C., Macias-Garcia, A. and Gomez-Serrano, V., 2006, Preparation of activated carbon from cherry stones by activation with $ZnCl_2$, *Applied Surface Science*, 252, 5967-5971.
- Orbak, İ., 2005, *Tunçbilek Linyitinden Kimyasal Aktivasyon Yöntemi ile Aktif Karbon Üretimi*, Yüksek Lisans Tezi, YTÜ Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul.
- Otun, J. A., Oke, I. A., Olarinoye, N. O., Adie, D. B. and Okuofu, C. A., 2006, Adsorption Isotherms of Pb (II), Ni (II) and Cd (II) Ions onto PES, *Journal of Applied Sciences*, 6(11):2368-2376.
- Patrick, J.W., 1995, *Porosity in carbons*, Edward Arnold, London.
- Puziy A.M., Poddubnaya O.I., Martinez-Alonso A., Suarez Garcia F., Tascon J. M. D., 2005, Surface chemistry of phosphorus-containing carbons of lignocellulosic origin, *Carbon*, 43, 2857-2868
- Qada, E.N.E., Allen, S.J. and Walker, G.M., 2006, Adsorption of Methylene Blue onto Activated Carbon Produced from Steam Activated Bituminous Coal: A Study of Equilibrium Adsorption Isotherm, *Chemical Engineering Journal*, 124 103–110.
- Rouquerol, F., Rouquerol, J. and Sing, K., 1999, Adsorption by powders & porous solids, *Academic Press*, San Diego, p.467.
- Sarıkaya, Y., 1993, *Fizikokimya*, Gazi Büro Kitapevi, Ankara, 633-659.
- Savova, D., Apak, E., Ekinci, E., Yardım, F., Petrova, N., Budinova, T., Razvigorova M. and Minkova, V., 2001, Biomass Conversion to Carbon Adsorbents and Gas, *Biomass Bioenergy*, 21, 133–142.
- Sawyer, C.N., McCarty, P.L., 1978, Chemistry For Environmental Engineering, 3rd Ed., *McGraw Hill Inc.*, Singapore.
- Seydioğlu, G., 2009, Bitkisel atıkların granül aktif karbon üretiminde kullanılması, Yüksek Lisans Tezi, Anadolu Üniversitesi, Eskişehir.

- Smisek, M., Cerny, S., 1970, Active Carbon Manufacture, Properties and Application, *Elsevier Publishing Company*, London.
- Stavitskaya, S.S., 2000, Catalytical Properties of Active Carbon and The Mean Factors Determining Them, *1st Carbon Conference on Carbon*, Vol II, Berlin-Germany.
- Strelko, V., 1999, *Selective Removal of Heavy Metals Using Novel Active Carbons*, Doktora Tezi, Loughborough Üniversitesi, İngiltere.
- Strelko, Jr., V., Malik, D.J., Streat, M., 2002, Characterization of the surface of oxidised carbon adsorbents, *Carbon*, 40, 95-104.
- Sudaryanto, Y., Hartono, S. B., Irawaty, W, Hindarso, H. and Ismadji, S., 2006, High surface area activated carbon prepared from cassava peel by chemical activation, *Bioresource Technology*, 97, 734-739.
- Suzuki, M., 1989, Adsorption Engineering, *Elsevier Science Publishing Company Inc.*
- Şen, Nihal, 2009, *Fındık kabuklarından aktif karbon elde edilmesi ve karakterizasyonu*, Yüksek Lisans Tezi, Fırat Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Elazığ.
- Tan, I. A. W., Ahmad, A. L., and Hameed, B. H., 2008, "Preparation of Activated Carbon from Coconut Husk: Optimization Study on Removal of 2,4,6-trichlorophenol Using Response Surface Methodology", *Journal of Hazardous Materials*, 153: 709–717.
- Ülküseven, N., 1993, *Kirlenmiş Sulardan Killerle Ağır Metal İyonlarının Giderilmesi*, Yüksek Lisans Tezi, İstanbul Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul.
- Vural, Naile, 2007, *Paulownia ağacı odunundan ZnCl₂ aktivasyonu ile aktifleştirilmiş karbon üretimi ve karakterizasyonu*, Yüksek Lisans Tezi, Eskişehir Osmangazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Eskişehir.
- Weber, W.J., 1972, Physicochemical Processes for Water Quality Control, *Wiley Interscience*, New York.
- YANG, T.Y., 2003, Adsorbent: Fundamentals and Applications, *A. John Wiley & Sons Inc Publications*, New Jersey.
- Zall, D.M., 1975, U.S. Patent, No: 3874518.

ÖZGEÇMİŞ



Kişisel Bilgiler

Adı Soyadı	Senem GÜNGÖR
Uyruğu	T.C.
Doğum tarihi, Yeri	11.08.1987, BURSA
Telefon	0535 871 00 75
E-mail	snmgungor@gmail.com
Web adres	-

Eğitim

Derece	Kurum/Anabilim Dalı/Programı	Yılı
Yüksek Lisans	İ.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü/ Kimya Mühendisliği / Temel İşlemler ve Termodinamik	2013
Lisans	İstanbul Üniversitesi / Kimya Bölümü	2010
Lise	Bursa Cumhuriyet Lisesi	2005