

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

**TARIMSAL ATIKLAR KULLANILARAK SULU ÇÖZELTİLERDEN  
ALÜMİNYUM GİDERİMİNİN İNCELENMESİ**

**MERVE METE**

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

**DANIŞMAN  
PROF. DR. BELMA ÖZBEK**

**İSTANBUL, 2014**

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

**TARIMSAL ATIKLAR KULLANILARAK SULU ÇÖZELTİLERDEN**  
**ALÜMİNYUM GİDERİMİNİN İNCELENMESİ**

Merve METE tarafından hazırlanan tez çalışması 23.07.2014 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından Yıldız Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı'nda **YÜKSEK LİSANS TEZİ** olarak kabul edilmiştir.

**Tez Danışmanı**

Prof. Dr. Belma ÖZBEK  
Yıldız Teknik Üniversitesi

**Jüri Üyeleri**

Prof. Dr. Belma ÖZBEK  
Yıldız Teknik Üniversitesi

Prof. Dr. Ayşegül PEKSEL  
Yıldız Teknik Üniversitesi

Doç. Dr. Dilek KILIÇ APAR  
Yıldız Teknik Üniversitesi

\_\_\_\_\_

\_\_\_\_\_

\_\_\_\_\_

## ÖNSÖZ

---

Yüksek Lisans tez çalışmamın ortaya konmasında en büyük payın sahibi olan, bilgisi ve tecrübesi ile beni yönlendiren tez danışmanım Sayın Hocam Prof. Dr. Belma ÖZBEK'e şükranlarımı sunarım.

Akademik kariyerime devam etmem için beni teşvik eden Sayın Hocam Prof. Dr. Selahattin Gökmen'e ve Yrd.Doç.Dr. Elçin DEMİRHAN'a şükranlarımı sunarım.

Son olarak her zaman yanımda olan aileme, bu süreç içerisinde beni yalnız bırakmayan sevgili dostlarıma ve arkadaşlarıma en içten sevgilerimi iletiyorum.

Temmuz, 2014

Merve METE

## İÇİNDEKİLER

---

	Sayfa
SİMGE LİSTESİ.....	ix
KISALTMA LİSTESİ.....	x
ŞEKİL LİSTESİ.....	xi
ÇİZELGE LİSTESİ .....	xv
ÖZET .....	xix
ABSTRACT.....	xxi
<b>BÖLÜM 1</b>	
<b>GİRİŞ.....</b>	<b>1</b>
1.1    Literatür Özeti .....	1
1.2    Tezin Amacı .....	3
1.3    Orjinal Katkı.....	3
<b>BÖLÜM 2</b>	
<b>AĞIR METALLER .....</b>	<b>5</b>
2.1    Ağır Metallerin Etkileri .....	8
2.2    Alüminyum.....	10
2.2.1    Tabiatta bulunuşu ve elde edilişu .....	10
2.2.2    Fiziksel ve kimyasal özellikleri.....	10
2.2.3    Alüminyumun kullanım alanları.....	12
2.2.4    Alüminyumun insan sağlığı üzerine etkileri.....	13
<b>BÖLÜM 3</b>	
<b>ENDÜSTRİYEL KAYNAKLI ATIK SULAR.....</b>	<b>16</b>

3.1	Çeşitli Endüstriyel Faaliyetler .....	17
3.1.1	Madencilik endüstrisi .....	17
3.1.2	Tekstil endüstrisi .....	17
3.1.3	Kağıt endüstrisi .....	18
3.2	Ağır Metal İçeren Atık Suların Sınır Değerleri .....	19
3.3	Atık Suların Arıtılması .....	22
3.3.1	Fiziksel arıtma .....	24
3.3.2	Kimyasal arıtma .....	27
3.3.3	Biyolojik arıtma .....	28
3.3.4	İleri arıtma .....	30

## BÖLÜM 4

ADSORPSİYON .....	32	
4.1	Adsorpsiyon Çeşitleri .....	32
4.1.1	Fiziksel adsorpsiyon .....	33
4.1.2	Kimyasal adsorpsiyon .....	33
4.1.3	İyon değişimi adsorpsiyon .....	34
4.1.4	Biyolojik adsorpsiyon (Biyosorpsiyon) .....	34
4.2	Adsorpsiyona Etki Eden Faktörler .....	35
4.3	Adsorbanlar .....	36
4.3.1	Aktif karbon .....	36
4.3.2	Kil .....	37
4.3.3	Zeolitler .....	38
4.3.4	Kitosan .....	38
4.3.5	Çürümüş bitki turbası .....	38
4.3.6	Endüstriyel atıklar .....	39
4.3.7	Tarımsal atıklar .....	40
4.3.8	Tarımsal atıkların biyoadsorbent olarak kullanımı .....	41
4.4	Adsorpsiyon İzotermi .....	43
4.4.1	Langmuir adsorpsiyon izotermi .....	43
4.4.2	Freundlich adsorpsiyon izotermi .....	46
4.4.3	Temkin adsorpsiyon izotermi .....	47
4.4.4	BET izotermi .....	48
4.5	Adsorpsiyon Kinetiği .....	49
4.5.1	Yalancı 1. Derece Kinetik modeli .....	50
4.5.2	Yalancı 2. Derece Kinetik modeli .....	50
4.5.3	Elovich Kinetik modeli .....	51
4.5.4	Partikül İçi Difüzyon Kinetik modeli .....	52

## BÖLÜM 5

DENEYSEL TASARIM .....	53	
5.1	Deney ve Deneysel Hatanın Önemi .....	53
5.2	Deneysel Tasarımın Tarihçesi .....	54
5.3	Deneysel Tasarımın Gelişimi ve Amacı .....	55

5.4	DeneySEL Tasarım Stratejileri .....	56
5.5	DeneySEL Tasarımda Kullanılan Yöntemler .....	59
5.5.1	İki seviyeli ( $2^k$ ) faktöriyel tasarım yöntemleri.....	59
5.5.2	Cevap yüzey yöntemleri (RSM).....	60
5.5.2.1	Merkezi kompozit tasarım .....	64
5.5.2.2	Box-Behnken tasarımı (BBD).....	65
5.5.3	Üç seviyeli ( $3^k$ ) faktöriyel tasarım yöntemleri .....	65
BÖLÜM 6		
LİTERATÜR ARAŞTIRMASI .....		67
BÖLÜM 7		
MATERYAL VE YÖNTEM .....		73
7.1	Kullanılan Cihazlar.....	73
7.2	Kullanılan Kimyasal Maddeler.....	77
7.3	Kullanılan Biyosorbentler.....	78
7.4	Alüminyum Çözeltisinin Hazırlanması.....	80
7.5	Deneylerin Yapılışı.....	80
7.6	DeneySEL Çalışmaların Planlanması .....	80
7.7	Alüminyum Analizi .....	81
7.8	Kalibrasyon Eğrisinin Oluşturulması .....	81
7.9	Hesaplamalar .....	83
BÖLÜM 8		
ARAŞTIRMA BULGULARI .....		84
8.1	Biosorbent Numunelerine ait FT-IR Analizleri .....	84
8.1.1	Muz kabuğu numunesine ait FT-IR analizi.....	84
8.1.2	Limon kabuğu numunesine ait FT-IR analizi.....	86
8.1.3	Susam küspesi numunesine ait FT-IR analizi .....	88
8.1.4	Aspir küspesi numunesine ait FT-IR analizi .....	90
8.2	Biosorbent Numunelerine ait SEM Analizleri .....	92
8.2.1	Muz kabuğu numunesine ait SEM analizi.....	92
8.2.2	Limon kabuğu numunesine ait SEM analizi.....	92
8.2.3	Susam küspesi numunesine ait SEM analizi .....	95
8.2.4	Aspir küspesi numunesine ait SEM analizi .....	95
8.3	Alüminyum Adsorpsiyonu Çalışmaları İçin DeneySEL Tasarımın Uygulanması.....	98
8.3.1	Muz kabuğu numunesine ait sonuçlar .....	100
8.3.1.1	Muz kabuğu numunesine ait $2^k$ faktöriyel tasarım sonuçları ....	100
8.3.1.2	Muz kabuğu numunesine ait $2^k$ faktöriyel tasarım metodu uygulanarak model denklemin geliştirilmesi .....	101
8.3.1.3	Muz kabuğu numunesine ait Box-Behnken tasarım sonuçları ..	102
8.3.1.4	Muz kabuğu numunesine ait Box-Behnken tasarım metodu uygulanarak model denklemin geliştirilmesi.....	103

8.3.1.5	Muz kabuđu numunesine ait 3 <sup>k</sup> faktöriyel tasarım sonuçları ....	104
8.3.1.6	Muz kabuđu numunesine ait 3 <sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak model denklem geliştirilmesi .....	106
8.3.1.7	Muz kabuđu numunesine ait uygulanan deneysel tasarım yöntemlerinin karşılaştırılması.....	107
8.3.1.8	Muz kabuđu numunesine ait tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiđi.....	110
8.3.2	Limon kabuđuna numunesine ait sonuçlar .....	112
8.3.2.1	Limon kabuđu numunesine ait 2 <sup>k</sup> faktöriyel tasarım sonuçları .	112
8.3.2.2	Limon kabuđu numunesine ait 2 <sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak model denklem geliştirilmesi .....	113
8.3.2.3	Limon kabuđu numunesine ait Box-Behnken tasarım sonuçları	114
8.3.2.4	Limon kabuđu numunesine ait Box-Behnken tasarım metodu uygulanarak model denklem geliştirilmesi .....	115
8.3.2.5	Limon kabuđu numunesine ait 3 <sup>k</sup> faktöriyel tasarım sonuçları .	116
8.3.2.6	Limon kabuđu numunesine ait 3 <sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak model denklem geliştirilmesi .....	118
8.3.2.7	Limon kabuđu numunesine ait uygulanan deneysel tasarım yöntemlerinin karşılaştırılması.....	119
8.3.2.8	Limon kabuđu numunesine ait tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiđi.....	123
8.3.3	Susam küspesi numunesine ait sonuçlar.....	125
8.3.3.1	Susam küspesi numunesine ait 2 <sup>k</sup> faktöriyel tasarım sonuçları.	125
8.3.3.2	Susam küspesi numunesine ait 2 <sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak model denklem geliştirilmesi .....	126
8.3.3.3	Susam küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarım sonuçları.....	127
8.3.3.4	Susam küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarım metodu uygulanarak model denklemin geliştirilmesi .....	128
8.3.3.5	Susam küspesi numunesine ait 3 <sup>k</sup> faktöriyel tasarım sonuçları.	130
8.3.3.6	Susam küspesi numunesine ait 3 <sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak model denklemin geliştirilmesi .....	132
8.3.3.7	Susam küspesi numunesine ait deneysel tasarım yöntemlerinin uygulanması ile elde edilen model denklemlerin uygunluđunun belirlenmesi .....	133
8.3.3.8	Susam küspesi numunesine ait tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiđi.....	137
8.3.4	Aspir küspesi numunesine ait sonuçlar .....	139
8.3.4.1	Aspir küspesi numunesine ait 2 <sup>k</sup> faktöriyel tasarım sonuçları...	139
8.3.4.2	Aspir küspesi numunesine ait 2 <sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak model denklem geliştirilmesi .....	140
8.3.4.3	Aspir küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarım sonuçları .	141

8.3.4.4	Aspir küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarım metodu uygulanarak model denklem geliştirilmesi .....	142
8.3.4.5	Aspir küspesi numunesine ait $3^k$ faktöriyel tasarım sonuçları ...	143
8.3.4.6	Aspir küspesi numunesine ait $3^k$ faktöriyel tasarım metodu uygulanarak model denklem geliştirilmesi .....	145
8.3.4.7	Aspir küspesi numunesine ait uygulanan deneysel tasarım yöntemlerinin karşılaştırılması.....	146
8.3.4.8	Aspir küspesi numunesine ait tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği.....	150
8.4	Adsorpsiyon İzotermi.....	153
8.4.1	Muz kabuğu numunesine ait adsorpsiyon izoterm çalışmaları.....	153
8.4.2	Limon kabuğu numunesine ait adsorpsiyon izoterm çalışmaları ....	156
8.4.3	Susam küspesi numunesine ait adsorpsiyon izoterm çalışmaları ...	159
8.4.4	Aspir küspesi numunesine ait adsorpsiyon izoterm çalışmaları.....	162
8.4.5	Muz kabuğu, limon kabuğu, susam küspesi ve aspir küspesi numunelerine ait adsorpsiyon kapasitelerinin karşılaştırılması .....	165
8.5	Adsorpsiyon Kinetikleri .....	168
8.5.1	Muz kabuğu numunesine ait adsorpsiyon kinetiği çalışmaları.....	168
8.5.2	Limon kabuğu numunesine ait adsorpsiyon kinetiği çalışmaları.....	173
8.5.3	Susam küspesi numunesine ait adsorpsiyon kinetiği çalışmaları ....	178
8.5.4	Aspir küspesi numunesine ait adsorpsiyon kinetiği çalışmaları .....	183
8.5.5	Adsorpsiyon kinetik verilerinin değerlendirilmesi.....	188

## BÖLÜM 9

SONUÇLAR VE ÖNERİLER .....	190
KAYNAKLAR .....	194
EK-A	
ALUMİNYUM ADSORPSİYONUNA AİT İZOTERM VERİLERİ .....	206
EK-B	
ALUMİNYUM ADSORPSİYONUNA AİT KİNETİK VERİLERİ .....	211
EK-C	
DESIGN EXPERT .....	224
ÖZGEÇMİŞ .....	224

## SİMGE LİSTESİ

---

- $q_e$  : Denge de birim adsorban tarafından adsorplanmış adsorbat miktarı, mg/g  
 $C_e$  : Denge de çözeltideki adsorbat konsantrasyonu, mg/L  
 $Q_{max}$  : Birim adsorbanın maksimum adsorpsiyon kapasitesi, mg/g  
 $b$  : Langmuir izotermi sabiti, L/mg  
 $K_F$  : Freundlich sabiti,  $mg^{1-1/n} L^{1/n} g^{-1}$   
 $n$  : Adsorpsiyon yoğunluğunu veren Freundlich sabiti  
 $R^2$  : Regresyon katsayısı  
 $C_0$  : Başlangıçta çözeltideki adsorban konsantrasyonu, mg/L  
 $V$  : Çözelti hacmi, L  
 $\sigma$  : Standart sapma  
 $k_1$  : Yalancı 1. derece hız sabiti,  $dak^{-1}$   
 $k_2$  : Yalancı 2. derece hız sabiti,  $g mg^{-1} dak^{-1}$   
 $C_e$  : Adsorbatın denge konsantrasyonu, mg/L  
 $q_e$  : Denge de birim adsorban tarafından adsorplanmış adsorban miktarı, mg/g  
 $b_T$  : Adsorpsiyon ısısına bağlı Temkin sabiti, J/mol  
 $A_T$  : Temkin izoterm sabiti, L/g  
 $\alpha$  : Elovich kinetik modelinde adsorpsiyon hızını ifade eden sabit,  $mg g^{-1} dak$   
 $\beta$  : Elovich kinetik modelinde yüzey kaplama derecesi ve adsorpsiyon aktivasyon enerjisi ile ilgili sabit,  $g mg^{-1}$   
 $k_i$  : Partikül içi difüzyon hız sabiti,  $mg g^{-1} dak^{-2}$   
 $C_i$  : Partikül içi difüzyon modelinde adsorban ile adsorbat arasında oluşan tabakanın kalınlığı hakkında bilgi veren sabit,  $mg g^{-1}$

## KISALTMA LİSTESİ

---

BOİ	Biyolojik Oksijen İhtiyacı
KOİ	Kimyasal Oksijen İhtiyacı
BET	Brunaur- Emmett-Teller
FT-IR	Fourier Transform Infrared Spectroscopy
WHO	World Health Organisation
PAN	Poliakrilonitril

## ŞEKİL LİSTESİ

Sayfa

Şekil 2.1 Çeşitli sanayi faaliyetlerinden biyosfere ağır metal dağılımı [13] .....	6
Şekil 3.1 Otomatik temizlemeli kaba ızgara [29] .....	24
Şekil 3.2 Dengeleme havuzları [29].....	25
Şekil 3.3 Kum tutucu örneği [29] .....	25
Şekil 3.4 Kimyasal çökertme havuzu örneği [29] .....	26
Şekil 3.5 Biyolojik çökertme havuzu örneği [29].....	27
Şekil 3.6 Aktif çamur örneği .....	29
Şekil 3.7 Havalandırma lagün örneği [29] .....	30
Şekil 4.1 Atık su arıtımında kullanılan adsorbentlerin pazar fiyatları (ABD \$/ton) [44] .	39
Şekil 4.2 Langmuir izoterm grafiği [57] .....	45
Şekil 4.3 Freundlich izoterm grafiği [58] .....	47
Şekil 5.1 Deneysel tasarım aşamaları [71] .....	57
Şekil 5.2 Deneysel tasarım yöntemlerinden bazılarının kübik formda gösterimi [76] ...	59
Şekil 5.3 2 <sup>k</sup> Faktöriyel tasarım ve cevap yüzey yöntemlerinde önerilen deney planlarının kübik formda gösterimi [78].....	60
Şekil 5.4 3 <sup>k</sup> Seviyeli deney kombinasyonu tasarımı [86].....	66
Şekil 7.1 pH metre.....	73
Şekil 7.2 Terazi .....	74
Şekil 7.3 Etüv.....	75
Şekil 7.4 Orbital çalkalayıcı.....	75
Şekil 7.5 Mikro santrifüj.....	76
Şekil 7.6 UV Spektrofotometre .....	77
Şekil 7.7 Ön işlem sonrası deneylerde kullanıma hazır hale getirilen biosorbentler a) muz kabuğu, b) limon kabuğu.....	79
Şekil 7.8 Ön işlem sonrası deneylerde kullanıma hazır hale getirilen biosorbentler a) susam küspesi, b) aspir küspesi .....	79
Şekil 7.9 Alüminyum çözeltisinin kalibrasyon verileri.....	82
Şekil 8.1 Muz kabuğu numunesinin adsorpsiyon öncesi FT-IR spektrumu.....	85
Şekil 8.2 Muz kabuğu numunesinin adsorpsiyon sonrası FT-IR spektrumu .....	86
Şekil 8.3 Limon kabuğu numunesinin adsorpsiyon öncesi FT-IR spektrumu.....	87
Şekil 8.4 Limon kabuğu numunesinin adsorpsiyon sonrası FT-IR spektrumu .....	87
Şekil 8.5 Susam küspesi numunesinin adsorpsiyon öncesi FT-IR spektrumu .....	89
Şekil 8.6 Susam küspesi numunesinin adsorpsiyon sonrası FT-IR spektrumu .....	89

Şekil 8.7 Aspir küspesi numunesinin adsorpsiyon öncesi FT-IR spektrumu .....	91
Şekil 8.8 Aspir küspesi numunesinin adsorpsiyon sonrası FT-IR spektrumu .....	91
Şekil 8.9 Muz kabuğu numunesinin adsorpsiyon öncesi SEM görüntüsü.....	93
Şekil 8.10 Muz kabuğu numunesinin adsorpsiyon sonrası SEM görüntüsü .....	93
Şekil 8.11 Limon kabuğu numunesinin adsorpsiyon öncesi SEM görüntüsü.....	94
Şekil 8.12 Limon kabuğu numunesinin adsorpsiyon sonrası SEM görüntüsü .....	94
Şekil 8.13 Susam küspesi numunesinin adsorpsiyon öncesi SEM görüntüsü.....	96
Şekil 8.14 Susam küspesi numunesinin adsorpsiyon sonrası SEM görüntüsü.....	96
Şekil 8.15 Aspir küspesi numunesinin adsorpsiyon öncesi SEM görüntüsü .....	97
Şekil 8.16 Aspir küspesi numunesinin adsorpsiyon sonrası SEM görüntüsü .....	97
Şekil 8.17 Muz kabuğu numunesine ait farklı pH, biosorbent miktarı ve temas süresi şartlarında gerçekleştirilen deneyler sonucunda elde edilen % adsorpsiyon değerleri ile Box-Behnken tasarımı uygulanarak elde edilen % adsorpsiyon değerlerinin karşılaştırılması .....	109
Şekil 8.18 Muz kabuğu numunesine ait biosorbent dozu ve pH tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği.....	111
Şekil 8.19 Muz kabuğu numunesine ait biosorbent dozu ve temas süresi tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	111
Şekil 8.20 Muz kabuğu numunesine ait pH ve temas süresi tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği.....	112
Şekil 8.21 Limon kabuğu numunesine ait farklı pH, biosorbent miktarı ve temas süresi şartlarında gerçekleştirilen deneyler sonucunda elde edilen % adsorpsiyon değerleri ile Box-Behnken tasarımı uygulanarak elde edilen teorik % adsorpsiyon değerlerinin karşılaştırılması .....	121
Şekil 8.22 Limon kabuğu numunesine ait biosorbent dozu ve pH tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	124
Şekil 8.23 Limon kabuğu numunesine ait biosorbent dozu ve temas süresi tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	124
Şekil 8.24 Limon kabuğu numunesine ait pH ve temas süresi tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği ...	125
Şekil 8.25 Susam küspesi numunesine ait farklı pH, biosorbent miktarı ve temas süresi şartlarında gerçekleştirilen deneyler sonucunda elde edilen % adsorpsiyon değerleri ile Box-Behnken tasarımı uygulanarak elde edilen teorik % adsorpsiyon değerlerinin karşılaştırılması .....	135
Şekil 8.26 Susam küspesi numunesine ait biosorbent dozu ve pH tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	138
Şekil 8.27 Susam küspesi numunesine ait biosorbent dozu ve temas süresi tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	138

Şekil 8.28 Susam küspesi numunesine ait pH ve temas süresi tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği ...	139
Şekil 8.29 Aspir küspesi numunesine ait farklı pH, biosorbent miktarı ve temas süresi şartlarında gerçekleştirilen deneyler sonucunda elde edilen % adsorpsiyon değerleri ile Box-Behnken tasarımı uygulanarak elde edilen teorik % adsorpsiyon değerlerinin karşılaştırılması .....	148
Şekil 8.30 Aspir küspesi numunesine ait biosorbent dozu ve pH tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	151
Şekil 8.31 Aspir küspesi numunesine ait biosorbent dozu ve temas süresi parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği .....	151
Şekil 8.32 Aspir küspesi numunesine ait pH ve temas süresi parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği.....	152
Şekil 8.33 Muz kabuğu numunesine ait 5 mg Al <sup>+3</sup> /L başlangıç konsantrasyonu, 25°C ve farklı pH değerlerinde alüminyum adsorpsiyonu-Langmuir izotermi (■ Deneysel; — Langmuir) (a) pH 2.0, (b) pH 4.0 ve (c) pH 6.0 .....	154
Şekil 8.34 Limon kabuğu numunesine ait 5 mg Al <sup>+3</sup> /L başlangıç konsantrasyonu, 25°C ve farklı pH değerlerinde alüminyum adsorpsiyonu-Langmuir izotermi (■ Deneysel; — Langmuir) (a) pH 2.0, (b) pH 4.0 ve (c) pH 6.0 .....	157
Şekil 8.35 Susam küspesi numunesine ait 5 mg Al <sup>+3</sup> /L başlangıç konsantrasyonu, 25°C ve farklı pH değerlerinde alüminyum adsorpsiyonu-Langmuir izotermi (■ Deneysel; — Langmuir) (a) pH 2.0, (b) pH 4.0 ve (c) pH 6.0 .....	160
Şekil 8.36 Aspir küspesi numunesine ait 5 mg Al <sup>+3</sup> /L başlangıç konsantrasyonu, 25°C ve farklı pH değerlerinde alüminyum adsorpsiyonu-Langmuir izotermi (■ Deneysel; — Langmuir) (a) pH 2.0, (b) pH 4.0 ve (c) pH 6.0 .....	163
Şekil 8.37 Muz kabuğu, limon kabuğu, susam küspesi ve aspir küspesi numunelerine ait 5 mg Al <sup>+3</sup> /L başlangıç konsantrasyonu, 25°C ve farklı pH değerlerinde elde edilen maksimum adsorpsiyon kapasitelerinin karşılaştırılması .....	166
Şekil 8.38 Muz kabuğu numunesi için pH 2.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik) (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L .....	169
Şekil 8.39 Muz kabuğu numunesi için pH 4.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik) (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L .....	170
Şekil 8.40 Muz kabuğu numunesi için pH 6.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik) (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L .....	171
Şekil 8.41 Limon kabuğu numunesi için pH 2.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik) (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L .....	174

Şekil 8.42 Limon kabuğu numunesi için pH 4.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik) (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L.....	175
Şekil 8.43 Limon kabuğu numunesi için pH 6.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik) (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L.....	176
Şekil 8.44 Susam küspesi numunesi için pH 2.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik) (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L.....	179
Şekil 8.45 Susam küspesi numunesi için pH 4.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Birinci Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik) (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L.....	180
Şekil 8.46 Susam küspesi numunesi için pH 6.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik) (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L.....	181
Şekil 8.47 Aspir küspesi numunesi için pH 2.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik) (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L.....	184
Şekil 8.48 Aspir küspesi numunesi için pH 4.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik) (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L.....	185
Şekil 8.49 Aspir küspesi numunesi için pH 6.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik) (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L.....	186
Şekil 8.50 Zamana karşı elde edilen alüminyum konsantrasyonuna ait deneysel veriler (◆ Muz kabuğu, ▲ Limon kabuğu, ■ Susam küspesi, ● Aspir küspesi, — 1. Derece Yalancı Kinetik model).....	188

## ÇİZELGE LİSTESİ

---

	Sayfa
Çizelge 2.1 Alüminyumun fiziksel özellikleri [19].....	11
Çizelge 2.2 Bazı alüminyum bileşiklerinin kullanım alanları [18].....	12
Çizelge 2.3 Bazı ülkelerde içme suyunda alüminyum için verilen yönergeler ve standartlar [3] .....	15
Çizelge 3.1 Kıta içi su kaynakları sınıflandırması [10] .....	19
Çizelge 3.2 Kıta içi su kaynaklarının sınıflara göre kriterleri [10].....	20
Çizelge 3.3 Atık sularda bulunan temel kirleticileri uzaklaştırmak için uygulanan arıtma prosesleri [28] .....	23
Çizelge 4.1 İzoterm tipine göre dağılıma sabit değerleri ve elverişlilik ilkesi [1].....	45
Çizelge 5.1 Deneysel tasarım ile elde edilen modelin ANOVA analizi .....	63
Çizelge 6.1 Farklı malzemelerle gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonları.....	71
Çizelge 7.1 Adsorpsiyon prosesi için deneysel tasarım ile incelenen parametre değerleri .....	81
Çizelge 7.2 Kalibrasyon eğrisi verileri.....	82
Çizelge 8.1 Deneysel tasarım için incelenen faktörlerin seviye değerleri .....	99
Çizelge 8.2 Muz kabuğu numunesine ait $2^k$ faktöriyel tasarım ile elde edilen deneysel veriler .....	100
Çizelge 8.3 Muz kabuğu numunesine ait $2^k$ faktöriyel tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları .....	101
Çizelge 8.4 Muz kabuğu numunesine ait Box-Behnken tasarımı ile elde edilen deneysel veriler .....	102
Çizelge 8.5 Muz kabuğu numunesine ait Box-Behnken tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları .....	103
Çizelge 8.6 Muz kabuğu numunesine ait $3^k$ faktöriyel tasarım ile elde edilen deneysel veriler .....	105
Çizelge 8.7 Muz kabuğu numunesine ait $3^k$ faktöriyel tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları .....	107
Çizelge 8.8 Muz kabuğu numunesine ait uygulanan deneysel tasarım yöntemlerinin korelasyon katsayıları ve standart sapma değerleri .....	108
Çizelge 8.9 Muz kabuğu numunesine ait Box-Behnken tasarım modelinden elde edilen teorik veriler ile deneysel verilerin karşılaştırılması .....	108

Çizelge 8.10 Muz kabuğu numunesine ait Box-Behnken tasarımı ile elde edilen optimum koşullar ve bu koşullarda ulaşılabilecek maksimum % adsorpsiyon değeri.	110
Çizelge 8.11 Limon kabuğu numunesine ait $2^k$ faktöriyel tasarım ile elde edilen deneysel veriler.....	113
Çizelge 8.12 Limon kabuğu numunesine ait $2^k$ faktöriyel tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları .....	114
Çizelge 8.13 Limon kabuğu numunesine ait Box-Behnken tasarım ile elde edilen deneysel veriler.....	115
Çizelge 8.14 Limon kabuğu numunesine ait Box-Behnken tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları .....	116
Çizelge 8.15 Limon kabuğu numunesine ait $3^k$ faktöriyel tasarım ile elde edilen deneysel veriler.....	117
Çizelge 8.16 Limon kabuğu numunesine ait $3^k$ faktöriyel tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları .....	119
Çizelge 8.17 Limon kabuğu numunesine ait uygulanan deneysel tasarım yöntemlerinin korelasyon katsayıları ve standart sapma değerleri .....	120
Çizelge 8.18 Limon kabuğu numunesine ait Box-Behnken tasarım modelinden elde edilen teorik veriler ile deneysel verilerin karşılaştırılması .....	122
Çizelge 8.19 Limon kabuğu numunesine ait Box-Behnken tasarımı ile elde edilen optimum koşullar ve bu koşullarda ulaşılabilecek maksimum % adsorpsiyon değerleri .....	122
Çizelge 8.20 Susam küspesi numunesine ait $2^k$ faktöriyel tasarım ile elde edilen deneysel veriler.....	126
Çizelge 8.21 Susam küspesi numunesine ait $2^k$ faktöriyel tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları .....	127
Çizelge 8.22 Susam küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarım ile elde edilen deneysel veriler.....	128
Çizelge 8.23 Susam küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları .....	129
Çizelge 8.24 Susam küspesi numunesine ait $3^k$ faktöriyel tasarım ile elde edilen deneysel veriler.....	131
Çizelge 8.25 Susam küspesi numunesine ait $3^k$ faktöriyel tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları .....	133
Çizelge 8.26 Susam küspesi numunesine ait uygulanan deneysel tasarım yöntemlerinin korelasyon katsayıları ve standart sapma değerleri.....	134
Çizelge 8.27 Susam küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarım modelinden elde edilen teorik veriler ile deneysel verilerin karşılaştırılması .....	136
Çizelge 8.28 Susam küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarımı ile elde optimum koşullar ve bu koşullarda ulaşılabilecek maksimum % adsorpsiyon değerleri .....	136
Çizelge 8.29 Aspir küspesi numunesine ait $2^k$ faktöriyel tasarım ile elde edilen deneysel veriler.....	140
Çizelge 8.30 Aspir küspesi numunesine ait $2^k$ faktöriyel tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları .....	141
Çizelge 8.31 Aspir küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarımı ile elde edilen deneysel veriler.....	142

Çizelge 8.32 Aspir küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları .....	143
Çizelge 8.33 Aspir küspesi numunesine ait $3^k$ faktöriyel tasarım ile elde edilen deneysel veriler.....	144
Çizelge 8.34 Aspir küspesi numunesine ait $3^k$ faktöriyel tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları.....	146
Çizelge 8.35 Aspir küspesi numunesine ait uygulanan deneysel tasarım yöntemlerinin korelasyon katsayıları ve standart sapma değerleri .....	147
Çizelge 8.36 Aspir küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarım modelinden elde edilen teorik veriler ile deneysel verilerin karşılaştırılması .....	149
Çizelge 8.37 Aspir küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarımı ile elde edilen optimum koşullar ve bu koşullarda ulaşılabilecek maksimum % adsorpsiyon değerleri .....	149
Çizelge 8.38 Muz kabuğu numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Langmuir izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler.....	155
Çizelge 8.39 Muz kabuğu numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Freundlich izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler.....	155
Çizelge 8.40 Muz kabuğu numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin BET izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler.....	155
Çizelge 8.41 Limon kabuğu numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Langmuir izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler.....	158
Çizelge 8.42 Limon kabuğu numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Freundlich izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler.....	158
Çizelge 8.43 Limon kabuğu numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin BET izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler.....	158
Çizelge 8.44 Susam küspesi numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Langmuir izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler.....	161
Çizelge 8.45 Susam küspesi numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Freundlich izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler.....	161
Çizelge 8.46 Susam küspesi numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin BET izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler.....	161
Çizelge 8.47 Aspir küspesi numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Langmuir izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler.....	164

Çizelge 8.48 Aspir küspesi numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Freundlich izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler.....	164
Çizelge 8.49 Aspir küspesi numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin BET izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler.....	164
Çizelge 8.50 Biosorbentler ile elde edilen en yüksek adsorpsiyon yüzdeleri ve adsorpsiyon kapasiteleri değerlerinin karşılaştırılması .....	166
Çizelge 8.51 Literatürdeki veriler ile bu çalışmadan elde edilen verilerin karşılaştırılması .....	167
Çizelge 8.52 Muz kabuğu numunesi ile gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinin kinetik parametreleri.....	172
Çizelge 8.53 Limon kabuğu numunesi ile gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinin kinetik parametreleri.....	177
Çizelge 8.54 Susam küspesi numunesi ile gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinin kinetik parametreleri.....	182
Çizelge 8.55 Aspir küspesi numunesi ile gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinin kinetik parametreleri.....	187
Çizelge 8.56 Zamana karşı elde edilen alüminyum konsantrasyonuna ait deneysel veriler.....	187
Çizelge EK-A.1 Muz kabuğu numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen adsorpsiyon deney verileri.....	202
Çizelge EK-A.2 Limon kabuğu numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen adsorpsiyon deney verileri.....	203
Çizelge EK-A.3 Susam küspesi numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen adsorpsiyon deney verileri.....	204
Çizelge EK-A.4 Aspir küspesi numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen adsorpsiyon deney verileri.....	205
Çizelge EK-B.1 Muz kabuğu numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen kinetik deney verileri.....	207
Çizelge EK-B.2 Limon kabuğu numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen kinetik deney verileri.....	210
Çizelge EK-B.3 Susam küspesi numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen kinetik deney verileri.....	213
Çizelge EK-B.4 Aspir küspesi numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen kinetik deney verileri.....	216
Çizelge EK-C.1 Design Expert programı tarafından önerilen muz kabuğu numunesine ait diğer optimum proses koşulları.....	220
Çizelge EK-C.2 Design Expert programı tarafından önerilen limon kabuğu numunesine ait diğer optimum proses koşulları .....	221
Çizelge EK-C.3 Design Expert programı tarafından önerilen susam küspesi numunesine ait diğer optimum proses koşulları .....	222
Çizelge EK-C.4 Design Expert programı tarafından önerilen aspir küspesi numunesine ait diğer optimum proses koşulları .....	223

**TARIMSAL ATIKLAR KULLANILARAK SULU ÇÖZELTİLERDEN  
ALÜMİNYUM GİDERİMİNİN İNCELENMESİ**

Merve METE

Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı

Yüksek Lisans Tezi

Tez Danışmanı: Prof. Dr. Belma ÖZBEK

Günümüzde su kirliliği, gelişen teknoloji, hızla artan nüfus ve sanayi faaliyetleri sonucu dünyanın en önemli çevre sorunlarından biri haline gelmiştir. Endüstriyel faaliyetler sonucu alıcı sulara karışan birçok atık ve atıksuların yapısında ağır metal bulunmaktadır. Sulardaki ağır metaller, doğal yaşam ve canlılar üzerinde oluşturduğu tehlikeler nedeniyle önemli bir konu haline gelmiştir.

Alüminyum sularda en çok bulunan ağır metallere biridir. Genellikle, sanayide alüminyum giderimi için temel kimyasal yöntemler kullanılmaktadır. Fakat, yüksek maliyet ve toksik etki bırakan atık çamurların zor elimine edilmesi kimyasal yöntemin dezavantajlarıdır. Bu durumda; ucuz, kolay bulunabilen, kullanımı kolay ve çevre dostu biyoteknolojik teknikler kullanılabilir.

Bu çalışmanın amacı, tarımsal atık olan ucuz maliyetli biosorbentlerin (muz kabuğu, limon kabuğu, susam küspesi ve aspir küspesi) sulu çözeltilerden alüminyum giderim kapasitelerinin deneysel tasarım yöntemi kullanılarak araştırılmasıdır. pH, biosorbent miktarı ve temas süresi gibi proses parametrelerinin alüminyum adsorpsiyonuna etkileri Design Expert 9.0 programı kullanılarak incelenmiştir. Ayrıca, deneylerden elde

edilen veriler dikkate alınarak kullanılan her bir biosorbent için en uygun adsorpsiyon izoterm modelleri ve kinetik modeller belirlenmiştir.

Kullanılan tarımsal atıklar içerisinde susam küspesi ile gerçekleştirilen adsorpsiyon işleminde pH 4, 25 °C sıcaklık, 0.25 g biosorbent miktarı ve 30 dak temas süresi koşullarında %98.64 verim ile alüminyum gideriminin en yüksek olduğu tespit edilmiştir. Susam küspesi için hesaplanan  $Q_{max}$  değeri 12.315 mg/g olarak bulunmuştur. Muz kabuğu, aspir küspesi ve limon kabuğu ile gerçekleştirilen adsorpsiyon işlemlerinde ise pH 6, 25 °C sıcaklık, 0.25 g biosorbent miktarı ve 30 dak temas süresi koşullarında sırası ile %98.02, %97.77 ve %93.76 alüminyum giderimi tespit edilmiştir. Muz kabuğu, aspir küspesi ve limon kabuğu için hesaplanan  $Q_{max}$  değerleri ise sırası ile 11.041, 9.0367 ve 7.8678 mg/g olarak bulunmuştur.

**Anahtar Kelimeler:** Alüminyum giderimi, tarımsal atıklar, adsorpsiyon, deneysel tasarım ve optimizasyon, izoterm model, kinetik model

**INVESTIGATION OF ALUMINUM REMOVAL  
FROM AQUEOUS SOLUTIONS USING AGRICULTURAL RESIDUES**

Merve METE

Department of Chemical Engineering

MSc. Thesis

Adviser: Prof. Dr. Belma ÖZBEK

Nowadays, water pollution has become one of the most important environmental problems in the world. Heavy metals in the waste waters have become an important issue because of their negative effects on natural habitats and vibrants. Aluminum is one of the most abundant heavy metals in waters. In generally, chemical techniques are used for effective removal of aluminium mainly by many industries. These techniques are preferred because of their easy application. However, the chemical techniques have disadvantages such as high cost and generation of toxic slurries that are difficult to eliminate. At this stage, the biotechnological techniques which are inexpensive, easy to use and eco-friendly can be used.

The aim of the present study is to investigate aluminium adsorption performance of biosorbents which basically available as agricultural residues. For this purpose; banana peel, lemon peel, sesame seed cake and safflower seed cake were used as biosorbents which are eco-friendly, alternative, non-conventional materials for investigation of heavy metal removal. The effects of process parameters such as pH, biosorbent dose and contact time were investigated using Design Expert 9.0 software. Besides, the most suitable adsorption isotherm models and kinetic models were examined

according to the data obtained from the adsorption experiments for each biosorbent used.

In the present study; after evaluation of the experimental data obtained from the adsorption studies; aluminum removal using banana peel, lemon peel and safflower seed cake were found as 98.02%, 93.76% and 97.7%, respectively, at pH 6, 0.25 g amount of biosorbent, 30 min of contact time. Moreover, using sesame seed cake, aluminum removal was found as 98.64% at pH 4, 0.25 g amount of biosorbent, 30 min of contact time.

In the present study; after evaluation of the experimental data obtained from the adsorption studies; among agricultural residues used, aluminum removal using sesame seed cake was found as 98.64% at pH 4, 25 °C temperature, 0.25 g amount of biosorbent, 30 min of contact time. The maximum adsorption capacity value,  $Q_{max}$ , for sesame seed cake was calculated as 12.315 mg/g. Aluminum removal using banana peel, safflower seed cake and lemon peel were found as 98.02%, and 97.7%, 93.76%, respectively, at pH 6, 25 °C temperature, 0.25 g amount of biosorbent, 30 min of contact time. The maximum adsorption capacity values,  $Q_{max}$ , for banana peel, safflower seed cake and lemon peel were calculated as 11.041, 9.0367 ve 7.8678 mg/g, respectively.

**Keywords:** Aluminum removal, agricultural residues, adsorption, experimental design and optimisation, isotherm model, kinetic model

#### 1.1 Literatür Özeti

Dünya nüfusunun artmasının yanı sıra teknolojinin gelişimi ve sanayileşme hızının artması gibi faktörler çevre kirliliğini de beraberinde getirmiştir. Su kirliliği ise günümüzde bu sorunların en başında yer almaktadır. Su kirliliği, organik, inorganik, biyolojik ve radyoaktif herhangi bir maddenin suya karışarak yapı ve kalitesinin bozulması olarak ifade edilebilir. Çevre ve insan sağlığını olumsuz etkileyen su kirliliğinin sebepleri, tarımsal faaliyetler, bitki ve besin maddelerinin sebep olduğu kirlilikler, hayvan atıklarının oluşturduğu kirlilikler, tarımsal mücadele için kullanılan ilaçların oluşturduğu kirlilikler ve sanayi faaliyetlerinin sebep olduğu kirlilikler olarak sıralanabilir.

Sanayi faaliyetleri sebebiyle meydana gelen atık ve toksik ağır metaller su kirliliğine sebeplerinin en başında gelmektedir. Bunlardan en sık rastlanan ağır metal bakımından kirleticiler, petrol atıkları, kağıt, metal kaplama, ilaç, deri sanayi ve deterjan sanayi atıklarıdır [1]. Ağır metal içeren bu atık suların doğal ve içme sularına karışması, çevre ve canlılar üzerinde tehdit oluşturmaktadır. Zehirleyici özelliklerinden dolayı ekosistemi kirleten ağır metaller insan sağlığını da olumsuz etkilemektedir. Bu sebeple ağır metal içeren atık suların, çevreye verilmeden önce çeşitli dünya standartlarının uygun gördüğü değerlerin altına indirilmesi gerekmektedir.

Alüminyum, silisyum ve oksijenden sonra dünyada en çok bulunan üçüncü element olmasına rağmen, ilk defa 1808 yılında İngiliz Sir Humpry Davy tarafından keşfedilmiş, 1886 yılında ise elektroliz yönteminin kullanılmaya başlaması ile beraber ticari üretimi gerçekleştirilmiştir. Yaklaşık 110 yıldır ticari olarak üretilen alüminyum, bakır, kalay ve kurşun üretiminin toplamından daha fazla üretilmektedir [2].

Alüminyum hafifliği, kolay şekil alabilirliği, çekilebilirliği, işlenebilirliği, korozyona karşı yüksek mukavemetli olması, yüksek ısı ve elektrik iletkenlik özelliği, ışığı ve ısıyı yansıtmasından dolayı, demirden sonra dünyada en fazla kullanılan metaldir. Bu nedenle, atık sulardaki miktarının kontrolü önem taşımaktadır [2].

Atık sulardan ağır metal giderimi için genellikle tercih edilen metotlar: iyon değişimi, elektrokimyasal yöntemler, kimyasal koagülasyon, çöktürme ve yaygın olarak adsorpsiyon işlemidir. Adsorpsiyon prosesinde en çok tercih edilen aktif karbon, sulu çözeltilerden metal iyonları adsorplamada etkili bir adsorbentdir.

Tarımsal atıklar ekonomik olmaları ve kolay bulunabilmeleri nedeni ile yüksek maliyetli adsorbentlere alternatiftir [1]. Ağır metal giderimi için kullanılmış olan biosorbentler, pirinç samanı, yosun, ağaç ve ağaç kabuğu, mısır koçanı, şeker kamışı posası, talaş, pirinç kabuğu, deniz ürünleri atık çamuru, zeytin küspesi, kil, çam iğneleri, badem kabukları, kaktüs yaprakları, kömür ürünleri, uçucu kül, narenciye kabukları ve bitki turbası olarak yer almaktadır [4].

Tarımsal atıkların içerisinde muz, dünya üzerinde en çok tüketilen bitkilerden biridir. Dünyada Güneydoğu Asya'nın tropikal bölgelerinde yetişen ağaçsı bitki ve bu bitkinin yeşil kabuklu (bazı türlerinde kırmızı veya pembe kabuklu) uzun meyveleridir. Türkiye'de Anamur ile Alanya arasında üretilmektedir. Muzun bu kadar talep gören bir meyve olmasının sebebi besleyici bir besin kaynağı olması, birçok vitamin, protein, mineral ve aminoasidi içermesidir [5].

Limon (Citrus limon L.) yıl boyunca büyümeyi sürdüren, kışın yapraklarını dökmeyen ağaç türüdür. Türkiye'de Ege ve Akdeniz bölgelerinde bolca bulunmaktadır. Limon kabuğu selüloz, hemiselüloz ve pektin maddelerinden oluşan bir yapıya sahiptir [6]. Muz ve limon kabuğu adsorpsiyon çalışmalarında günümüzde biosorbent olarak

kullanılma eğilimi artmış, kolay bulunabilir ve uygulanabilir, ucuz maliyetli ve çevre dostu bio-materyallerdir [4].

Ayçiçeğinden sonra ikinci önemli yağ bitkisi olan susamın Türkiye’de üretimi yapılmaktadır. Susamın yağ oranı ve enerji değeri çok yüksek olmakla beraber yapısında protein, kalsiyum, magnezyum, potasyum, mineraller ve B vitamini bulunmaktadır. Susam yağı üretimi sonrasında meydana gelen susam küspesi yüksek protein ve mineral içermektedir. Buna karşın, sadece hayvan yemi olarak kullanılmaktadır [7].

Aspir bitkisi, Arabistan yarımadasından gelen, daha sonra İran, Hindistan ve Pakistan gibi ülkelere yayılan, Türkiye’de ise Anadolu’da yabancı olarak rastlanan ve ekimi de yapılmakta olan bir bitkidir. Ülkemizde Eskişehir, Burdur ve Isparta’da üretimine rastlanmaktadır [5]. Aspir tohumlarının %30-50’si linoleik ve oleik yağ içermektedir. Bu yapı itibarıyla, yağı yemeklik margarin, boya, vernik, yağlı boya ve sabun endüstrisinde ve biodizel yapımında kullanılmaktadır. Yağ alımı işlemlerinden sonra geri kalan aspir küspesi ise, hayvan yemi olarak kullanılmaktadır [8, 9].

## **1.2 Tezin Amacı**

Bu çalışmanın amacı; muz kabuğu, limon kabuğu, susam küspesi ve aspir küspesi gibi tarımsal atıklar kullanılarak ağır metal olan alüminyumun sulu çözeltilerden adsorpsiyonuna proses parametrelerinin (pH, biosorbent miktarı ve temas süresi) etkilerinin incelenmesidir. Adsorpsiyon deneyleri deneysel tasarım yöntemi kullanılarak planlanmış ve bu amaç için Design Expert 9.0 paket programı kullanılmıştır. Farklı proses koşullarında Design Expert 9.0 paket programı uygulanarak, minimum deney sayısı ile doğru ve güvenilir sonuçlara ulaşmak hedeflenmiştir. Elde edilen verilerin hem adsorpsiyon izoterm modellerine hem de kinetik modellere uygunlukları incelenmiştir.

## **1.3 Orjinal Katkı**

Bu çalışmada, tarımsal atık olarak bulunan muz kabuğu, limon kabuğu, susam küspesi ve aspir küspesinin sulu çözeltilerden alüminyum giderimi için adsorpsiyon kapasiteleri incelenmiş, deneylerin planlanması ve optimize edilmesi aşamasında ise Design Expert

9.0 programı kullanılmıştır. Deneysel tasarım yönteminin uygulanması ile minimum enerji ve işgücü kullanımı, kısa sürede sonuca ulaşabilme ve hammadde kaybının önlenmesi amaçlanmıştır. Yapılan çalışma sonucunda, tarımsal atık olarak bulunan muz kabuğu, limon kabuğu, susam küspesi ve aspir küspesinin sulu çözeltilerden alüminyum gideriminde etkin oldukları tespit edilmiştir. Ayrıca, adsorpsiyon izoterm ve kinetik model denklemlerinin geliştirilmesi ve optimum adsorpsiyon şartlarının belirlenmesi ile bilime katkı sağlanmıştır.

## BÖLÜM 2

---

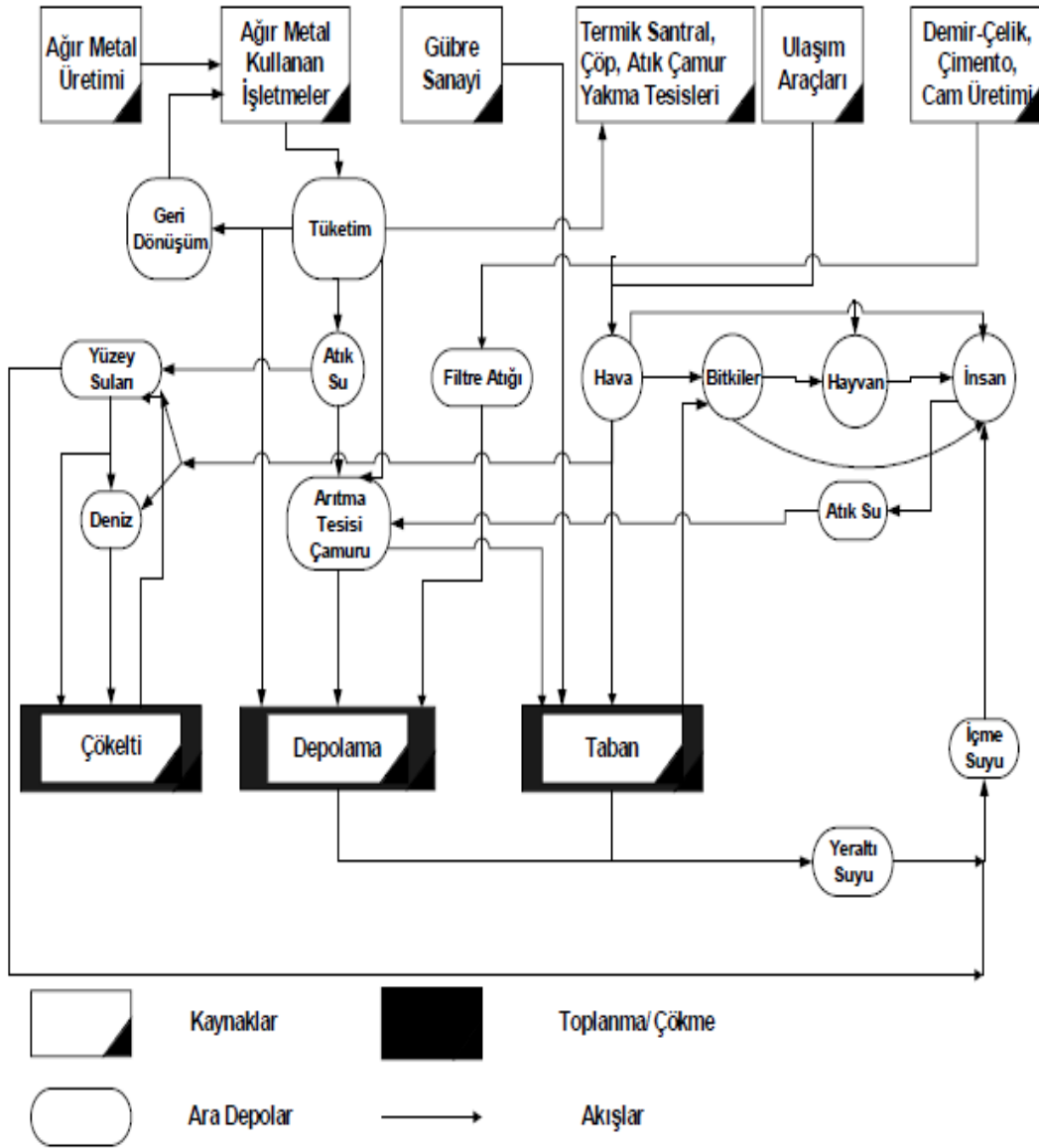
### AĞIR METALLER

Çarpık kentleşme, hızla artan nüfus ve endüstrinin gelişmesiyle meydana gelen, kirliliğe sebebiyet veren maddeler *atık* olarak adlandırılmaktadır. Bu atıklar, katı, sıvı ve gaz formlarda olabilen fiziksel, kimyasal veya bakteriyolojik özelliklere sahip olan, girdikleri ortamın yapı ve özelliklerini deformasyona uğratan maddelerdir.

Solunum, sindirim veya deri teması yolu ile canlı yapısına giren ve dışarı atılamaması sebebiyle birikip, toksik ve kanserojen etki yaratan, biyolojik arıtmaya direnç gösteren, yeraltı ve yüzeysel sularını kirleten atıklar *tehlikeli ve zararlı atıklar* sınıfında yer almaktadır. Tehlikeli ve katı atıkların en başında toksik etki gösteren maddeler ise ağır metallerdir [10].

Araştırmalarda, ağır metal kavramı ile ilgili farklı tanımlar olsa da, bilimsel çalışmaların yarısından fazlası, ağır metalleri yoğunluğu  $4.5 - 5 \text{ g/cm}^3$  ten daha yüksek olan metaller olarak tanımlamaktadır [11]. Sanayi faaliyetleri sonucunda meydana gelen atık sularda, yağmur vasıtasıyla maden sahalarında sızan sularda, çöp sızıntı vb. sulardan bulunan ağır metaller, yeraltı suları, göl ve nehir gibi taşıyıcı ortamlara karışır ve sedimentlerde birikir. Dolayısıyla tesislerde arıtım (deşarj) noktasından çok uzak mesafelerde dahi kirlilik etkisini sürdürmektedir.

Ağır metallerin sebebiyet verdiği metalik kirlilik, kimyasal ya da biyolojik metotlarla parçalanamamakta fakat metal bileşikleri farklı metal bileşiklerine dönüşebilmektedir. Bu esnada, metalin suda çözünen bileşiği ya da toksik etkisi ortaya çıkabilmektedir [12]. Şekil 2.1’de sanayi faaliyetleri sonucunda atmosfere ağır metal dağılımı şematik olarak verilmiştir.



Şekil 2.1 Çeşitli sanayi faaliyetlerinden biyosfere ağır metal dağılımı [13]

Atık sulardaki arıtma çamurları, ağır metallerin önemli bir kısmını içermektedir. Metallerin çözülmüş bölümleri yüzey sularına ve denizlere karışarak, içme sularına ve besin zincirlerine ulaşabilmektedir. Besin zincirine sahil olan ağır metaller kimyasal ya da biyolojik olarak atılımı gerçekleşmez ve bünyede birikirler [11,13]. Endüstride yaygın olarak kullanılan ağır metaller atık sularda istenmeyen yüksek miktarlarda bulunmaktadır. Bu metaller *öncelikli kirleticiler* olarak adlandırılırlar.

Kaplama, madencilik, metal alaşımı, bateri ve pil üretimi, tarım, seramik ve cam üretimi, kimya, ilaç ve dişçilik, elektronik cihaz üretimi, gübre, fosil yakıt yakımı, madencilik, boya ve pigment, petrol rafinasyonu, makine, plastik üretimi, kağıt üretimi, tekstil ve alüminyum endüstri sektörleri ağır metallerin kullanıldıkları sektörlerdir. Bu sektörlerden atık sulara yayılan bazı ağır metaller ise As, Be, Cd, Co, Cu, Fe, Hg, Mn, Mo, Ni, Pb, Sb, Se, V, Zn ve Al'dur.

## 2.1 Ağır Metallerin Etkileri

Doğal ya da endüstriyel kullanımlara bağlı olarak kayalarda, yeraltı sularında ve toprakta bulunan, alüminyum, arsenik, kurşun, civa gibi elementlerin belirli sınır değerlerinin üzerinde olması canlılar üzerinde birtakım olumsuz etkiler ve hasarlar oluşmasına sebep olmaktadır. Ağır metallerin insan vücudundan atılamaması ve yağ, kemik gibi çeşitli dokularda birikmesi en dikkat çeken özelliklerindedir. Vücutta bulunan metal miktarı, sınır değerlerin üzerine çıktığında zararlı etkileri gözlemlenir. Ancak etkileri, alınan metal miktarının yanı sıra pH, metal iyonunun yapısı, çözünürlük değerleri, kimyasal yapısı, redoks ve kompleks oluşturma özelliği, vücudun bu metallerle maruz kalma sıklığı ve vücuda alınış şekli gibi faktörlere de bağlıdır.

Metaller insan vücuduna, solunum yolu, ağız yolu ve deri yolu ile girebilmektedir. Metallerin vücuda girmeleriyle etki ettikleri sistemler, fizyolojik açıdan incelendiğinde ise, dört ana başlıkta sınıflandırılabilir [14].

- Kimyasal reaksiyonlara etki edenler,
- Fizyolojik ve taşıma sistemlerine etki edenler,
- Kanserojen ve mutajen olarak yapı taşlarına etki edenler,
- Allerjen olarak etki edenler.

Ağır metaller biyolojik proseslere katılma derecelerine göre yaşamsal olan ve yaşamsal olmayan olarak iki gruba ayrılır. Yaşamsal olarak adlandırılan ağır metallerin organizma yapısında belirli bir miktarda bulunmaları gereklidir ve düzenli olarak besinler vasıtasıyla alınmaları şarttır. Buna, hayvanlarda ve insanlarda kırmızı kan hücrelerinin ve birçok oksidasyon ve redüksiyon sürecininin gerekliliği olan bakır örnek verilebilir.

Yaşamsal olmayan ağır metaller ise, eser miktarlardaki konsantrasyonlarda dahi psikolojik yapıyı olumsuz etkileyerek, sağlık problemleri doğurmaktadır. Kükürtlü enzimlere bağlanan civa ise bu gruba örneklerden biridir.

Bir ağır metalin yaşamsal ya da yaşamsal olmayan gruba ait olması sadece metale değil, metale maruz kalan organizmaya da bağlıdır. Buna örnek olarak, nikel, bitkiler üzerinde toksik etki gösterirken, hayvanlarda iz elementi olarak bulunması gerekliliktir [14].

Ağır metaller, zihinsel, nörolojik ve hormonal faaliyetleri negatif yönde etkileyerek, insan sağlığını tehdit etmektedir. Ağır metallerin etkilediği sistemler, bağırsak, karaciğer, kan ve dolaşım sistemi, böbrekler ve cilt gibi toksin atma sistemleri, hormonsal sistem, enerji üretim sistemleri, enzimler, bağışıklık, mide, boşaltım, üreme ve sinir sistemleridir. Ayrıca ağır metaller, alerjik rahatsızlıklara, gen yapısını değişime uğratma, faydalı bakterilerin ölümüne ve doku hasarlarına da sebebiyet vermektedir [1]. Alüminyum, literatürde hakkında yapılan çalışmalara az rastlananan bir ağır metal olmasına rağmen, günümüzde sınır değerlerin üzerinde alındığında insan sağlığı üzerindeki yarattığı zihinsel ve nörolojik olumsuz etkilere sebebiyet verdiği hastalıklar fark edilmiş ve atık sulardan giderimi üzerine çalışmalara yönelinmiştir.

## 2.2 Alüminyum

### 2.2.1 Tabiatta bulunuşu ve elde edilişu

Alüminyum yer kabuğunun yaklaşık %8'ini oluşturan, dünyada hava, toprak ve suda en çok bulunan elementlerden biridir [15]. Doğal sularda silikat (alüminyum silikat) formlarının yanı sıra büyük bir oranda  $Al^{+3}$  olarak bulunmaktadır [16]. Alüminyum bileşikleri sadece sularda değil, ilaç ve gıdalarda da bulunmaktadır [15].

Doğada bulunan alüminyum minerallerinin silikat bileşikleri kararlı ve diğer minerallerle kompleks durumda olduklarından, su minerallerden alüminyum üretimi zor ve pahalı bir yöntemdir. Bu sebeple, alüminyum üretimi için boksit minerali tercih edilmektedir [17]. Boksit minerali, alüminyum üretiminin en önemli hammaddesi olup, %30-60 alüminyum oksit içermektedir [18]. Ayrıca, alüminyum gipsit, böhmit, minerallerinden de elde edilmektedir.

### 2.2.2 Fiziksel ve kimyasal özellikleri

Hafif metal sınıfından olan alüminyum metali elektriksel ve termal olarak iyi bir iletken oluşu, kolay işlenebilirliğı, korozyona karşı dayanıklı olması, soğuk ya da sıcakta şekil alabilme yeteneğine sahip olması nedeniyle kullanım alanı geniş bir elementtir [17, 19].

Dünyada, silisyum ve oksijenden sonra en çok bulunan üçüncü elementtir. Buna rağmen, ticari anlamda üretimi yaklaşık sadece 110 yıl öncesine dayanmaktadır. Günümüzde alüminyum gereksinimi yaklaşık olarak 30 milyon tonda iken, bakır 14.7 milyon, kurşun 6 milyon ton, çinko 8.6 milyon ton, kalay 0.4 milyon ton ve çelik ise 858 milyon ton civarında üretildiğı belirtilmektedir. Bu durum, alüminyumun binlerce yıl kullanıldığı bilinen bakır, kalay ve kurşunun toplam üretiminden daha fazla günümüzde alüminyum üretildiğini göstermektedir [1].

Saf alüminyum, atomik kütle numarası 26.9815, atom numarası ise 13 olan beyaz, hafif metaldir. Genel olarak bileşiklerinde  $Al^{+3}$  halinde bulunan alüminyum periyodik cetvelin 3A grubunda yer alır. Genellikle, yüksek reaktifliğinden dolayı saf halde değil, diğer elementlerle bileşim halinde bulunmaktadır. 8 tane radyoaktif izotopu olan

alüminyumun meteorlarda  $7.4 \times 10^5$  yıl olan  $^{26}\text{Al}$  izotopu tespit edilmiştir [19]. Alüminyumun bazı temel fiziksel özelliklerinin değerleri, Çizelge 2.1’de verilmiştir.

Yoğunluğu  $2.70 \text{ g/cm}^3$  olan alüminyum ve alaşımlarında dayanım/yoğunluk oranı yüksek olduğundan, hafif yapısı ile uçak vb. yapılarda istenilen en uygun malzemeyi oluşturur. Diğer bir önemli özelliğide, yüksek elektrik iletkenliğine sahip olmasıdır. Bakırın yaklaşık %65’i kadar iletkenliğe sahip olmasına rağmen bakırdan daha hafif olması özelliğiyle, yüksek gerilim hatlarında bakırın yerini almaktadır. Demirden daha aktif bir metal olmasına rağmen alüminyumun korozyon dayanımı daha yüksektir ve bunun sebebi yüzeyinde oluşan ince oksit tabakasıdır. Bu özelliklerin yanı sıra, alüminyum ve alaşımlarının soğuk ve sıcakta iyi ve kolay şekil alabilmesi, folyo gibi çok ince levha şekline getirilebilmesi, ısı iletme kabiliyetinin yüksek olması sanayide kullanım için tercih sebeplerindedir [19].

Çizelge 2.1 Alüminyumun fiziksel özellikleri [19]

Özellikler	Değerler
Yoğunluk	$2.70 \text{ g/cm}^3$
Erime sıcaklığı	$660 \text{ }^\circ\text{C}$
Erime ısısı	$386 \text{ kJ/kg}$
Isıl genleşme katsayısı	$24.10^{-6} \text{ 1/K}$
Özgül ısı	$0.90 \text{ kJ/kg.K}$
Isı iletme katsayısı	$229 \text{ W/m.K}$
Elektriksel rezistive	$2.67 \times 10^{-8} \text{ Ohm.m}$
Çekme gerilmesi	$62 \text{ Mpa}$
Elastiklik Modülü	$65 \text{ Gpa}$
Sertlik	$15 \text{ Brinel (500 kg, 10 mm bilye)}$

### 2.2.3 Alüminyumun kullanım alanları

Alüminyum metali ve alaşımları özelliklerinden dolayı birçok endüstriyel sektörde kullanılmaktadır. Tüketimi hızla artan alüminyum bu açıdan ekonomi içinde ayrıcalıklı bir yere sahiptir. Hafif olma özelliğinden dolayı alüminyum, en çok taşıt ve uçaklarda kullanılmaktadır. Bunun yanı sıra, kablo, perçin, mutfak eşyası, boru üretimi ve son yıllarda artan taleple pencere ve kapı üretiminde kullanılmaktadır. Önemli bir diğer kullanım alanı da, kaplama malzemesi olarak kullanılmak üzere, toz halinde boya içine katılarak metallerin yüzeyine uygulanmasıdır.

Alüminyumun tüketim alanları sıralanacak olursa, ilk dört sırayı %27 inşaat, %25 taşıt araçları, %15 ambalaj sanayi ve %10 ile elektrik sektörleri almaktadır. Kimya ve gıda sanayi, ulaştırma sektörü, makine ve ekipman üretim sektörleri de, alüminyumun sıkça kullanıldığı alanlardır [1,19]. Çizelge 2.2’de bazı alüminyum bileşiklerinin kullanım alanları verilmiştir [18].

Çizelge 2.2 Bazı alüminyum bileşiklerinin kullanım alanları [18]

Alum	Kan durdurucu ve damar büzücü olarak
Alumina	Çimento bileşeni (katılaştırmayı hızlandırmak için)
Alkoksit	Verniklerde, kozmetiklerde ve farmasotik ürünlerde
Borat	Cam ve seramik yapımında
Karbonat	Antiasit
Klorürler	Lastik yapımında, ham yağların arıtılmasında, tahtaların korunmasında, petrokimya endüstrisinde, antiperspirantlarda aktif bileşen olarak, nem çekici ürünlerde katalizör olarak
Hidroksit	Mide antiasidi, diğer farmasotikler
İzopropoksit	Alüminyum sabun ve boyalarının yapımında ve sugeçirmez kumaşların hazırlanmasında
Fosfat	Antiasit
Silikat	Diş çimentolarında, gıda katkılarında, antiasidlerde ve cam endüstrisinde
Sülfat	İçme sularının arıtılmasında, kağıt üretiminde, boyalarda, mordant olarak ve diğer alüminyum bileşiklerinin elde edilmesinde
Trioksit	Absorban, aşındırıcı ve refraktör madde olarak
Sodyum alüminyum fosfat	Gıda katkısı olarak

#### 2.2.4 Alüminyumun insan sağlığı üzerine etkileri

Alüminyum elementinin 1972 yılına kadar zararlı olduğu kanısına varılmamıştır. Bu tarihlerde sürekli olarak hemodiyaliz tedavisi gören kişilerde beyin hastalıklarının ortaya çıkması ile alüminyumun insan sağlığına verdiği zarar hakkında araştırmalar başlamıştır [15]. Doğada bolca bulunmasına rağmen, alüminyumun biyolojik olarak bilinen bir işlevi yoktur. Toksik olmayan bir element olarak adlandırılmasına rağmen, sağlık üzerindeki etkileri yaygın kullanımından dolayı ilişkilendirilmektedir [20].

Alüminyumun vücuda giriş yolu sindirim sistemidir. Su ise, alüminyum metalini en fazla taşıma yeteneğine sahip faktördür. Normal şartlarda, sindirim sistemi vasıtasıyla kana %1'den daha az alüminyum geçmektedir. Sindirim sisteminden alındıktan sonra, kalan alüminyum miktarı 1-2 µg/L kadardır. Büyük bir kısmı ise, kemik ve akciğer gibi farklı dokularda birikmektedir. Sağlıklı insanlarda böbrek yolu ile alüminyumun vücuttan atılımı gerçekleşmektedir. Ancak, kronik yetmezliği olan ve hemodiyaliz tedavisi gören kişilerde, alüminyum alımı miktarı 30 µg/L'ye kadar çıkabilmektedir [14].

Genel olarak alüminyumun genetik mutasyona ya da genotoksik etkiye sebebiyet vermediği düşünülmektedir. Bunun yanı sıra alüminyum alımının insanlarda ya da hayvanlarda kansere sebebiyet verip vermediği bilinmemektedir. Ancak sürekli olarak diyaliz tedavisi gören kişilerde, diyaliz demansı (diyaliz dementia), diyaliz ensefalopati sendromu, Alzheimer hastalığı, kemik yumuşaması (diyaliz osteomalizisi) ve dinamik kemik hastalığı, Parkinson demansı (Parkinson dementia) ve amyotrofik lateral skleroz (motor nöron hastalığı) gibi hastalıklara neden olduğu görülmüştür [18, 3].

Alüminyumun kalsiyum metabolizmasını etkilediği vurgulanmaktadır. Kalsiyumu kemiklerden uzaklaştırarak, yerine alüminyum birikmekte ve dolaşıma geçen kalsiyumun ise paratiroid hormon sekresyonunu parçaladığı belirlenmiştir. Kemik dokusunu bir araya getiren hücrelerin faaliyetleri, alüminyumun kemiklerde birikmesi ile engellendiği bu durumun kemikleşmeyi bozduğu ve kemiklerde lezyona sebebiyet verdiği bildirilmiştir [18].

Yapılan alıřmalar, ilerleyen zamanlarda, beyin alüminyum kaynaklı hasara yatkın olduėu, alüminyum ierikli besin ve sınır deėerden yüksek konsantrasyonlu alüminyum ieren suların tüketilmesi Alzheimer demansına sebebiyet vermede ve gelişiminde etkili olabileceėine dikkat çekmiştir [3].

Dünyanın çeřitli bölgelerinde yapılan arařtırmalarda, ime sularındaki alüminyum seviyesi ile Alzheimer hastalıėı, demans veya kognitif hasarlanma arasında iliřki belirlenmiştir. Bunun yanı sıra, alüminyumun solunum ile alınımı hakkında fazla bir bulgu olmasa da, solunma ihtimali olan işyerlerinde gerekli tedbirler alınmalıdır. alıřanların alüminyum ieren buharı solunması gerekir. Bu amaçla, havalandırma önlemleri ve maske kullanımı gibi tedbirler alınmalıdır [3].

Alüminyum (alüminyum hidroksit ieren antiasitler) diyaliz solüsyonlarında fosfat bağlayıcı özelliėinden dolayı hiperfosfatemi ve peptik ülseri olan hastaların tedavisinde kullanılır. Uzun süreli bu elemente maruz kalan hastaların kemiklerinde alüminyumun biriktiėi bildirilmiştir. Bunun yanı sıra birçok ilata (tamponlanmış aspirinler, antidiyaretikler, hemoroid preparatları, antepsin vb.) alüminyum iermektedir. Bunun yanı sıra, bölünmüş alüminyum ve alüminyum oksit tozunun solunması, pulmoner fibrosise ve akciėer tahribine sebep olduėu bildirilmiştir. Bu durum Shaver hastalıėı olarak adlandırılmaktadır [18].

Alüminyuma baėlı sinir sistemi üzerindeki hasarlar yıllar getike fark edilmekte ve geri dönüşümü olmamaktadır. Yarattıėı çevresel etkiliřim genellikle, kronik ve ime sularına baėlı olduėu görülmektedir. Bu sebepleri jeolojik olarak ime sularında tehlike taşıyan bölgeler önceden belirlenmeli ve bu bölgelerde yařayan insanların alüminyum miktarı belirlenen sınır seviyelerinden yüksek olmayan alüminyum ieren suları tüketmeleri saėlanmalıdır [3].

Endüstriyel faaliyetler bu durumla doğrudan alkalidir. Yapılan literatür ve uygulamalı proje çalışmalarında, proseslerden kaynaklı ham atık sularda, askıda katı madde, KOI, alüminyum, amonyum azotu, sülfat ve pH gibi parametre seviyelerinin çok yüksek olması, alüminyum sektörü ham proses atıklarının önemli kirletici unsur olduğunun, doğal kaynaklı ve içme sularına karışması takdirde insan ve canlı sağlığı için ve çevresel etmenler için risk arz ettiğinin göstergesidir [1].

İçme sularındaki alüminyum miktarı, ham suyun içerdiği alüminyum konsantrasyonunun yanı sıra, koagülant olarak kullanılan alüminyum tuzlarının miktarına da bağlı olduğu bilinmektedir. Gereğinden fazla ve bilinçli bir şekilde kullanılmayan alüminyum tuzları, içme sularındaki alüminyum konsantrasyonunun artmasına sebebiyet vermektedir.

USA ve UK tarafından belirlenen limitlere göre doğal kaynaklı sulardan izin verilen alüminyum miktarı 0.014 ve 1.2 mg/L'dir. Alüminyumun içme sularındaki bazı dünya standartlarındaki izin verilen limit değerleri ise Çizelge 2.3'de verilmiştir [3].

Çizelge 2.3 Bazı ülkelerde içme suyunda alüminyum için verilen yönergeler ve standartlar [3]

Kuruluş/Devlet	Yönerge Seviyeleri (mg/L)	Maximum kabul edilebilir Al <sup>+3</sup> konsantrasyonu (mg/L)
WHO	0.2	-
EEC	0.05	0.2
İsveç	-	0.1
İsviçre	-	0.5
USEPA	0.05	0.2
Finlandiya	-	0.2
Danimarka	0.05	0.2
Avusturya	-	0.2
Kanada	-	-
BIS	0.03	0.2

### ENDÜSTRİYEL KAYNAKLI ATIK SULAR

Endüstriyel faaliyetler sonrasında açığa çıkan her türlü işlem ve yıkama artığı olarak oluşan sular, *endüstriyel* nitelikli *atık sular* olarak tanımlanmaktadırlar. Kirlilik faktörü taşıyan atık suların herhangi bir işlemde geçirilmeden alıcı ortamlara verilmesi, su kirliliğinin en başta gelen sebeplerindendir. Atık suların içerdiği tuzlar, pestisitler, deterjanlar ve ağır metaller, suların yapısında fiziksel ve kimyasal değişikliklere sebep olur. Endüstriyel atıklar, yeraltı ve yerüstü su kaynaklarının kirlenmesine sebebiyet vererek bu kaynakların içme suyu ve sulamada kullanım olanaklarını sınırlamaktadır. Bu durum tarım bölgelerinde, toprakta iz element, ağır metal ve çeşitli kirliliklerin birikimine sebep olarak yetiştirilen ürün kalitesinde ve sayısında azalmaya, ürünün yapısını bozarak doğal yetiştirme ortamından uzaklaşmasına sebep olmaktadır. Endüstrinin sebep olduğu bu olumsuzluklara bağlı olarak üretici ve bireylerin sağlığı ve ekonomik açıdan gelirleri zarar görmektedir [21].

### **3.1 Çeşitli Endüstriyel Faaliyetler**

Endüstrinin her alanında farklı üretim işlemleri uygulanmakta, birbirinden farklı birçok madde kullanılmakta ve kullanılan bu maddelerin özellikle kimyasal olanların bir kısmı atık sulara karışmaktadır. Her endüstri atığı farklı özelliklere sahip olup, çevre ve canlıları olumsuz etkilemekte ve doğal dengeyi bozmaktadır [1].

#### **3.1.1 Madencilik endüstrisi**

Madencilik endüstrisi faaliyetlerinde, üretim sonrası atıklar için gerekli ve yeterli önlemler alınmadığında atıklar, su kaynaklarına karışabilir ve sularda kirliliğe neden olurlar. Su kirliliğinin kronik bir sorun haline gelmesindeki en önemli etken, suyun hareketliliğidir. Akıntılar ve nehirler vasıtasıyla yüzeyden taşınabilen kirlilikler, sızma ve süzülme yolları ile de yeraltı sularına karışabilir. Yağmur sularının ya da madencilik işlemleri sonucunda meydana gelen suların, atığa sızması çözünmeye sebebiyet verebilir ve özüt (liç), sülfid oksidasyonuna ve asit oluşumuna sebebiyet vererek ağır metallerin çevreye yayılımına neden olur. Ağır metaller toksik etkisi bulunan ve zehirli olarak tanımlanan maddelerdir. Yüksek konsantrasyonlarında (sınır değerlerinin) üzerinde öldürücü etki yapabilirler [22]. Metal kaplama ve alüminyum endüstrisinin atık su arıtma tesislerinde oluşan alüminyum atık suları yapısında, askıda katı madde, KOI, alüminyum, sülfat, amonyum azotu gibi parametre değerlerinin çok yüksek oranlarda bulunması alüminyum sektörü proses atık sularının önemli bir kirlenme potansiyeline sahip olduğunu göstermektedir [1].

#### **3.1.2 Tekstil endüstrisi**

Tekstil endüstrisi çevre kirliliğine sebep olan en önemli endüstri dallarından biridir. Ağartma, boyama ve yıkama gibi işlemler sonucu yüksek miktarlarda atık sular oluşmaktadır. Biyolojik olarak parçalanamayan boyarmaddeler ise bu atık suların yapılarını oluşturan en önemli maddelerdir. Boyar maddeler, suyun ışık ve gaz geçirgenliğini azaltarak, fotosentezi engeller ve ekolojik dengeyi olumsuz yönde etkiler. Düşük derişimleri dahi insan sağlığını tehdit eden ve toksik bileşik içerme olasılıkları yüksek olan tekstil atık sularının uygun ve etkili yöntemlerle arıtılması ve alıcı sulara

verilmesi gerekmektedir [23]. Yapısında boyar madde içeren tekstil atık sularının gideriminde kullanılan başlıca yöntemler, adsorpsiyon, kimyasal çöktürme ve flokulasyon, iyon değişimi, ozonlama, membranla ayırma, biyolojik arıtım ve biyosorpsiyondur.

Kimyasal çöktürme, en çok tercih edilen yöntem olmasına rağmen kullanılan kimyasalların maliyeti ve arıtım sonucunda meydana gelen atık çamurun elimine edilmesinin zorluğu ve yüksek maliyeti, dezavantajlarındandır. Oksidasyon yöntemlerinin olumsuz yanı ise, toksik yan ürünlerin oluşma potansiyeline sahip olmasıdır. Adsorpsiyon gibi fiziksel yöntemlerde adsorbent olarak genellikle tercih edilen aktif karbon ise, etkili bir adsorbent fakat maliyeti yüksek olan bir materyaldir.

Atık suların arıtımında kullanılan bir diğer fiziksel yöntemde membran kullanımıdır. Ancak, giderim sonrası membranda biriken atığın elimine edilmesinin güçlüğü, membranın tıkanmasına sebebiyet vermesi gibi olumsuz yanları söz konusudur. İyon değiştiricilerin pahalı materyaller oluşu ve rejenerasyon ihtiyacı yöntemin dezavantajlarındandır. Bu durum, araştırmacıları maliyetli ve etkili giderim sağlayan alternatif yöntemler geliştirmeye yöneltmiştir [24, 25].

### **3.1.3 Kağıt endüstrisi**

Kağıt endüstrisi faaliyetleri sonucunda çevre kirliliği yaratan çeşitli gazlar, sıvılar ve katı atıklar oluşmaktadır. Bu özelliklere sahip sanayi atık sularının, akarsu, deniz ve çeşitli alıcı ortamlarına bırakılmadan önce uygun ve etkili yöntemlerle arıtılması gerekmektedir. Bunun yanı sıra, atık sular zehirli maddelerden ve inhibitörlerden arındırılarak, atık su yönetmeliğinde belirtilen sınır değerleri oranlarına ulaştırılmalıdır. Aksi takdirde, suyun oksijenini tüketerek, yapısındaki zararlı maddeler ile sulardaki canlıların hayatını tehlikeye sokmaktadır [26]. Kağıt endüstrisi atık suları arıtımı çok zor gerçekleştirilen bir işlemdir. Bunun sebebi, işlem sırasında birbirinden farklı çeşitli maddelerin kullanılması ve alıcı ortamlara verilen atık suyu debisinin çok yüksek olmasıdır. Bu yapıdaki atık sulardan zararlı bileşiklerin ve renk gideriminin yapılmasında sedimentasyon, flotasyon, koagülasyon, elektrokimyasal işlemler ve adsorpsiyon yöntemleri etkili bir şekilde kullanılabilir [27].

### 3.2 Ağır Metal İçeren Atık Suların Sınır Değerleri

Su kirliliği kontrolünün esaslarının belirlenmesi, ülkenin yeraltı ve yerüstü su kaynaklarının korunması ve bu kaynakların en verimli bir biçimde kullanabilmesi amacıyla, 2872 sayılı Çevre Kanununa uygun olarak 25687 sayılı, 31 Aralık 2004 tarihli Resmi Gazetede yayınlanan "Su Kirliliği Kontrol Yönetmeliği" hazırlanmıştır. Yönetmelik, atık suların organik, inorganik, fiziksel ve kimyasal parametrelerin ve kıta içi su kaynaklarının su sınır değerlerini kapsamaktadır.

*Kıta içi* su kaynağı, karalarda yapay ve doğal olan yeraltı ve yerüstü su kaynaklarına, denizle bağlantılı olan su kaynaklarında ise tatlı su sınır noktasına kadar olan sulara verilen tanımdır. Genel olarak dört grupta incelenen bu sular Çizelge 3.1'de verilmiştir. Kıta içi su kaynaklarının sınıflarına göre kriterleri ise Çizelge 3.2'de verilmiştir. Atık suların alıcı ortamlara deşarj standartları, Su Kirliliği ve Yönetmeliği kapsamında 16 ana, 106 alt sanayi sınıfına ayrılmış ve her bir sınıf için kirlilik parametreleri belirlenmiştir [7].

Çizelge 3.1 Kıta içi su kaynakları sınıflandırması [10]

Sınıf 1	Yüksek kaliteli su
Sınıf 2	Az kirlenmiş su
Sınıf 3	Kirli su
Sınıf 4	Çok kirlenmiş su

Çizelge 3.2 Kıta içi su kaynaklarının sınıflara göre kriterleri [10]

<b>SU KALİTE PARAMETRELERİ</b>	<b>I</b>	<b>II</b>	<b>III</b>	<b>IV</b>
A) Fiziksel ve inorganik- kimyasal parametreler				
1) Sıcaklık (°C)	25	25	30	> 30
2) pH	6.5-8.5	6.5-8.5	6.0-9.0	6.0-9.0 dışında
3) Çözünmüş oksijen (mg O <sub>2</sub> /L) <sup>a</sup>	8	6	3	< 3
4) Oksijen doygunluğu (%) <sup>a</sup>	90	70	40	< 40
5) Klorür iyonu (mg Cl <sup>-</sup> /L)	25	200	400 <sup>b</sup>	> 400
6) Sülfat iyonu (mg SO <sub>4</sub> <sup>=</sup> /L)	200	200	400	> 400
7) Amonyum azotu, (mg NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N/L)	0.2 <sup>c</sup>	1 <sup>c</sup>	2 <sup>c</sup>	> 2
8) Nitrit azotu (mg NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> -N/L)	0.002	0.01	0.05	> 0.05
9) Nitrat azotu (mg NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N/L)	5	10	20	> 20
10) Toplam fosfor (mg P/L)	0.02	0.16	0.65	> 0.65
11) Toplam çözünmüş madde (mg/L)	500	1500	5000	> 5000
12) Renk (Pt-Co birimi)	5	50	300	> 300
13) Sodyum (mg Na <sup>+</sup> /L)	125	125	250	> 250
B) Organik parametreler				
1) Kimyasal oksijen ihtiyacı (KOİ) (mg/L)	25	50	70	> 70
2) Biyolojik oksijen ihtiyacı (BOİ) (mg/L)	4	8	20	> 20
3) Toplam organik karbon (mg/L)	5	8	12	> 12
4) Toplam kjeldahl-azotu (mg/L)	0.5	1.5	5	> 5
5) Yağ ve gres (mg/L)	0.02	0.3	0.5	> 0.5
6) Metilen mavisi ile reaksiyon veren yüzey aktif maddeleri (MBAS) (mg/L)	0.05	0.2	1	> 1.5
7) Fenolik maddeler (uçucu) (mg/L)	0.002	0.01	0.1	> 0.1
8) Mineral yağlar ve türevleri (mg/L)	0.02	0.1	0.5	> 0.5
9) Toplam pestisid (mg/L)	0.001	0.01	0.1	> 0.1
C) İnorganik kirlenme parametreleri <sup>d</sup>				
1) Civa (µg Hg/L)	0.1	0.5	2	> 2
2) Kadmiyum (µg Cd/L)	3	5	10	> 10
3) Kurşun (µg Pb/L)	10	20	50	> 50
4) Arsenik (µg As/L)	20	50	100	> 100

Çizelge 3.2 Kıta içi su kaynaklarının sınıflara göre kriterleri (devamı)

<b>SU KALİTE PARAMETRELERİ</b>	<b>I</b>	<b>II</b>	<b>III</b>	<b>IV</b>
5) Bakır ( $\mu\text{g Cu/L}$ )	20	50	200	> 200
6) Krom (toplam) ( $\mu\text{g Cr/L}$ )	20	50	200	> 200
7) Krom ( $\mu\text{g Cr}^{+6}/\text{L}$ )	Ölçülme- yecek kadar az	20	50	> 50
8) Kobalt ( $\mu\text{g Co/L}$ )	10	20	200	> 200
9) Nikel ( $\mu\text{g Ni/L}$ )	20	50	200	> 200
10) Çinko ( $\mu\text{g Zn/L}$ )	200	500	2000	> 2000
11) Siyanür (toplam) ( $\mu\text{g CN/L}$ )	10	50	100	> 100
12) Florür ( $\mu\text{g F}^{-}/\text{L}$ )	1000	1500	2000	> 2000
13) Serbest klor ( $\mu\text{g Cl}_2/\text{L}$ )	10	10	50	> 50
14) Sülfür ( $\mu\text{g S}^{-}/\text{L}$ )	2	2	10	> 10
15) Demir ( $\mu\text{g Fe/L}$ )	300	1000	5000	> 5000
16) Mangan ( $\mu\text{g Mn/L}$ )	100	500	3000	> 3000
17) Bor ( $\mu\text{g B/L}$ )	1000 <sup>e</sup>	1000 <sup>e</sup>	1000 <sup>e</sup>	> 1000
18) Selenyum ( $\mu\text{g Se/L}$ )	10	10	20	> 20
19) Baryum ( $\mu\text{g Ba/L}$ )	1000	2000	2000	> 2000
20) Alüminyum ( $\text{mg Al/L}$ )	0.3	0.3	1	> 1
21) Radyoaktivite ( $\text{pCi/L}$ )				
alfa-aktivitesi	1	10	10	> 10
beta-aktivitesi	10	100	100	> 100
D) Bakteriyolojik parametreler				
1)Fekal koliform, EMS/100 mL	10	200	2000	> 2000
2)Toplam koliform, EMS/100 mL	100	20000	100000	> 100000
a)Konsantrasyon veya doygunluk yüzdesi parametrelerinden sadece birisinin sağlanması yeterlidir.				
b)Klorüre karşı hassas bitkilerin sulanmasında bu konsantrasyon limitini düşürmek gerekebilir				
c)PH değerine bağlı olarak serbest amonyak azotu konsantrasyonu $0.02 \text{ mg NH}_3^{-} \text{ N/L}$ değerini geçmemelidir.				
d)Bu gruptaki kriterler parametreleri oluşturan kimyasal türlerin toplam konsantrasyonlarını vermektedir.				
e)Bora karşı hassas bitkilerin sulanmasında kriteri $300 \mu\text{g/L}$ 'ye kadar düşürmek gerekebilir.				

### **3.3 Atık Suların Arıtılması**

Atık su arıtımı suların bünyesinde kirliliğe sebep olan yabancı maddeleri uzaklaştırmak için yapılan bir dizi fiziksel ve kimyasal işlemleri kapsar. Atık su içerisindeki kirleticileri elimine etmek için suyun karakterine göre birincil, ikincil ve ileri atık arıtma yöntemleri kullanılmaktadır. Birincil arıtma, sudaki yüzen ve çökebilir maddeleri ayırmak için fiziksel arıtım yöntemlerinin kullanıldığı bir işlemdir. İkincil arıtma, organik maddeleri uzaklaştırmak için kullanılan biyolojik ve kimyasal arıtma işlemlerini kapsar. İleri arıtma ise, ikincil arıtma yöntemiyle giderilemeyen kirlilik unsuru yabancı maddelerin giderilmesi için, ikincil arıtmaya ek olarak kullanılan proseslerden oluşmaktadır. Çizelge 3.3'de atık sulardaki kirleticiler ve sulardan elimine edilmesi için kullanılan yöntemler verilmiştir [28].

Çizelge 3.3 Atık sularda bulunan temel kirleticileri uzaklaştırmak için uygulanan arıtma prosesleri [28]

<b>Kirletici</b>	<b>Arıtma Prosesi</b>	<b>Kirletici</b>	<b>Arıtma Prosesi</b>
Askıda Katı Maddeler  Biyolojik olarak parçalanabilir (ayrışabilir) organik maddeler	Çöktürme	Mikroorganizmalar	Ultraviyole
	Yüzdürme	Azot	Nitrifikasyon ve denitrifikasyon
	Filtrasyon		
	Koagülasyon-Çöktürme		İyon Değişirme
	Arazide arıtma		Kırılma noktası klorlaması
	Fiziko-Kimyasal sistemler		
	Aktif çamur varyasyonları		Olgunlaştırma havuzları
Patojenler (Zararlı)	Biyofilm prosesleri		Arazide arıtma
	Stabilizasyon havuzları		
	Lagünler	Fosfor	Metal tuzları ilavesi ile çöktürme
	Anaerobik arıtma		
Ağır Metaller	Arazide arıtma		Kireç koagülasyonu-Çöktürme
	Klorlama		Biyokimyasal olarak fosfor giderimi
	Ozon		Arazide arıtma
Çözünmüş İnorganik Katılar	Kimyasal çöktürme	Yağ ve Gres	Yüzdürme
	İyon değişimi		
	Arazide arıtma		
	İyon değişirme	Çökebilir katı maddeler	Izgara
	Ters ozmoz		Kum tutucu

### 3.3.1 Fiziksel arıtma

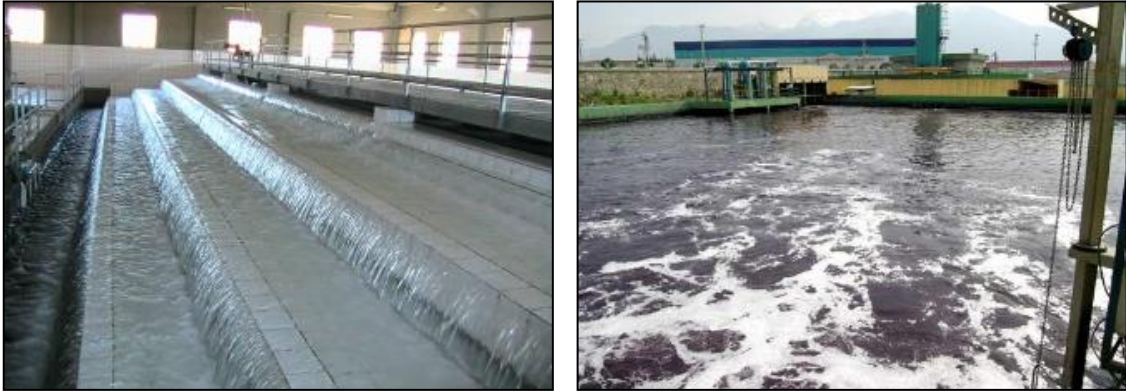
Atık su içerisindeki kirlilik yaratan maddelerin sulardan elimine edilmesi için kullanılan proseslerdir. Fiziksel arıtım yapmak amacıyla, ızgaralar, elekler, kum tutucular, yüzdürme sistemleri, çöktürme havuzları ve dengeleme havuzları kullanılmaktadır.

***Izgaralar***, büyük hacimli maddelerin sulardan ayrılarak pompa ve diğer ekipmanlara zarar vermesini önlemek ve diğer arıtma ünitelerinin yükünü azaltmak amacı ile kullanılan arıtım üniteleridir. Izgaralar çubuk mesafelerine göre ince ve kaba olarak, arıtım şekillerine göre ise elle veya otomatik temizlemeli olarak tasarlanmaktadır (Şekil 3.1).



Şekil 3.1 Otomatik temizlemeli kaba ızgara [29]

**Elekler**, atık su içerisindeki katı maddelerin tutulması ve arıtma sistemine giren kirliliklerin azaltılması amacıyla kullanılırlar. Eleklerden toplanan atıklar, yine ızgara atıkları için uygulanan yöntemlerle bertaraf edilirler. Eleklerden tutulan madde boylarına bağlı olarak ince ya da kaba elekler olarak adlandırılırlar. *Dengeleme havuzları*, atık suyun kirlilik ve debi yüklerinin dengelenmesi amacıyla kullanılır (Şekil 3.2).



Şekil 3.2 Dengeleme havuzları [29]

**Kum tutucular**, atık su içerisinde kum, çakıl gibi atık sulardan ayrılmayan maddeleri atık sudan ayırarak makine ve ekipmanların aşınmasını önlemek, çöktürme havuzlarında kum ve çakıl birikimini engellemek amacıyla kullanılır (Şekil 3.3).



Şekil 3.3 Kum tutucu örneği [29]

**Yüzdürme sistemleri**, çökeltme işleminin tersi olan yüzdürme prosesi sudan daha düşük özgül ağırlığı olan taneciklerin yüzeye çıkma esasına dayanmaktadır. Yağ, sabun, gress, ahşap parçaları gibi sudan daha hafif olan maddelerin tutulması amacıyla bu sistemler kullanılır.

**Çökertme havuzları**, sudan daha fazla yoğunluğa sahip katı maddelerin durağan şartlarda yerçekimi etkisi ile çöktürülerek sulardan elimine edilmesi amacıyla kullanılır. Bunun yanı sıra, çöktürme havuzları, ön çöktürme, biyolojik ve kimyasal arıtım işlemleri sonunda, istenilirse son çöktürme işlemi amacıyla kullanılabilir (Şekil 3.4-3.5) [29].



Şekil 3.4 Kimyasal çökertme havuzu örneği [29]



Şekil 3.5 Biyolojik çökertme havuzu örneği [29]

### 3.3.2 Kimyasal arıtma

Kimyasal arıtma prosesleri, kirlilik yaratan suda çözünmüş, askıda ya da kolloidal olarak bulunan maddelerin fiziksel hallerini değiştirerek, çökmesini sağlayan arıtma üniteleridir. Kimyasal arıtma proseslerinde, uygun pH değerinde atık suya kimyasal maddeler (koagülant, polielektrolit vb.) eklenerek, çöktürülmesi istenen maddeler çökertilerek çamur olarak sudan uzaklaştırılır. Su arıtımı prosesinde kimyasal çöktürme su sertliğini gidermede tercih edilen bir işlemdir. Genel olarak nötralizasyon, flokülasyon ve koagülasyon bu amaçla tercih edilen uygulamalarıdır.

- *Nötralizasyon*, asidik ve bazik yapıdaki atık suların uygun pH değerine ayarlanması için asit ve baz ilavesi ile yapılan işlemdir.
- *Koagülasyon*, koagülant maddelerin uygun pH da atık suya ilave edilmesiyle atık suyun bünyesindeki kolloidal ve askıda katı maddelerle birleşerek flok oluşturmaya hazır hale gelmesi işlemidir.

- *Flokülasyon* (yumaklaştırma), atık suyun uygun hızda karıştırılması sonucunda koagülasyon işlemi ile oluşturulmuş küçük taneciklerin birbiriyle birleşmesi ve kolay çökebilecek flokların oluşturulması işlemidir [29]. Floklaşmaya yardımcı olması amacıyla, kil, kalsit, polielektrolit, aktif silika, çeşitli alkali ve asitler koagülant maddeler olarak ilave edilirler.  $AlCl_3$ ,  $FeCl_3$ ,  $CaO$ ,  $Ca(OH)_2$  gibi maddeler ise yumaklaştırma işleminde koagülant olarak tercih edilen maddelerdir [1].

### 3.3.3 Biyolojik arıtma

Biyolojik arıtma, atık su içerisindeki çözünmüş organik maddelerin bakteriyolojik faaliyetlerle ayrıştırılarak giderilmesi işlemidir. Bakterilerin arıtma işlemini gerçekleştirebilmesi atık su ortamında pH, sıcaklık, çözünmüş oksijen, toksik maddeler gibi uygun parametrelerin mevcut olması gerekir. Suda yaşayan birçok organizma çözünmüş ağır metalleri ve radyoaktif elementleri adsorplama yeteneğine sahiptir. Atık sularda kirlilik yaratan zararlı metal iyonlarının giderimi mikroorganizmaların bu özelliğinden faydalanarak gerçekleştirilebilmektedir. Bu yöntemin diğer yöntemlere göre avantajı, düşük maliyetli ve işlem süresinin kısa olmasıdır. Bunun yanı sıra uygulanabilirliği temiz ve kolaydır. Ancak ağır metal giderim kapasitesinin az olması bu yöntemin dezavantajlarından biridir. Uygulamaları; aktif çamur sistemleri, biyofilm sistemleri, stabilizasyon havuzları, havalandırılmalı lagünler ve damlatmalı filtrelerdir [1, 29].

Biyolojik arıtma metotları aerobik ve anaerobik olmak üzere ikiye ayrılır. Oksijenli ortamlarda gerçekleştirilen arıtma prosesleri aerobik proseslerdir. Aerobik proseslerin uygulamaları, aktif çamur sistemleri, aerobik stabilizasyon havuzları ve damlalı filtrelerdir. Havasız ortamda gerçekleştirilen arıtım sistemleri anaerobik proseslerdir.

*Aktif Çamur*, dengeleme, havalandırma, çöktürme ve dezenfeksiyon bölümlerinden oluşan bir sistemdir. Çamur yöntemi ile çalışan sistemler uygulamada sıkça tercih edilen yöntemlerdir. Aktif çamur sistemlerinin temel prensibi organik maddelerin parçalanmasından sorumlu olan bakterilere dayanmaktadır (Şekil 3.6).



Şekil 3.6 Aktif çamur örneği

*Stabilizasyon havuzları*, uygulanması kolay proseslerdir. Aerobik, anaerobik ve fakültatif stabilizasyon havuzları olarak sınıflandırılırlar.

*Havalandırmalı Lagünler*, bu sistemlerde havalandırma için doğal alanlar kullanır. Gerekli oksijen, difüzör veya yüzeysel havalandırıcılar vasıtasıyla sağlanır (Şekil 3.7).

*Sürekli Karıştırmalı Tank Reaktörü*, atık suların anaerobik arıtılmasında kullanılan sürekli karıştırılan ve tank tipinde olan bir reaktördür. *Anaerobik filtre*, hareketsiz hücre reaktörlerinin bir uyarlaması olarak geliştirilen, anaerobik filtre şeklinde kullanılan dolgu malzemesi biyofilm gelişmesi için gerekli olan temas yüzeyini sağlar.

*Akışkan yataklı sistemler*, bu sistemde yukarı akışlı reaktör, kısmen bir taşıyıcı malzeme (genellikle kum) ile doldurulur. Söz konusu reaktörde kum tanecikleri üzerinde biyofilm oluşturularak arıtmanın gerçekleştirilmesi amaçlanır [29].



Şekil 3.7 Havalandırma lagün örneği [29]

### 3.3.4 İleri arıtma

İleri arıtma teknikleri, genel olarak klasik biyolojik arıtma işlemlerinden elde edilen suları daha fazla iyileştirmek adına yapılan arıtmadır. Dezenfeksiyon, azot ve fosfor giderme, filtrasyon, ultrafiltrasyon, adsorpsiyon, iyon değişirme, ters osmoz bu arıtmada tercih edilen yöntemlerdir.

*Dezenfeksiyon*, suda bulunan bakteri ve virüslerin arıtma tesisi çıkış suyunun alıcı ortama verilmesinden önce uzaklaştırılması işlemidir. *Azot giderme*, atık sudaki amonyum iyonları, azot bakterileri yardımıyla nitrifikasyon kademesinde önce nitrite sonra nitrate dönüştürülür. Daha sonra denitrifikasyon kademesinde anoksik şartlar altında azot gazı hâlinde sudan uzaklaştırılır. *Fosfor giderme*, fosfor bileşiklerini elimine etmek için kimyasal ve biyolojik teknikler ayrı ayrı veya birlikte kullanılır. Kimyasal arıtmada kimyasal maddeler kullanılarak yüksek pH değerinde fosfor, fosfat tuzları halinde çöktürülür. Biyolojik metotlarla fosfor arıtımı, biyolojik arıtma sırasında fosfatın mikroorganizmalarca alınması ile sağlanır.

*Filtrasyon*, biyolojik ve kimyasal arıtma işlemlerinde yeterince giderilemeyen, askıda katı maddelerin tutulması için uygulanan tekniktir. *İyon deęiřtirme*, endüstriyel atık su arıtımında kullanılan atık su içerisinde istenmeyen anyon ve katyonların uygun bir anyon ve katyon tipi iyon deęiřtirici kolonda tutulması işlemidir.

*Ters osmoz*, atık suyun yeniden kullanılabilmesini sağlamak amacıyla genellikle endüstriyel atık su arıtımında kullanılan çözünmüş anorganik ve organik maddelerin sudan uzaklaştırılması ya da geri kazanılması amacıyla yüksek basınç uygulayan sistemidir.

*Ultrafiltrasyon*, membranların kullanıldığı ters osmoz işlemine benzeyen basınçlı membran filtrasyonu tekniğidir. Bu teknikte yağ/su emülsiyonu içerisinde dağılan yağ damlacıkları, ince bir membran vasıtası ile filtre edilerek su fazından ayrılır. Ultrafiltrasyondan önce giderilmesi düşünülen emülsiyonun bir ön arıtma işleminden geçirilmesi yararlıdır. Bu işlem, emülsiyon kırma maddeleri vasıtasıyla gerçekleştirilir ve yağ su fazı ayrılır. *Adsorpsiyon*, suda çözünmüş giderilmesi istenen maddelerin, uygun bir ara yüzeyde toplanması işlemidir [29].

### ADSORPSİYON

Adsorpsiyon hareketli bir fazda bulunan atom, molekül veya iyonların katı bir yüzey üzerine tutunması olayı olarak açıklanmaktadır. Tutunan maddeler sıvı, gaz veya bir çözücü içerisinde çözünmüş katı halinde olabilir. Adsorpsiyon yöntemi ile giderim, koku, renk ve zehir kirliliği yaratan maddelerin uygun katı bir yüzeye fiziksel ya da kimyasal bağlar ile tutunmasıyla gerçekleşir. Yüzeye tutunan bileşenlere adsorbat, adsorpsiyonun gerçekleştiği katı yüzeye ise *adsorban* veya *substrat* denir. Adsorpsiyonun ters işlemi ise *desorpsiyondur* [30,31].

#### 4.1 Adsorpsiyon Çeşitleri

Adsorpsiyon işleminin gerçekleşebilmesi için adsorban yüzeyine transfer olan bileşenlerin, buldukları faz yerine adsorban yüzeyini tercih etmelerini sağlayacak ortam koşullarının sağlanması gerekmektedir; Van der Waals etkileşimlerinin olduğu fiziksel adsorpsiyon (fizisorpsiyon), adsorban yüzeyinde meydana gelen kompleks oluşumu, elektron transferi gibi mekanizmalarla gerçekleşen kimyasal adsorpsiyon (kemisorpsiyon) ve elektrostatik etkileşimlerin rol oynadığı iyon değişimi adsorpsiyonu bu şartları sağlayan mekanizmalardır.

Adsorpsiyon işlemi, genel olarak bu üç adsorpsiyonun türünün katılımıyla gerçekleşmektedir. Adsorpsiyon derecesinin ve miktarının artırılması için yüzey alanı geniş olan aktif karbon gibi malzemelerin kullanılması tercih edilmektedir [31].

#### 4.1.1 Fiziksel adsorpsiyon

Fiziksel adsorpsiyonda (fizisorpsiyon) adsorban ile adsorbat molekülleri arasında Van der Waals etkileşimi bulunmaktadır. Van der Waals etkileşimleri uzaktan etkili ancak zayıf etkileşimlerdir. Adsorbatın, adsorban yüzeyine zayıf olarak tutunması sebebiyle bu tür adsorpsiyonlar aynı zamanda tersinir özellik gösterirler. Fiziksel adsorpsiyon işleminin birden fazla katman halinde gerçekleşmesi, onu kimyasal adsorpsiyondan ayıran en önemli özelliğidir.

Fiziksel adsorpsiyon sırasında salınan enerji, yoğunlaşma entalpisi ile aynı mertebededir. Bu tarz küçük enerjiler, örgü titreşimleri halinde adsorplanabilirler ve termik hareketler halinde dağıtılırlar. Yüzey boyunca çarpıp zıplayan bir molekül, giderek enerjisini kaybedecek ve sonunda *tutunma* olarak tanımlanan işlemle yüzeye bağlanacaktır.

Fiziksel adsorpsiyon entalpisi, ısı sığası bilinen bir numunenin sıcaklığındaki artış ile ölçülebilmektedir. Genellikle bu değerler 20 kJ/mol civarındadır. Oldukça küçük olan bu entalpi değişimi, moleküller arasındaki bağı parçalamak için yetersizdir. Bu sebeple, fiziksel olarak adsorplanmış bir molekül yüzey tarafından biçimsel bir çarpıtılmaya maruz kalsa bile kendi kimliğini korumaktadır [32, 33].

#### 4.1.2 Kimyasal adsorpsiyon

Kimyasal adsorpsiyonda (kemisorpsiyon), moleküller veya atomlar aralarında bir kovalent bağ oluşumuyla adsorban yüzeyine tutunurlar. Bu tip adsorpsiyonlar, adsorban yüzeyi ile adsorbat arasında direk temas gerektiğinden tek katmanlı olarak tanımlanır. Kimyasal adsorpsiyon entalpisi fiziksel adsorpsiyon entalpisinden oldukça büyüktür ve genellikle 200 kJ/mol civarındadır [33]. Adsorban ile adsorbat arasındaki etkileşim fiziksel adsorpsiyondaki etkileşimden çok daha kuvvetlidir. Fiziksel adsorpsiyonun aksine, kimyasal adsorpsiyon mekanizmaları yüksek sıcaklıklarda daha fazla etkili olmaktadır [32].

#### **4.1.3 İyon deęiřimi adsorpsiyon**

Adsorban ile adsorbat arasında meydana gelen elektrostatik etkileřimler nedeniyle meydana gelen adsorpsiyon trdr. Adsorbat ile adsorban arasındaki yk farkı çoęaldıkça ve adsorbatın molekl apı kldkçe adsorpsiyon derecesi artmaktadır [34].

#### **4.1.4 Biyolojik adsorpsiyon (Biyosorpsiyon)**

Biyosorpsiyon iřlemi metal iyonlarının atık sulardan biyoktke tarafından uzaklařtırılmasıyla gerekleřtirilen bir iřlemdir. Atık sulardan metal iyonlarının gideriminde kullanılan, kimyasal ktrme, iyon deęiřimi, ters osmoz, aktif karbon adsorpsiyonu gibi ikincil arıtımları gerektiren geleneksel arıtma yntemleri, zellikle dřk metal iyonu konsantrasyonu ieren sularda dřk arıtma verimi gstermesi, yatırım ve iřletme maliyetlerinin pahalı olması ve beraberinde yeni kirletici maddelerin (atık amur vb.) oluřması gibi nedenlerden dolayı bu uygulamaları pratik ve ekonomik kılmamaktadır.

Gnmzde mikroorganizmaların adsorplama yeteneęinden faydalanarak yapılan metal iyonu giderimleri, kolay uygulanabilirlięi ve dřk maliyeti sebebiyle tercih sebebi olmakta bu yntem ile klasik arıtma yntemlerinin dezavantajları en aza indirilmektedir. Dřk konsantrasyon metal ieren ve yksek hacimli atık sularının iyileřtirilmesinde uygun bir yntem olan biyosorpsiyon iřlemi iin bakteri, yenge kabukları, fungus ve alg gibi biyomateryaller kullanılır [35].

## 4.2 Adsorpsiyona Etki Eden Faktörler

Adsorpsiyon prosesinde ortam koşulları ve kullanılan materyallerin uygunluğu, adsorpsiyon işleminin yüksek kapasitede gerçekleştirilmesi için önemlidir. Adsorbanın yüzey alanı, gözenek büyüklüğü, çözünürlüğü, molekül büyüklüğü, iyon yükü, çözeltinin pH değeri, ortam sıcaklığı, çözelti karışımları, yüzey gerilimi, başlangıç adsorban konsantrasyonu, temas süresi ve adsorbantın hidrofilik ya da hidrofobik olması ve gaz adsorpsiyonu sırasında ortam basıncı adsorpsiyon işlemini etkileyen faktörlerdir.

**Sıcaklık:** Sıcaklık adsorpsiyon prosesinde tipini karakterize eden önemli bir etkidir. Adsorpsiyon prosesi genel olarak ekzotermik davranış gösterdiğinden, sıcaklık artışından olumsuz etkilenmektedir [36]. Bunun yanı sıra, sıcaklık artışı ile adsorpsiyon derecesinin arttığını öne süren çalışmalarda literatürde mevcuttur [31].

**Ortamın pH değeri:** Adsorpsiyon prosesinde çeşitli iyonların farklı pH değerlerinde adsorplanma kapasiteleri yüksektir. Katyonik iyonların adsorplanması işleminde spesifik pH değerleri uygun olurken, anyonik iyonlar düşük pH'larda yüksek adsorplanma kapasitesi göstermektedir [31].

**Adsorbantın molekül büyüklüğü:** Molekül boyutu ile adsorpsiyon ters orantılıdır. Parçacık boyutu ne kadar küçük olursa adsorpsiyon işlemi o kadar hızlı gerçekleşmektedir.

**Adsorbanın yüzey alanı:** Adsorbanın birim ağırlığı başına adsorpladığı madde miktarı dikkate alındığında, yüzey alanı büyüklüğünün reaksiyonu olumlu etkilediği belirtilmiştir. Adsorbanın gözeneklerinin genişlemesiyle, adsorbantın adsorban yüzeye tutunma olasılığı artmakta, bu durum adsorpsiyon işleminin verimliliğini arttırmaktadır.

**Temas süresi:** Adsorbanın adsorplama işlemini en yüksek verimde gerçekleştirdiği zaman aralığı *denge süresini* ortaya çıkarmaktadır. Adsorban ile çözeltinin temas süresi önemlidir. Adsorban ile adsorbantın ilk temas anında adsorpsiyon hızı yüksek olup, ilerleyen sürelerde adsorpsiyon hızında azalma görülmektedir [36].

### 4.3 Adsorbanlar

Adsorpsiyon prosesinin verimliliğini arttırabilmek için en uygun adsorbanın seçilmesi gerekmektedir. Seçilen adsorbanda olması istenen özellikler, ortamdaki maddeyi en yüksek verimlilikle giderebilecek, kapasite, yüksek seçicilik ve uzun işleme ömrüne sahip olmasıdır. Adsorbanın adsorplama kapasitesi, aktif merkezin kimyasal özelliklerine, adsorbana ve adsorpsiyonun gerçekleştiği ortamın koşullarına bağlı olarak değişkenlik gösterir. İyi bir adsorbanda olması istenen temel özellik, birim kütle başına geniş yüzey alanına sahip olmasıdır.

Adsorpsiyon prosesinde çeşitli adsorbanlar kullanılmaktadır. Bunlar arasında geniş yüzey alanı ve yüksek adsorplama kapasitesi nedeniyle aktif karbon, dünyada atık su arıtımında en yaygın olarak kullanılan adsorbandır. Ancak yüksek maliyetli olması sebebiyle kullanım alanları sınırlı kalmakta, küçük ölçekli endüstriyel işletmelerde kullanılamamaktadır. Bu doğrultuda aktif karbona alternatif olabilecek doğal, tarımda ve endüstriyel atıklardan elde edilen adsorbanlar kullanılmaktadır. Bu adsorbanlar yüksek metal iyonu tutuklama kapasitesi ve düşük maliyetli olması nedeniyle günümüzde en çok tercih edilen adsorbanlar haline gelmiştir [37].

Ağır metal gideriminde bilinen ve uygulamalarına sık rastlanan adsorbanlar; aktif karbon, pirinç samanı, yosun, ağaç ve ağaç kabuğu, mısır koçanı, şeker kamışı posası, talaş, pirinç kabuğu, deniz ürünleri atık çamuru, zeytin küspesi, çam iğneleri, badem kabukları, kaktüs yaprakları, kömür ürünleri, uçucu kül, narenciye kabukları ve bitki turbası olarak yer almaktadır [4].

#### 4.3.1 Aktif karbon

Gözenekli yapısı sayesinde yüzey alanı  $2000 \text{ m}^2/\text{g}$  ve üstünde olan karbon zincirler aktif karbon olarak adlandırılmaktadır [38]. Toz, granüler, ipliksi veya kumaş olarak kullanılmak üzere, şekline ve boyutuna göre aktif karbon dört gruba ayrılmıştır. Elde edildiği kaynağa göre aktif karbon farklı aktiflik ve fizikokimyasal özellikler içerir.

Atık su artımında birçok alanda kullanılan aktif karbon çeşitlerinin her kullanım alanına göre avantajları ya da dezavantajları mevcuttur. 18. yy'dan itibaren sanayinin çeşitli dallarında kullanılan aktif karbon, gelişen teknoloji ve bilim ile beraber kullanım alanları ve çeşitleri artmıştır [32].

Günümüzde farklı malzemelerden oluşan düşük maliyetli ve kullanımı kolay birçok adsorbent, adsorpsiyon prosesleri için kullanılsa da pahalı bir materyal olan ticari aktif karbon yaygın olarak hala kullanılmaktadır. Endüstriyel faaliyetlerin çıkış sularının arıtımında, renk gidermede, solvent geri kazanımında, metal ve maden proseslerinde ve bir çok evsel uygulamalarda kullanılmaktadır [39].

#### **4.3.2 Kil**

Sedimenter kayaçların ve toprakların mekaniksel analizlerinde tane boyutunu tanımlayan bir terim olarak kullanılan *kil*, doğal bir adsorbandır. Kil kristal bir yapıya sahip, toprağımsı, su ilave edildiğinde plastikliği artan ince taneli bir malzemedir.

Kil mineralleri esas itibariyle alüminyum hidrosilikatlardır. Monmorillonit, kaolin ve mika olarak killer üç çeşittir [39]. Bazı minerallerde alüminyumun yerine tamamen veya kısmen Fe veya Mg geçmektedir. Alkali mineraller veya alkali metaller kil minerallerinin esas bileşenleri olarak bulunurlar. Bazı killer tek bir kil mineralinden oluşmaktadır. Ancak, genellikle birkaç mineralin karışımıdır [40]. Killerin yapısında, kil minerallerinin dışında ek olarak pirit, feldspat, kalsit ve kuvars gibi mineraller “kil olmayan malzeme” bulunmaktadır. Bunun yansıra birçok kil malzemeleri ve suda çözünebilen tuzları organik maddeleri içermektedir.

Kil tanelerinin çapı ortalama olarak 100 nm, kalınlığı ise sadece 1 nm değerindedir. Çok büyük bir yüzey alana sahip olan kil adsorpsiyon prosesi için önemli bir materyal haline gelmiştir. Doğada kolayca temin edilebilen ve bol miktarda bulunan kil mineralleri, aynı zamanda sentetik olarak üretilebilmekte ve ticari olarak pazarlanmaktadır. Kolayca modifiye edilebilmesinin yanı sıra, yüksek yüzey alanı ve yüksek katyon değişim kapasitesi gibi fizikokimyasal özelliklere sahip olan kil minerallerinin uygulanma alanları gün geçtikçe artmaktadır [41].

### 4.3.3 Zeolitler

Zeolitler alkali ve toprak alkali elementlerin kristal yapıya sahip, sulu alüminyum silikatları olarak tanımlanmaktadır. Zeolitleri en önemli kılan özellikleri, yapısında boşluklar ve kanallar bulundurmasıdır. Yapısındaki mevcut kanallarda su ile birlikte tek veya iki değerlikli katyonlar yer almaktadır. Katyonların zeolit yapısına zayıf bağlarla bağlı olması yüksek iyon değişimi kapasitesini ortaya koyar. Düşük kısmi basınçlarda bile bazı maddeler için yüksek adsorplama kapasitesi göstermesi, adsorplama kapasitelerinin diğer adsorbanlara göre sıcaklıkla daha az değişmesi ve yüksek sıcaklıklarda bile önemli adsorplama kapasitelerine sahip olması, zeolitin adsorban olarak en önemli özelliklerindedir.

### 4.3.4 Kitosan

Doğal bir polimer olan kitosanın hammaddesi kitin, selülozdan sonra doğada en çok bulunan bir adsorbentdir. Selülozun moleküler yapısı ile benzerlik göstermesine rağmen, kitosan kitinden daha önemlidir. Ağır metalleri adsorplamada etkin bir adsorbent olması sebebiyle, günümüzde ağır metal giderimi çalışmalarında kullanımı hızla artmaktadır.

Kitinin alkali N-deasetilasyonu ile üretilen kitosan, kabuklu deniz ürünlerinin yapısında bulunur. Aktif karbon ve sentetik reçine gibi kullanılan adsorbentlerin yüksek maliyetli olması beraberinde etkin ve düşük maliyetli adsorbentlere duyulan ihtiyacı arttırmış, kitosani atık su arıtımı için kullanılması tercih edilen malzemelerden biri haline getirmiştir [44].

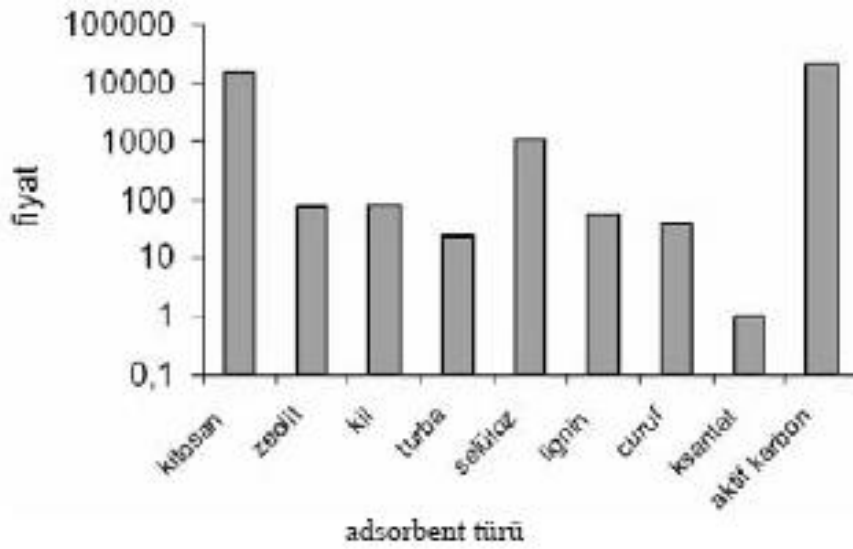
### 4.3.5 Çürümüş bitki turbası

Turba oluşumu kömürleşmenin ilk adımıdır. Katı karbonlu yakıtların en düşük derecelilerinden biri olan bitki turbası, temel olarak lignin ve selülozdan oluşan kompleks bir malzemedir. Geniş yüzey alanı ( $>200 \text{ m}^2/\text{g}$ ) ve gözenekli yapısı ile ağır metal gideriminde kullanılabilirliği uygun, düşük maliyetli alternatif bir adsorbentdir [44]. Kutupsal karakterinin yüksek olması sebebiyle bitki turbasının, kutupsal organik moleküller ve metaller gibi çözünmüş katıları adsorplama potansiyeli oldukça yüksektir.

Ötrofik ve oligotrofik türleri olan bataklık turbasının, bakır, kadmiyum, çinko ve nikel gibi metalleri içeren endüstriyel atık suların artımında etkili olduğu görülmüştür [45].

#### 4.3.6 Endüstriyel atıklar

Endüstriyel faaliyetler sonucunda ortaya çıkan çeşitli atıklar, adsorbent olarak kullanılabilme özelliğine sahiptirler. Bu adsorbentlerin en dikkat çeken avantajları, düşük maliyetli olmalarıdır. Şekil 4.1’de endüstriyel atık olarak nitelendirilen adsorbentlerin diğer adsorbentlerle maliyetlerinin karşılaştırılması verilmiştir.



Şekil 4.1 Atık su arıtımında kullanılan adsorbentlerin pazar fiyatları (ABD \$/ton) [44]

*Uçucu küller*, termik santrallerin katı atığı olup, özellikle bakır iyonu gibi ağır metallerin gideriminin etkin ve düşük maliyetli adsorbanlarından biridir. Bakır iyonu giderimi için Panday vd. (1985) [46] yaptığı çalışmada, pH 8’de 1.39 mg/g adsorpsiyon kapasitesi olarak tespit edilmiştir. Sıcaklık artışı ile adsorpsiyon kapasitesinin arttığı gözlemlenmiştir.

*Lignin*, kağıt endüstrisi atık suyundan ekstraksiyon işlemi ile elde edilmektedir. Srivastava vd. (1994) [47] lignin ile  $Pb^{+2}$  ve  $Zn^{+2}$  giderimi üzerine yaptıkları çalışmada ligninin maximum adsorpsiyon kapasitesini 30°C'de  $Pb^{+2}$  ve  $Zn^{+2}$  için sırayla 7.66 ve 1.12 mg/g, 40°C'de ise  $Pb^{+2}$  ve  $Zn^{+2}$  için sırayla 9.00 ve 1.45 olarak tespit etmişlerdir. Elde edilen bu sonuçlar, ligninin yüksek sıcaklıkta, yüksek adsorpsiyon kapasitesine sahip olduğunu ve adsorpsiyon işleminin endotermik bir işlem olduğunu göstermiştir.

*Atık çamur*, gübre sanayisinden kaynaklanan etkin adsorplama özelliğine sahip bir yan üründür. Srivastava vd. (1989) [48] tarafından yapılan bir çalışmada, deniz ürünlerinin üretiminden meydana gelen atık çamur ile sulu çözeltilerden kadmiyum, nikel, kobalt ve çinko giderildiği gözlemlenmiştir.

*Ocak cürufu*, ağır metal gideriminde etkili olan ucuz adsorbentlerden biridir. Çelik üretiminin yan ürünüdür. Dimitrova (1996) [49] tarafından  $Cu^{+2}$ ,  $Ni^{+2}$  ve  $Zn^{+2}$  giderimi üzerine ocak cürufu kullanılarak çalışılmıştır.

*Talaş*, marangoz atölyelerinden elde edilen bir üründür. Ajmal vd. (1998) [50] tarafından talaşın, bakır giderimindeki etkinliği araştırılmıştır. Talaşın adsorpsiyon kapasitesi 13.80 mg  $Cu^{+2}$ /g olarak bulunmuştur.

#### **4.3.7 Tarımsal atıklar**

Ağır metal adsorpsiyonu işleminde tarımsal atıklar direk olarak kullanılabilirliği gibi, bu atıkların modifiye edilmesi ile elde edilen aktif karbonlarda kullanılmaktadır. Metal giderimi için en çok kullanılan tarımsal atıklar, pirinç-saman kabukları, mısır koçanı, şeker kamışı posası, deniz ürünleri, zeytin küspesi, badem kabukları, hindistan cevizi ve narenciye kabukları ve birçok bitkinin yaprak ve sapsarı, hayvancılık faaliyetleri sonucu ortaya çıkan hayvan kemikleri, deniz ürünlerinden avlanma sonucu elde edilen kılçık ve kabuklar, gıda sanayinden atılan yumurta kabukları yer almaktadır [4,51]. İşlem kolaylığı, düşük maliyetli ve etkin adsorpsiyon kapasiteleri sebebiyle, tarımsal atıklar adsorpsiyon işleminde aktif karbona alternatif ürünlerdir.

#### 4.3.8 Tarımsal atıkların biyoadsorbent olarak kullanımı

**Muz kabuğu**, dünyada bolca bulunan ve çok tüketilen muz meyvesinden kalan atıktır. Tarımsal atıkların, biyosorbent olarak ağır metal adsorpsiyon potansiyelinin araştırılması son yıllarda hız kazanmış bir konudur. Yapılan araştırmalar, bakır, kobalt, nikel ve kurşun gibi ağır metallerin adsorpsiyonunda muz kabuğu kullanımının etkin bir biyosorbent olduğunu göstermiştir. Hossain vd. (2012) [4] tarafından muz kabuğu ile  $\text{Cu}^{+2}$  gideriminin araştırıldığı bir çalışmada, muz kabuğunun 28 mg  $\text{Cu}^{+2}$ /g bakır adsorpladığı tespit edilmiştir. Annadurai vd. (2002) [52] tarafından gerçekleştirilen bir sulu çözeltilerden  $\text{Cu}^{2+}$ ,  $\text{Zn}^{2+}$ ,  $\text{Co}^{2+}$ ,  $\text{Ni}^{2+}$ ,  $\text{Pb}^{2+}$  ve  $\text{Ni}^{2+}$  giderimi için muz kabuğunun adsorpsiyon potansiyelinin araştırıldığı çalışmada ise, pH 5.5'da muz kabuğunun adsorpsiyon kapasitesi 7.97 ( $\text{Pb}^{2+}$ ), 6.88 ( $\text{Ni}^{2+}$ ), 5.80 ( $\text{Zn}^{2+}$ ), 4.75 ( $\text{Cu}^{2+}$ ), and 2.55 mg/g ( $\text{Co}^{2+}$ ) olarak bulunmuştur. Elde edilen sonuçlar, muz kabuğunun geniş yüzeyi ve porlu yapısı sayesinde, ağır metal giderimi için alternatif bir biosorbent olarak kullanabileceğini göstermektedir.

**Limon kabuğu**, yapısında yüksek oranda selüloz, hemi-selüloz ve lignin bulunan kompleks bir materyaldir. Ege ve Akdeniz bölgelerinde bolca yetişen ve yıl boyunca büyümeyi sürdüren limon ağacından elde edilir [6]. Ekonomik bir biyosorbent olan limon kabuğu ile Bhatnagar vd. (1999) [98] tarafından sulu çözeltilerden kobalt giderimi incelenmiştir. Arslanoğlu vd. (2010) [99] tarafından gerçekleştirilen başka bir çalışmada ise,  $\text{Cu}^{+2}$ ,  $\text{Cr}^{+3}$ ,  $\text{Ni}^{+2}$ ,  $\text{Pb}^{+2}$  ve  $\text{Zn}^{+2}$  metallerinin limon kabuğu ile sulu çözeltilerden giderimi gözlemlenmiştir. Topal vd.'nin (2011) [6] biyosorbent olarak limon kabuğu kullanımıyla bakır giderimi için yapılan bir çalışmada, limon kabuğunun  $\text{Cu}^{+2}$  adsorplama kapasitesi 1111.1 mg/g olarak bulunmuştur. Bhatnagar vd.'nin (2010) [53] limon kabuğunun kobalt üzerindeki adsorpsiyon kapasitesini gözlemlendiği bir çalışmada ise 22 mg/g giderim gerçekleştirildiği tespit edilmiştir.

**Susam küspesi**, susam tropik veya yarı tropik alanlarda yetişen, yapısında %50 oranında yağ, %20 oranında protein içeren dünyanın en önemli yağ mahsullerindedir. Bunun yanı sıra unlu mamüller ve pastane ürünlerinde de ihtiyaç duyulan bir üründür. Ayrıca doğu ülkelerinde sağlığa yararlı bir besin olarak da kullanılmaktadır. Yağ ekstraksiyonu endüstrisinde kullanılan susam küspesi yapısında yüksek protein içerdiğinden küçükbaş hayvanlarda yem olarak kullanılmaktadır [54].

**Aspir küspesi**, yağlı bir bitki olan aspirin yağı alındıktan sonra geriye kalan üründür. Aspir küspesi proteince zengin olması bakımından hayvancılıkta yem olarak kullanılmakta, bunun dışında elde edilen yağ yemeklik olarak kullanılabilir. Aspir bitkisinin çiçeklerinden elde edilen boyalar kumaş boyamada kullanılırken, linoik asitçe zengin olmasından dolayı boya sanayide de bu bitkiden faydalanılmaktadır. Bunun yanı sıra, aspir bitkisi tıbbi alanda, kadınların regl dönemlerinde, kalp-damar rahatsızlıklarında ve travma sonucu meydana gelen şişliklerin ve ağrıların tedavisinde başarılı bir şekilde kullanıldığı, yapılan klinik çalışmalarda, yüksek tansiyonu düşürdüğü, damarlardaki kan akışını arttırarak dokuların daha fazla oksijen almalarını sağladığı kanıtlanmıştır. Aspir küspesi, son dönemlerde yapılan bir çalışmada adsorbent olarak kullanılmış ve sulu çözeltilerden reaktif boya uzaklaştırma işleminde kullanılabilirliği etkinliği araştırılmıştır. Angın vd. (2013) [55] tarafından yapılan bir çalışmada, aktifleştirilmiş aspir küspesinin sulu çözeltilerden boya gideriminde ticari karbon yerine alternatif ve ucuz bir adsorbent olarak kullanılabileceği belirtilmiştir.

#### 4.4 Adsorpsiyon İzotermi

Adsorpsiyon izotermi, sabit bir sıcaklıkta adsorpsiyon yüzeyindeki ve adsorbatın yığın fazdaki konsantrasyonu arasındaki ilişkiyi açıklayan denge eğrisidir. Eğer hareketli faz gaz halinde ise, bu durumda fazın konsantrasyonunun yerini basınç alır.

Adsorpsiyon izotermi oluşturabilmek için farklı miktarda adsorban içeren adsorbat çözeltileri ile sabit sıcaklıkta adsorpsiyon deneyleri gerçekleştirilir. Denge hareketli fazdaki adsorbat konsantrasyonuna karşı adsorban üzerine tutuklanmış adsorbat konsantrasyonunun grafiği çizilir. En çok tercih edilen izoterm modelleri, Langmuir, Freundlich, Temkin ve BET izoterm modelleridir.

##### 4.4.1 Langmuir adsorpsiyon izotermi

Langmuir izotermi adsorbanın tek tabakalı molekül adsorplama gerçekleştireceği kabul edilmiştir [56]. Langmuir izotermi açıklanırken bazı kabuller yapılmıştır. Yapılan kabuller aşağıda verilmiştir.

- Materyalin tüm yüzeyi aynı adsorpsiyon aktivitesine sahiptir ve enerji açısından ünitardır.
- Adsorbe edilen moleküller arasında hiçbir bir etkileşim yoktur.
- Bütün adsorpsiyon işlemi aynı mekanizma ile gerçekleşir ve her adsorbe edilen kompleksin aynı yapıya sahip olduğu kabul edilir.
- Adsorpsiyonun derecesi, yüzey üzerindeki tam bir mono moleküler tabakadan büyük olamaz.

Yapılan bu kabullerin paralelinde Langmuir izotermi için Eşitlik 4.1 ortaya konmuştur.

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{K_L} + \frac{a_L}{K_L} * C_e \quad (4.1)$$

Eşitlik (4.1)'de;

$C_e$ : Adsorpsiyon işlemi tamamlandıktan sonra dengede çözeltide kalan madde konsantrasyonu (mg/L)

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

$a_L$ : Langmuir izotermi sabiti (adsorpsiyon enerjisine bağlı) (L/mg)

$K_L$ : Langmuir izotermi sabiti (adsorbanın adsorptivitesine bağlı) (L/mg)

olarak ifade edilmektedir.

Langmuir izotermi grafiği  $C_e/q_e$  ye karşı  $C_e$  grafiği çizilerek elde edilir. Eğimi ( $a_L/K_L$ ) ve Kayma noktası (y eksenini kesme noktası), ( $1/K_L$ ) olan bir doğru elde edilir. Şekil 4.2'de Langmuir izotermi grafiği verilmiştir [57].

$a_L/K_L$  oranı, teorik doygunluk kapasitesini göstermektedir. Tek tabakalı adsorpsiyonun gerçekleştiği heterojen adsorpsiyon sistemlerinde Langmuir izotermi denge durumunu tam anlamıyla açıklayamaz. Adsorpsiyonun elverişliliğini bulmak için  $R_L$  boyutsuz (dağılma) sabiti hesaplanır. Bu değer 0 ile 1 arasında değer alması durumunda, izotermin elverişliliğine işaret etmektedir. Eşitlik (4.2)'de bu bağıntı için oluşturulan denklem ve Çizelge 4.1'de elverişlilik prensibi ve dağılma sabiti arasındaki bağıntı gösterilmektedir [1].

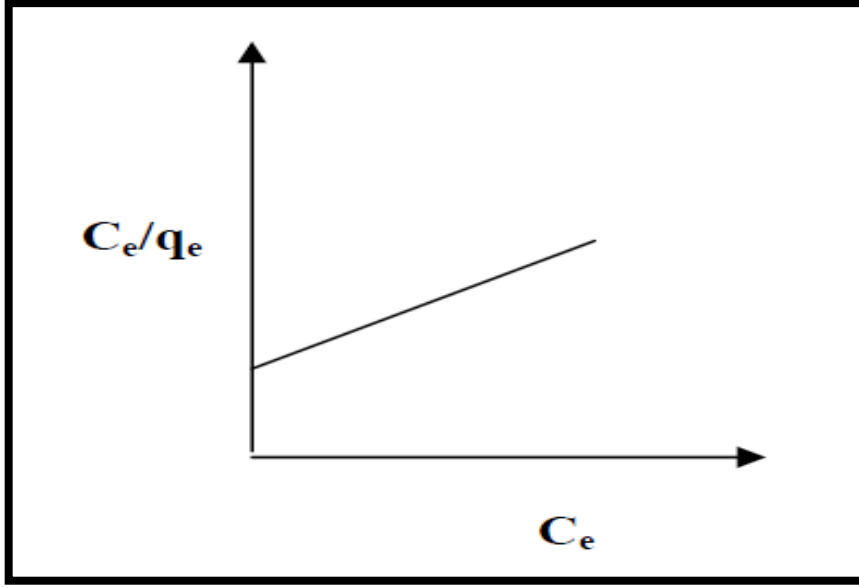
$$R_L = \frac{1}{1+a_L*C_0} \quad (4.2)$$

Burada;

$a_L$ : Langmuir sabiti (L/mg)

$C_0$ : Maddenin çözeltideki başlangıç konsantrasyonu (mg/L)

olarak ifade edilmektedir.



Şekil 4.2 Langmuir izoterm grafiği [57]

Çizelge 4.1 İzoterm tipine göre dağılma sabit değerleri ve elverişlilik ilkesi [1]

İzoterm Tipi	Dağılma Sabit Değerleri
Elverişli olmayan	$R_L > 1$
Lineer	$R_L = 1$
Elverişli	$0 < R_L < 1$
Tersinmez	$R_L = 0$

#### 4.4.2 Freundlich adsorpsiyon izotermi

Freundlich izoterm modeline göre adsorban yüzeyinde farklı türde adsorpsiyon noktaları bulunur ve bu noktalar homojen olarak dağılmamışlardır. Adsorpsiyonun tek tabaka halinde gerçekleşmediği varsayılır. Eşitlik 4.3 bu prensibe göre türetilmiştir [56].

$$q_e = KC_e^{1/n} \quad (4.3)$$

Eşitlik (4.3)'de;

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

$C_e$  : Adsorpsiyon işlemi tamamlandıktan sonra dengede çözeltide kalan madde konsantrasyonu (mg/L)

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

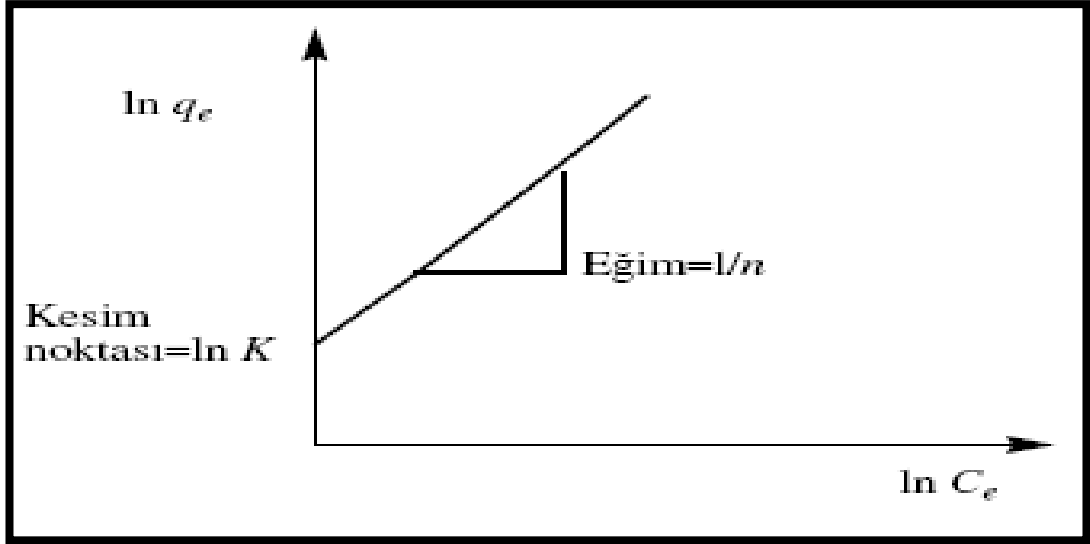
$n$ : Freundlich sabitini (adsorpsiyon yoğunluğunu verir)

ifade etmektedir.

Eşitlik (4.3) lineerleştirildiğinde, eşitlik (4.4) elde edilir.

$$\ln q_e = \ln K_F + (1/n) \ln C_e \quad (4.4)$$

Eşitlik (4.3)'den yararlanılarak  $\ln C_e$ 'ye karşı  $\ln q_e$  grafiği çizildiğinde Şekil 4.3'deki gibi eğimi  $1/n$  ve ordinatı kesim noktası ise  $\ln K_F$  olan bir grafik elde edilir. Böylece, Freundlich izoterm sabitleri  $K_F$  ve  $n$  hesaplanabilir.



Şekil 4.3 Freundlich izoterm grafiği [58]

#### 4.4.3 Temkin adsorpsiyon izotermi

İlk olarak asidik çözeltilerde hidrojenin platin üzerine adsorpsiyonunu modellemek amacıyla ortaya atılan Temkin izoterm modeli diğer modellerden ayrı olarak adsorpsiyon ısısını da modelin içerisinde dikkate almıştır. Bu sebepten dolayı, adsorpsiyon işlemi boyunca, adsorbanın yüzeyi adsorbat molekülleriyle kaplandıkça adsorpsiyon ısısının düşmesi beklenmektedir. Temkin izoterm modeline ait Eşitlik (4.5)'de verilmiştir.  $q_e$ 'nin  $\ln C_e$ 'ye karşı grafiğinin çizilmesiyle A ve b sabitleri belirlenmektedir [59].

$$q_e = RT / b \ln(AC_e) \quad (4.5)$$

Eşitlik (4.5)'de,

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

$C_e$  : Adsorpsiyon işlemi tamamlandıktan sonra dengede çözeltide kalan madde konsantrasyonu (mg/L)

R: ideal gaz sabitini ( $8.314 \text{ J K}^{-1}\text{mol}^{-1}$ )

T: sıcaklığı (K)

b: Temkin sabitini (adsorpsiyon ısısına bağlı) (J/mol)

A: Temkin izoterm sabitini (L/g)

ifade etmektedir.

Temkin izoterminin doğrusal hale getirilmiş şekli ise Eşitlik (4.6)'da verilmiştir.

$$q_e = RT / b \ln A + RT / b \ln C_e \quad (4.6)$$

#### 4.4.4 BET izotermi

Brauner, Emmet ve Teller tarafında geliştirilmiş BET izoterm modelinde çok tabakalı adsorpsiyonun gerçekleştiği kabul edilmektedir. İlk adsorplanan tabakada farklı moleküller tabaka oluşurken, oluşan her bir tabaka Langmuir modelinde oluşan tek tabaka olarak düşünülmektedir. BET izotermi için yapılan bazı varsayımlar aşağıda verilmiştir. Bu varsayımlar göz önünde tutularak BET izotermi için Eşitlik (4.7) oluşturulmuştur [60].

- Adsorbanın yüzeyi monomoleküller bir tabaka tarafından kaplanamadan önce multimoleküler tabaka oluşur.
- Adsorpsiyon dengeye ulaştığında tabakalardan her biri için denge hali gerçekleşir.
- Gazın sıvılaşmasındaki kuvvetler ile bağ enerjisinden sorumlu kuvvetler, birinci tabaka dışında birbirinin aynısıdır.

$$C_e/q_e(1-C_e)=1/q_{\max}K_B+(K_B-1)C_e/q_{\max}K_B \quad (4.7)$$

Eşitlik (4.7)'de,

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

$C_e$  : Adsorpsiyon işlemi tamamlandıktan sonra dengede çözeltide kalan madde konsantrasyonu (mg/L)

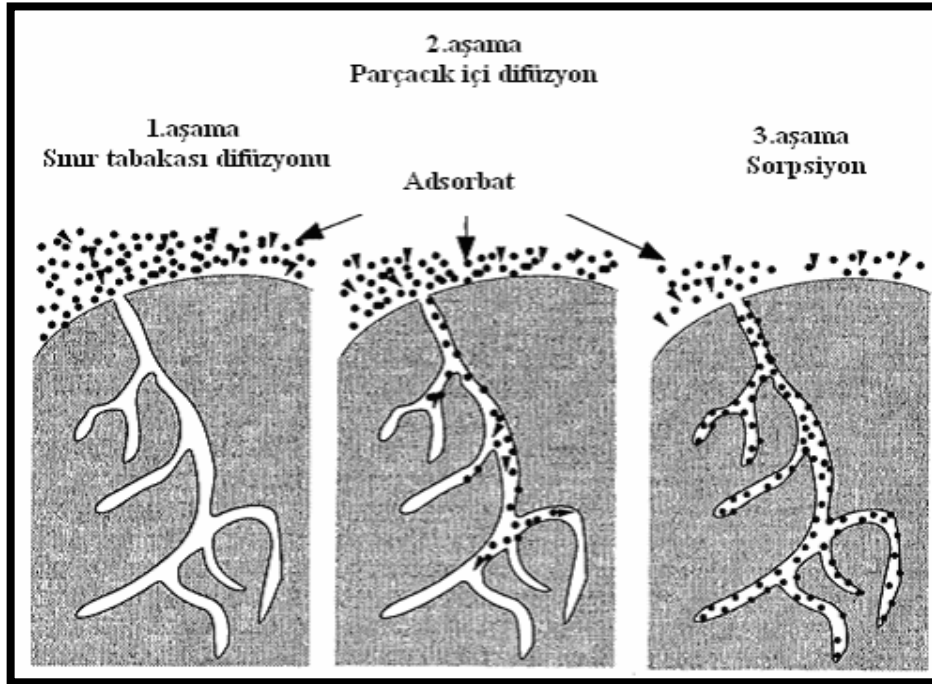
$K_B$ : BET izoterm sabitini (L/mol)

ifade etmektedir.

#### 4.5 Adsorpsiyon Kinetiđi

Adsorpsiyon kinetiđi, adsorbent ile adsorbat arasındaki zaman iliřkisini inceler ve adsorban-adsorbat temas sũresini belirler. Adsorpsiyon prosesinin basamaklarının daha iyi anlařılması iin adsorpsiyon kinetiđinin incelenmesi gerekmektedir. Adsorpsiyon prosesinin gerekleřmesi 4 temel basamaktan oluřmaktadır [61]. Bu basamakları kapsayan adsorpsiyon mekanizması Őekil 4.4’de verilmiřtir.

1. Adsorbat, adsorbenti kapsayan bir film tabakası sınırına dođru difũze olur. Adsorpsiyon prosesi esnasında belirli bir hızla karıřtırma iřlemi yapıldıđından dolayı bu ařama gũz nũnde bulundurulmaz.
2. Sınır tabakası difũzyonu: Film tabakasına gelen adsorbat, durgun kısımdan ilerleyerek adsorbentin por yapısına dođru transfer olur.
3. Paracık ii difũzyon: Bu basamakda adsorbat adsorbanın gũzenek bořluklarında hareket ederek tutunacađı yũzeyeye transfer olur.
4. Sorpsiyon: Bu basamakta da adsorbat adsorbentin gũzenek yũzeyeye tutunur.



Őekil 4.4 Adsorpsiyon mekanizması [61]

Adsorpsiyon boyunca birim adsorbanın adsorpladığı adsorbat miktarı belli bir noktaya kadar artar. Bu noktadan sonra çözeltide kalan adsorbat derişimi deęişmez. Denge konsantrasyonu olarak tanımlanan bu noktanın tespiti ile adsorpsiyon işleminin için gerekli olan etkin alıkoyma-temas süresi hesaplanır [62]. Adsorpsiyon kinetiğinin modellenmesi amacıyla birçok eşitlik ortaya konmuştur. Bunlardan en yaygın olanları aşağıda verilmiştir.

#### 4.5.1 Yalancı 1. Derece Kinetik modeli

Lagergren tarafından ortaya konan adsorpsiyon denkleminin birinci Derece denklemi olduğu düşünölen reaksiyonlarda kullanılan kinetik modelidir. Yalancı birinci-Derece adsorpsiyon kinetiği denklemindeki  $t$ 'ye karşı  $\log(q_e - q_t)$  grafięi çizilir [63]. İlgili denklem Eşitlik (4.8)'de verilmiştir.

$$\log\left(\frac{q_e}{q_e - q_t}\right) = \left(\frac{k_1}{2.303} * t\right) \quad (4.8)$$

Eşitlik (4.8)'de

$q_t$ : farklı  $t$  zamanlarında adsorplanan madde miktarını (mg/g)

$q_e$ : denge anında birim aęırlığı başına adsorpladığı madde miktarlarını (mg/g)

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

ifade etmektedir.

#### 4.5.2 Yalancı 2. Derece Kinetik modeli

1995 yılında Ho tarafından ortaya konan yalancı ikinci Derece hız denklemi hızın adsorbat konsantrasyonundan baęımsız olduğunu, buna karşın katı fazdaki adsorpsiyon kapasitesine ve zaman baęlı olduğunu göstermiştir. İlgili denklem Eşitlik (4.9)'da verilmiştir. Denklemindeki  $t$ 'ye karşı  $t/q_t$  grafięi çizildiğinde, eęimi  $\frac{1}{q_2}$  ve ordinatı kesim

noktası  $\frac{1}{k_2 q_2^2}$  olan bir doğru elde edilmektedir [64].

$$\frac{t}{q_t} = \left( \frac{1}{k_2 q_2^2} \right) + \frac{1}{q_2} t \quad (4.9)$$

Eşitlik (4.9)'da,

$q_t$ : farklı  $t$  zamanlarında adsorplanan madde miktarını (mg/g)

$q_e$ : denge anında birim ağırlığı başına adsorpladığı madde miktarlarını (mg/g)

$k_2$ : yalancı-ikinci-Derece hız sabitini ( $\text{g mol}^{-1} \text{dak}^{-1}$ )

ifade etmektedir.

### 4.5.3 Elovich Kinetik modeli

Adsorpsiyon prosesinde yüzeyin heterojen olduğu durumları daha iyi açıklamak için Elovich Modeli ortaya konmuştur. Model denklem, Eşitlik (4.10)'da verilmiştir.

$$\frac{dq_t}{dt} = \alpha e^{-\beta q_t} \quad (4.10)$$

Eşitlik (4.10) lineerleştirildiğinde Eşitlik (4.11) elde edilir. Bu eşitlik kullanılarak  $q_t$ 'ye karşılık  $t^{0.5}$  grafiği çizildiğinde eğimden  $k_i$  ve kesim noktasından  $C_i$  değerleri hesaplanır.

$$q_t = \frac{1}{\beta} \ln(\alpha\beta) + \frac{1}{\beta} \ln t \quad (4.11)$$

Eşitlik (4.11)'de;

$q_t$ : farklı  $t$  zamanlarında adsorplanan madde miktarını (mg/g)

$\alpha$ : Başlangıçtaki adsorpsiyon hızını ( $\text{mg g}^{-1} \text{dak}$ )

$\beta$ : Yüzey kaplama derecesi ve adsorpsiyon aktivasyon enerjisi ile ilgili sabitini ( $\text{g mg}^{-1}$ )

ifade etmektedir.

Lineer haldeki Eşitlik (4.11) kullanılarak, hesaplanan  $q_t$  değerlerine karşı  $\ln t$  grafiği çizilerek, elde edilen grafiğin eğiminden  $(1/\beta) \cdot \ln \alpha\beta$  ve kesim noktasından  $1/\beta$  değerleri kullanılarak parametreler hesaplanır.

#### 4.5.4 Partikül İçi Difüzyon Kinetik modeli

Partikül içi difüzyon kinetik modeli iyi karışmalı sistemlerde adsorbatın yığın fazdan gözenekli adsorban yüzeyine adsorpsiyonunu modellemek amacıyla ortaya konmuştur. Eşitlik (4.11)'de partikül içi difüzyon modelini ifade eden eşitlik verilmiştir [65; 66].

$$q_t = k_i t^{0.5} + C_i \quad (4.11)$$

Eşitlik (4.11)'de;

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

$k_i$ : partikül içi difüzyon hız sabitini ( $\text{mg g}^{-1} \text{dak}^{-2}$ )

$C_i$ : adsorban ile adsorbat arasında oluşan tabakanın kalınlığı hakkında bilgi veren sabiti ( $\text{mg g}^{-1}$ )

ifade etmektedir.

Denklemden  $q_t$ 'ye karşı  $t^{0.5}$  grafiği çizildiğinde, grafiğin eğiminden  $k_i$  ve kesim noktasından  $C_i$  değerleri hesaplanır.

### DENEYSEL TASARIM

#### 5.1 Deney ve Deneysel Hatanın Önemi

Deneysel çalışmalar, incelenen sistemler hakkında güvenilir ve doğru bilgiler vermeleri açısından mevcut sayısal ve analitik yöntemlere göre her zaman tercih sebebi olmuştur. Ancak, günümüzde düşük maliyet ve kolay uygulanabilirliği nedeniyle sayısal çalışmalar ağırlık kazanmıştır. Bu yöntemlerin deneysel çalışmalar tarafından desteklenmesi ile sonuçların kolay test edilebilme imkanı doğmuştur. [67].

Deneysel çalışmalarda ölçülen değerlerin doğruluğu en az elde edilen sonuçlar kadar önemlidir. Doğruluğu etkileyen en önemli etken ise deneyler sırasında meydana gelebilecek hatalardır. Analiz sonucunun gerçek değere olan yakınlığını gösteren hata (doğruluk) terimi, ölçümlerin aritmetik ortalamasının gerçek değere yakınlığı olarak tanımlanır. Yapılan ölçümlerin birbirine ne derece yakın olduğunu gösteren sapma (duyarlılık) terimi ise aynı değeri yeniden elde etme becerisi olarak ifade edilmektedir. Çalışmalar sonucunda elde edilen sonuçların güvenilirliği, bazı metotlarla test edilebilir. Güvenilir bir deney sonucu elde edebilmek için deneylerin en az 3'er defa tekrarlanması gerekir.

Standart sapma duyarlılığın ölçümü için en çok kullanılan yöntemlerden biridir. Her bir ölçümün mutlak sapmalarının kareleri toplamının ölçüm sayısının bir eksiğine bölümünün kareköküne eşit olan standart sapma  $\sigma$  ile gösterilir (Eşitlik 5.1) [68].

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum(X_i - \bar{X})^2}{n-1}} \quad (5.1)$$

Standart sapmanın hesaplanması ile deney sonucunun doğruluğu hakkında bir fikir edinilebilir. Ancak, bulunan ortalama değerin gerçek değere yakınlığı hakkında kesin bir yorum yapılamaz. Bu noktada, elde edilen sonucun doğruluğu hakkında deneysel ve matematiksel tahmin yoluyla yorumda bulunabilir. Matematiksel tahmin yönteminde, gerçek değerin ortalama değere yakın bir aralıkta olduğu varsayımı yapılmaktadır. Ortalama değere yakın olan bu aralık, *güven aralığı* olarak tanımlanır. Gerçek değerin yüzde olarak bu aralıkta olma olasılığına ise *güvenirlilik seviyesi* olarak açıklanmaktadır [69]. Mevcut olan istatistiksel programlarda sonuçların en az %95 güvenirlilik seviyesinde olması ve değerlendirilmesi istenmektedir.

## 5.2 Deneysel Tasarımın Tarihçesi

Deneysel tasarım, 1920'lerde, istatistik biliminin babası sayılan İngiliz istatistikçi Sir Ronald Fisher tarafından, tarım alanında araştırma yaparken bulunmuş ve geliştirilmiştir. Bunun yanı sıra Fisher, deney verilerinin analizi için bugün geleneksel bir metot haline gelen "varyans analizi" (ANOVA) yöntemini de geliştirmiştir. Kısa bir zaman içerisinde metot, Amerika'da tarım sektöründe üretimin geliştirilmesi için uygulanmış ve Amerika'nın bu alanda gelişmesine büyük katkıda bulunmuştur. Deneysel tasarım, tarım alanında, çeşitli gübre ve dozları ile iklim koşullarının ve sulama düzeylerinin çeşitli ürünlere olan etkilerini belirlemek üzere uygulanmıştır.

Deneysel tasarım, kimya ve ilaç sektörlerinde de uygulanmış ancak, imalat sektöründeki faaliyetleri 1970'lere kadar kısıtlı kalmıştır. 1980'lerin başında, Amerika'da imalat sektörü, Japon kalitesinin nedenlerinin deneysel tasarım ile ilişkili olduğunu farketmiştir. Japonya'da profesör Genichi Taguchi'nin önderliğinde etkili olarak uygulanan deneysel tasarım üretimdeki faaliyetlerde yenilikler yapmış ve başarılı uygulamalarla yöntemin imalat sektöründe kabul görmesini sağlamıştır.

### 5.3 Deneysel Tasarımın Gelişimi ve Amacı

Deneysel çalışmalar, her seferinde bir proses parametresinin değiştirilerek diğer bağımsız parametrelerin sabit tutulması prensibiyle yürütülmektedir. Böylece değiştirilen parametrenin sistemi nasıl etkilediği gözlemlenir [70]. Fakat bu yöntem ile bütün değişkenlerin sabit tutulması çoğu kez mümkün olmamaktadır. Beraber değişen ya da birbiriyle etkileşim içinde bulunan değişkenlerin etkileri hesaplamak mümkün olmamaktadır. Ölçme değişkenliği varlığında deney hatasını ölçmek hatalı sonuçlar verir.

Deneysel tasarım yöntemlerinde ise, eş zamanlı olarak bir ya da daha çok proses parametresi değiştirilerek bir ya da daha çok cevap değişkeni üzerindeki etkisi gözlemlenebilir ve deneysel hata oranı tespit edilerek güvenilirlik seviyesi hakkında fikir edinilebilir [71].

Endüstriyel faaliyetler çerçevesinde amaç, tasarlanan bir sistemin ya da ürünün performansının maksimum olmasıdır. Bu sebeple, maksimum performansı sağlayacak koşullar belirlenirken, aynı zamanda performansı etkileyebilecek bütün etkenler göz önünde bulundurulur. Ancak, sistemi etkileyen bütün faktörlerin, bu faktörlerin oluşabilecek bütün seviyelerinin ve hepsinin birbirleriyle olan etkileşimlerinin tüm kombinasyonlarının etkisini belirlemek ve incelemek, uzun zaman ve yüksek maliyetli yatırımlar gerektirdiğinden dolayı zahmetli ve zordur. Ayrıca, eşzamanlı olarak birden fazla cevap yüzeyinin meydana gelmesi, istenilen tek cevap için gerçekleştirilen deneysel analizin optimum koşullara ulaşamamasına ya da elde edilecek diğer cevaplar için uygun olmamasına sebep verir [72].

Deneysel kaynakları en verimli şekilde kullanarak, kontrol edilebilen ve edilemeyen faktörlerin aralarındaki ilişkiyi istatistiksel yöntemlerin kullanılmasıyla belirsizlik ve hata payını en az seviyeye indirgeyen teknik, *deneysel tasarım* adını almaktadır. Deneysel tasarım, bilim ve araştırmanın vazgeçilmez bir unsuru olarak, incelenen prosesin en iyi biçimde anlaşılmasına böylece zaman tasarrufu ve maliyet azalmasının yanı sıra ürün kalitesinin artmasına imkan sağlamaktadır [71].

Mühendislik tasarımlarının uygulamalarında deneysel tasarım yöntemleri önemlidir. Mühendislikte deneysel tasarım uygulanmasının amaçlarından bazıları;

- Temel tasarım düzenlerinin incelenmesi ve değerlendirilmesi,
- Alternatif olabilecek materyallerin değerlendirilmesi,
- Deney koşullarında oluşabilecek herhangi bir değişiklik altında dahi prosesin gerçekleşmesini sağlayabilecek en uygun tasarım parametrelerinin belirlenmesi,
- Gerçekleştirilmesi istenen proses için seçilen parametrelerin optimize edilmesini içermektedir [69].

Deneysel tasarım kullanılarak kimya mühendisliği alanında proses optimizasyonunu gerçekleştirmek için analitik metotlar (Langrange çarpanları yöntemi, değişkenlerin hesaplanması vb.), matematiksel programlama metotları (geometrik, doğrusal, dinamik vb.), model uyumlu ve bilgisayar kontrollü optimizasyon ve istatistiksel metotlardan yararlanılmaktadır [73].

#### **5.4 Deneysel Tasarım Stratejileri**

Deneysel tasarım, farklı parametreler tarafından etkilenen proses ve proses çıktıları arasındaki ilişkileri belirlemek için kullanılan bir metottur. Çeşitli deneysel tasarım metotlarından hangisini kullanacağına araştırmacı materyal ve deneysel koşullarını göz önünde tutarak karar vermelidir [74]. Öncelikle parametrelerin hangi seviyelerde kullanılacağı belirlenmeli, daha sonra aşağıdaki belirtilen hususlar dikkate alınarak, deneysel tasarım yöntemi belirlenmelidir.

- Parametre ve cevap etkilerinin hesaplanabilirliği,
- Proses cevabı üzerine etkili olan parametre sayısının belirlenmesi,
- Eşzamanlı olarak cevabı etkileyen parametrelerin varlığının araştırılması,
- Parametrelerin maksimum ve minimum koşullarının belirlenmesi,
- Kaç deney tekrarına ihtiyaç olduğu hakkında araştırma yapılması.

Yukarıda verilen hususlar araştırılıp incelendikten sonra yöntemin belirlenmesi ile deneysel tasarım aşamalarının aşağıda açıklandığı şekilde gerçekleştirilmesi, proses için gerekli en uygun koşullara ve bilgilere ulaşmayı sağlar (Şekil 5.1).



Şekil 5.1 Deneysel tasarım aşamaları [71]

Doğru ve güvenilir sonuçlar elde edebilmek için kullanılan deneysel tasarım yönteminde izlenecek olan basamaklar aşağıda tanımlanmıştır.

- 1) **Problemin Tanımlanması:** Deney yapmayı gerektiren problemin belirlenmesi zor bir süreçtir, ancak amaçların iyi analiz edilerek belirlenmesi, tasarımın sonraki aşamalarındaki sonuçların güvenilirliğini sağlar.
- 2) **Faktörlerin ve Seviyelerin Belirlenmesi:** Deney sırasında cevap yüzeyinin oluşumunu etkileyeceği düşünülen parametreler (zaman, sıcaklık, basınç, pH, konsantrasyon vb.) belirlendikten sonra her bir faktöre ait seviyelerin seçilmesi aşamasına gelinir. Seviye seçiminin ardından deneysel seviyeler kodlanır. Tasarım, seviyelerin kodlanması yoluyla ya da gerçek seviyelerin direk kullanılmasıyla yapılabilir. Ancak sonuçların elde edilmesinde kolaylık sağlanması bakımından kodlama yönteminin kullanılması önerilir. Faktör kodunun prensibini oluşturan denklem Eşitlik (5.2)'de verilmiştir.

$$X_i = \frac{\varepsilon_i - \varepsilon_{i0}}{S_i} \quad (5.2)$$

Eşitlik 5.2'de

$X_i$ : faktör kodunu,

$\varepsilon_i$ : çalışma aralığındaki parametre değerini,

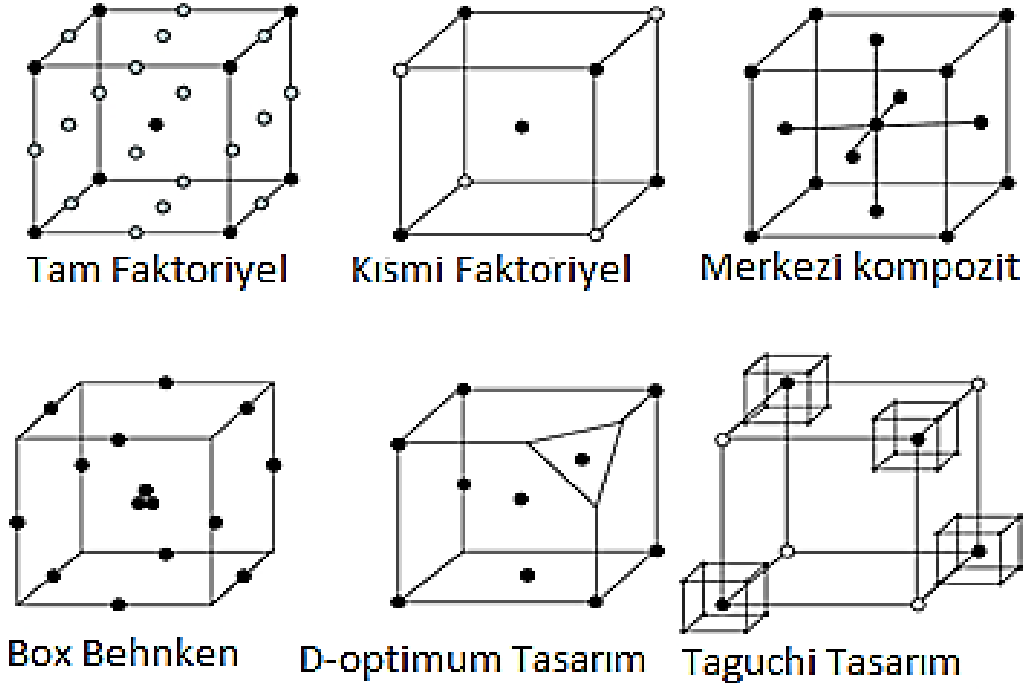
$\varepsilon_{i0}$ : çalışma aralığının merkezindeki parametre değerini,

$S_i$ : çalışma aralığının seviyelere eşit olarak bölünmesi sonucunda iki parametre değeri, arasındaki farkı ifade etmektedir.

- 3) **Proses Cevabının Belirlenmesi:** Problemin çözümü için elde edilmesi gereken cevap ya da cevaplar proses hakkında yeterli bilgi edinilmelidir.
- 4) **Deneysel Tasarım Yönteminin Belirlenmesi:** Bu aşama, deney tekrarlarının ve setlerinin belirlenmesinden oluşur. Uygun deneysel tasarım yöntemi belirlenerek deney planı oluşturulur.
- 5) **Deneylerin Gerçekleştirilmesi:** Deneylerin ilk 4 aşamada belirtilen koşullarda gerçekleştirilmesi önemlidir. Aksi takdirde, deneysel süreçteki hatalar deneysel geçerliliği bozar.
- 6) **Verilerin İstatistiksel Analizi:** Deneyler sonucunda elde edilen verilerin kullanılan yazılım programına transferinden sonra istatistiksel analiz vasıtasıyla değişkenlerin cevap üzerine etkilerini gösteren tasarım model denklemlerinin uygunlukları ve güvenilirlikleri belirlenir.
- 7) **Sonuç ve Öneriler:** Verilerin analizi sonucunda elde edilen model denklemlerin söz konusu prosesi temsil edip etmediği incelenir, tasarım grafikleri yorumlanarak optimum proses koşulları ve kullanılan tasarım yönteminin güvenilirlik seviyesi belirlenir [71].

## 5.5 Deneysel Tasarımda Kullanılan Yöntemler

Hazırlanan paket programlar sayesinde günümüzde deneysel tasarım yöntemleri oldukça kolay kullanılabilir hale gelmiştir. Faktöriyel tasarımlar, cevap yüzey tasarımları, Latin kareler yöntemi, Taguchi yaklaşımı bu yöntemlerden bazılarıdır. Bazı deneysel tasarım yöntemlerinin kübik gösterimleri Şekil (5.2)'de verilmiştir [76].

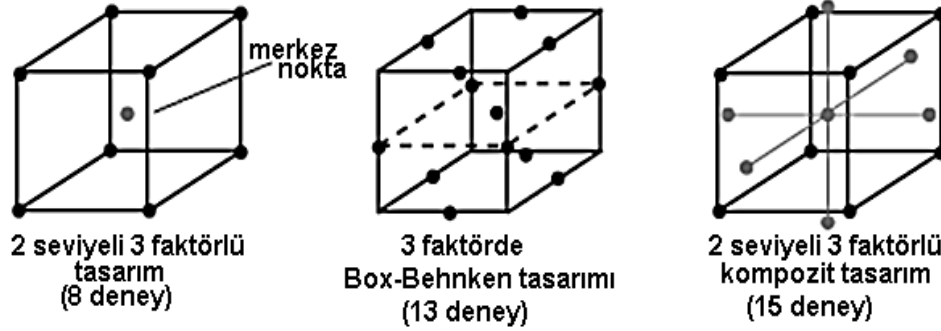


Şekil 5.2 Deneysel tasarım yöntemlerinden bazılarının kübik formda gösterimi [76]

### 5.5.1 İki seviyeli ( $2^k$ ) faktöriyel tasarım yöntemleri

$2^k$  faktöriyel tasarımlar, birden fazla cevap yüzeyini etkileyebilecek bağımsız değişkenin aynı modelde yer almasının gerektiği durumlarda kullanılabilir. Burada k, faktör sayısını, 2 ise deneme seviyelerini ifade etmektedir. Düşük olan parametre değeri -1, yüksek olan parametre değeri ise +1 olarak kodlanır. En yüksek ve en düşük noktalarda yapılacak olan deney sayısı  $2^k$  formülü vasıtasıyla hesaplanır (Şekil 5.3) [74,77].

iki seviyeli faktöriyel denemelerde doğrusal bir dağılımın gerçekleşmesi öngörülür, ancak model parametreleri birbirleri arasında birinci Derece etkileşime sahipse dağılımda eğriselleşme görülebilmektedir. Merkez noktalarda yapılan tekrar deneylerinin sayıları arttırılarak, oluşan eğrisellik test edilebilir [78].



Şekil 5.3  $2^k$  Faktöriyel tasarım ve cevap yüzey yöntemlerinde önerilen deney planlarının kübik formda gösterimi [78]

### 5.5.2 Cevap yüzey yöntemleri (RSM)

Cevap Yüzey Yöntemleri (RSM), çok sayıda parametrenin sistemin cevabı üzerinde etkili olduğu, parametrelerin birbirleriyle olan ikinci derece ve daha yüksek etkileşimlerini ortaya koymak üzere kullanılan öncelikli yöntemlerdendir. İlk olarak Box ve Wilson tarafından 1951 yılında bir seri deneme metodu olarak tanımlanan bu yöntem, bazı istatistiksel ve matematiksel yöntemlerin birlikte kullanılarak proseslerin geliştirilmesinin ve optimizasyonun sağlandığı bir yöntem olarak ifade edilebilir [79].

Cevap yüzey yöntemindeki temel amaç; birçok proses parametreleri tarafından etkilenen cevap yüzeyinin optimize edilmesidir. Bu teknik, eşzamanlı olarak kontrol edilebilir girdiler vasıtasıyla elde edilen cevap etkileşimini algılayabilmektedir [80].

Minimum sayıda deney sayısı ve verisi ile maksimum bilgi edinilebilmesi, zahmetsizce optimizasyon imkanı sağlaması, etkin parametreleri aynı anda değiştirebilme imkanı sunması, parametreler arası etkileşimlerin belirlenebilmesi, tasarım için etkili olduğu düşünülen parametrelerin saptanabilmesi gibi özelliklere sahip olması sebebiyle cevap yüzey yöntemi, diğer bir çok yöntemle göre avantajlıdır. Bunun yanı sıra RSM ile yapılan

tasarım sonucunda elde edilen model denklemlerin güvenilirlik seviyelerinin öngörülmesine imkan vermektedir. Mühendislik ve bilim çalışmaları için çok yönlü avantaj sağlayan bu yöntem sıkça kullanılmaktadır [81].

RSM modelleri oluşturulurken bir parametrenin temel etkisinin diğer parametrelerle etkileşiminin, cevap değişkeni üzerindeki etkisinin ne derecede önemli olduğunu regresyon analizi vasıtasıyla, regresyon katsayıları incelenerek belirlenir. Cevap yüzeyi, prosesin cevabını etkileyecek parametreler için istenilen özellikte cevabı sağlayacak optimum bölgeyi ve koşulları öngörebilmek için oluşturulmaktadır. Proses cevabı ve parametreler arasındaki ilişki Eşitlik (5.3) ile açıklanmaktadır.

$$Y = f(X_1, X_2, \dots, X_n) + \varepsilon \quad (5.3)$$

Eşitlik (5.3)'de

Y: bağımlı değişkeni

F: gerçek yanıt fonksiyonunu

$X_1 \dots X_n$ : bağımsız değişkenlerini

$\varepsilon$ : deneysel hata değerini

ifade etmektedir [79].

Sistemi açıklayan bağımsız değişkenlerin cevabı doğrusal ise  $2^k$  faktöriyel tasarımlarda olduğu gibi fonksiyon birinci Derece verilir. Eşitlik (5.4)'de birinci derece fonksiyon eşitliği verilmiştir.

$$Y = \beta_0 + \beta_1 X_1 + \beta_2 X_2 + \dots + \beta_n X_n + \varepsilon \quad (5.4)$$

Eğer sistemde kavislenme mevcut ise birinci Derece model yanıt yüzeyindeki eğriliği öngörmeye yetersiz kalabilir. Bu gibi durumlarda sistem tanımlama yüksek dereceli polinomiyal fonksiyon şeklinde yapılır. Polinomiyal fonksiyon denklemi Eşitlik (5.5)'de verilmiştir [73,82].

$$Y = \beta_0 + \sum_{i=1}^n \beta_i X_i + \sum_{i=1}^n \beta_{ii} X_i^2 + \sum_{i < j} \beta_{ij} X_i X_j + \varepsilon \quad (5.5)$$

Eşitlik (5.5)'de;

$\beta_0$ : regresyon katsayısını

$\beta_i$ : doğrusal terimi

$\beta_{ii}$ : ikinci derece terimi

$\beta_{ij}$ : iç etkileşim terimini

$\varepsilon$ : deneysel hatayı

ifade etmektedir.

Çok çeşitli formlarda çalışma imkanı sunarak yanıt fonksiyonunu tanımlamada avantaj sağlaması, en küçük kareler yöntemi vasıtasıyla katsayıların zahmetsizce hesaplanabilmesi ve optimum noktanın matematiksel olarak belirlenebilmesi gibi özelliklerinden dolayı ikinci Derece polinomial modeller cevap yüzey yönteminde yaygın olarak kullanılmaktadır [79]. Oluşturulan deneysel tasarım sonucunda, elde edilen model uygunluğunun test edilmesi için varyans analizi (ANOVA) ile istatistiksel olarak sonuçlar yorumlanır. Deneysel tasarım ile elde edilen modelin ANOVA analizi ile istatistiksel olarak değerlendirilmesi Çizelge 5.1'de sunulmuştur.

Çizelge 5.1'de,

SSM: modelin kareler toplamını,

SSE: hatanın kareler toplamını,

SST: model ve hatanın toplam kareler toplamını,

MSM: model karelerinin oranını ( $SSM/f_3$ ),

MSE: hata karelerinin oranını ( $SSE/f_2$ ),

ifade etmektedir.

Çizelge 5.1 Deneysel tasarım ile elde edilen modelin ANOVA analizi

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

Bu aşamada F değerinin uygunluğu biometrika çizelgeleri vasıtasıyla incelenir ve kontrol edilir. Böylelikle kullanılan regresyon modelinin sistemi matematiksel olarak ifade ettiği kabul edilir [73]. Sistemin güvenilirlik seviyesinin uygunluğunu belirlemede önemli olan bir diğer parametre ise p-değeridir. P-değerinin sıfıra yakın olması istenir. 0.05'ten büyük olan değerler model için uygun olmayan değerler olarak tanımlanır [72]. İstatistiksel analiz çerçevesinde yorumlanan bir diğer parametre ise regresyon katsayısıdır.

Eşitlik (5.6)'da eşitliği verilen regresyon katsayısı modelde regresyon değişkenlerinin kullanılması ile cevap yüzeyinde oluşan azalmanın ölçüsüdür.

$$R^2 = \frac{SSM}{SST} = 1 - \frac{SSE}{SST} \quad (5.6)$$

Analiz sonuçlarında yer alan adj-R<sup>2</sup> değeri ise denklem (5.7) ile hesaplanabilmektedir. R<sup>2</sup> ve adj-R<sup>2</sup> değerleri arasındaki farka göre modelde mevcut terimler hakkında yorum yapılabilmektedir. Bu değerler arasındaki farkın yüksek olması, modelde istatistiksel olarak önemsiz terimlerin mevcut olduğunun göstergesidir. İstatistiksel olarak önemsiz terimlerin eklendiğinin göstergesidir [79,83].

$$adj - R^2 = \frac{1 - SSM/f_2}{1 - SST/f_1} = 1 - \frac{f_1}{f_2} (1 - R^2) \quad (5.7)$$

Elde edilen model denklemlerin uygunluğunun istatistiksel olarak test edilmesinin ardından model denklemler için, bir faktörün sabit tutulup diğer iki faktör arasındaki etkileşimleri ve cevap üzerine etkilerini grafiksel olarak incelemeye imkan sağlayan 3 boyutlu cevap yüzey grafikleri ve kontur grafikleri oluşturulabilir. Böylelikle oluşturulan deneysel tasarım içerisinde sistemin davranışı hakkında çeşitli bilgiler edinilmektedir [84]. Central Composite ve Box-Behnken tasarımları cevap yüzey yöntemleri arasında en çok tercih edilen metotlardır.

### 5.5.2.1 Merkezi kompozit tasarım

İkinci Derece cevap yüzeyi elde edebilmek için uygun olan Central Composite Tasarımlarda (CCD) modelde yer alan parametrelerin en az üç seviyeli olması gerekir. Yapılması gereken deney sayısı,  $2^k$  tane faktöriyel,  $2k$  tane merkez noktaya eşit uzaklıktaki aksenal nokta ve merkez noktada sistem ihtiyacı doğrultusunda isteğe bağlı sayıdaki deney tekrarlarından oluşur.  $2^k$  tane faktöriyel denemeler ile parametrelerin temel etkileri ve birinci Derece etkileşimleri,  $2k$  tane aksenal noktalarda gerçekleştirilen denemeler ile modeldeki küresel terimler yorumlanabilirken merkez noktada sayısı isteğe bağlı olan tekrar deneyleri ile eğrisellik kontrol altına alınarak hata oranı minimuma indirilebilmektedir [85].

Oluşturulan tasarımda yapılması gereken deney sayısı ise Eşitlik (5.8) ile hesaplanmaktadır. Burada  $k$  parametre sayısı,  $n_o$ , merkez noktada yapılan tekrar deneylerinin sayısını gösterir [85].

Eşitlik (5.8)'de,

$k$ : parametre sayısını

$n_o$ : merkez noktada yapılan tekrar deneylerinin sayısını

ifade etmektedir.

$$N = 2^k + 2k + n_o \quad (5.8)$$

### 5.5.2.2 Box-Behnken tasarımı (BBD)

Box-Behnken tasarımı, sistem tasarımının oluşturulabilmesi için az sayıda deney gerektirdiğinden ve optimum değerleri kolaylıkla elde etmeyi sağladığından, cevap yüzey tasarımlarında kullanılması en çok tercih edilen metotlardan biridir. Bu tasarımda faktörlerden birinin etkisi merkez noktada sabitlenirken diğer faktörlerin tüm seviyelerinde tüm kombinasyonlar denenmektedir. Ancak Box-Behnken tasarımının kullanılabilmesi için modelde yer alan parametrelerin en az 3 seviyeli olması gerekmektedir [78].

Bir merkez nokta ve köşelerin orta noktalarından oluşan küresel ve dönebilen bir tasarım olarak tanımlanan Box-Behnken tasarımı deney sayısı eşitliği Eşitlik (5.9)'da verilmiştir.

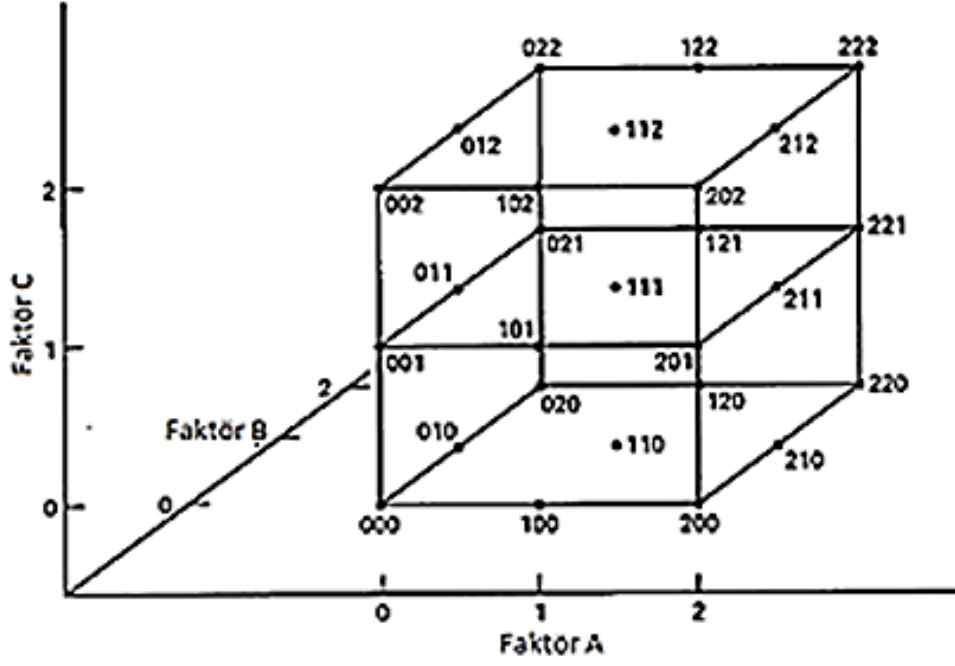
$$N = k^2 + k + n_0 \quad (5.9)$$

### 5.5.3 Üç seviyeli ( $3^k$ ) faktöriyel tasarım yöntemleri

$3^k$  faktöriyel tasarım yöntemi tasarımın oluşturulacağı sistemin üç seviyeli parametreye sahip olduğu durumlarda kullanılacak yöntemlerden biridir.  $2^k$  Faktöriyel tasarım yönteminden ayrı olarak, bu yöntemde kantitatif olan parametre seviyeleri, düşük, orta ve yüksek şekilde -1, 0 ve 1 olarak kodlanır.  $3^k$  faktöriyel tasarımı faktörler arasındaki ilişkiyi inceler ve quadratik olarak faktörleri modeller [86].

Cevap ile diğer faktörlerin birbiri arasındaki etkileşimleri açıklayabilmesi açısından ve yüzey fonksiyonunda eğrilik potansiyelinin olduğu düşünülen sistemlerde bu tasarım yöntemi tercih sebebidir. Ancak,  $3^k$  faktöriyel tasarım yöntemi tasarımı oluşturmak için çok sayıda deney, dolayısıyla yüksek maliyet ve uzun zaman gerektirdiğinden, çok sık tercih edilmemektedir.  $3^k$  Faktöriyel tasarım için Eşitlik (5.10)'da verildiği üzere birinci Derece kullanılır. 3 seviyeli ( $k=3$ ) olan bir tasarım örneğinin oluşan deney kombinasyonu Şekil (5.4)'de verilmiştir.

$$Y = \beta_0 + \beta_1 X_1 + \beta_2 X_2 + \dots + \beta_n X_n + \varepsilon \quad (5.10)$$



Şekil 5.4  $3^k$  Seviyeli deney kombinasyonu tasarımı [86]

Deneysel tasarım yöntemleri çok yönlü ve çeşitlilik göstermektedir. Araştırmacı, sistem ve sistem için potansiyel parametrelerini belirleyip, bu doğrultuda tasarım yöntemini seçmeli ve sonuçları yorumlamalıdır. Deneysel tasarım için günümüzde bir çok istatistiksel program mevcuttur.

### LİTERATÜR ARAŞTIRMASI

Son yıllarda alüminyumun insan ve canlıların sağlığında olumsuz etkilere neden olması sebebiyle atık sulardan alüminyumun adsorpsiyonla giderimi büyük önem kazanmıştır. Bu bölümde, adsorpsiyon proseslerinde kullanılan farklı adsorbentler ile yapılmış alüminyum giderimi çalışmaları özetlenmiştir. Kullanılan adsorbentlerin ortak noktası, ekonomik değeri olmayan kaynaklardan ya da çeşitli atıklardan elde edilmiş olmasıdır. Alüminyum giderilmesiyle ilgili çalışmaları aşağıdaki şekilde özetlemek mümkündür. Farklı adsorbentlerle gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonuna ait literatür çalışmaları ayrıca Çizelge 6.1’de özetlenmiştir.

**Aly vd. (2014) [3]** tarafından yapılan çalışmada; alüminyumun poliakrilonitril boncukları (PAN), toz haline getirilmiş poliakrilonitril boncukları ve 250 °C’de 48 saat, 600°C’de 48 saat olmak üzere ısıtılmış poliakrilonitril boncukları ile sulu çözeltilerden giderimi üzerine farklı sıcaklıklarda pH ve temas süresi gibi parametrelerin etkileri incelenmiştir. Yapılan kinetik çalışmalarında, elde edilen veriler Yalancı 2. Derece kinetik modeline uygunluk göstermiştir. Al<sup>+3</sup> çözeltilerinin farklı sabit sıcaklıklarda (20, 40 ve 60 °C) adsorbentlerle ile temas ettirilmesi sonucunda elde edilen denge verileri Langmuir izotermi ile açıklanmıştır. Maximum adsorpsiyon kapasitesi Poliakrilonitril boncukları (PAN), (PAN) toz halde ve PAN (250°C/48 saat) için sırasıyla 0.25, 0.71 ve 0.15 mg/g olarak tespit edilmiştir. Sıcaklık artışı ile adsorpsiyon kapasitesinin arttığı görülmüştür. Langmuir izoterm verilerini kullanarak termodinamik

parametreler ( $\Delta H^0$ ,  $\Delta G^0$ ) hesaplanmış ve hesaplanan proses entalpisi ( $\Delta H^0$ ) doğrultusunda prosesin endotermik olduğu sonucuna varılmıştır.

**Abo-Amer vd. (2013) [87]** tarafından yapılan çalışmada; atık sulardan *Providencia rettgeri* bakterisi ile  $Al^{+3}$ ,  $Co^{+2}$  ve  $Cu^{+2}$  giderimi incelenmiş elde edilen sonuçlar, *B.cereus* ATCC 11778 bakterisinin verimi ile karşılaştırılmıştır. 200 mg/L  $Al^{+3}$  çözeltilisinden alüminyum gideriminde kil içerisine enjekte edilen *P.rettgeri*, *B.cereus* ATCC 11778 bakterisinden yaklaşık dört kat daha fazla etkili olmuştur. *P.rettgeri* bakterisinin adsorpsiyon kapasitesi %87 giderim yüzdesi ile 174 mg/L, *B.cereus* ATCC 11778 bakterisi %23 giderim yüzdesi ile 46 mg/L alüminyum adsorplamıştır. Bu çalışmada *Providencia rettgeri* bakterisinin düşük maliyetli ve etkili bir adsorbent olarak toksik etkisi olan ağır metallerin gideriminde kullanılabileceği kanısına varılmıştır.

**Abdel-Ghani vd. (2013) [88]** tarafından yapılan çalışmada; Afrika kayın ağacı talaşı ham ve kimyasal işlem görmüş örneklerinin 25 mg/L sulu çözeltilerden alüminyum, demir, bakır ve çinko giderimi üzerine farklı sıcaklıklarda, pH, temas süresi, metal iyonu konsantrasyonu ve adsorbent miktarı gibi parametrelerin etkileri incelenmiştir. Adsorpsiyon prosesi 240 dakikada dengeye ulaşmıştır. Optimum pH değerleri ham talaş için pH 4, kimyasal işlem görmüş talaş için ise pH 6.5 olarak bulunmuştur. Adsorpsiyon prosesinden elde edilen kinetik veriler Yalancı 1. Derece kinetik modele, izoterm verileri ise Langmuir, Freundlich ve Temkin izoterm modelleri arasından Langmuir izoterm modeline uygunluk göstermiştir. Maximum adsorpsiyon kapasiteleri ham talaş ve kimyasal işlem görmüş olan talaş için sırasıyla 1.913 mg/g ve 0.854 mg/g olarak bulunmuştur.

**Qian L ve Chen B. (2013) [89]** tarafından yapılan çalışmada; alüminyum giderimi için pirinç samanı ve sığır gübresinden üretilen biocharlar kullanılmıştır. 400 ve 700 °C'de hazırlanan adsorbentler alüminyum giderimi için daha önce kullanılan materyal ve küllerden daha etkili olmuştur. Örnekler 100, 400 ve 700 °C'de, pirinç samanı ve sığır gübresi külleri 800 °C'de 4 saat bekletilerek hazırlanmıştır. Alüminyum adsorpsiyonu verileri Langmuir izotermi ile uygunluk göstermiştir. Pirinç samanından üretilmiş örnekler RS100, RS400, RS700, ve RS-ash, sığır gübresinden türetilmiş örnekler ise

CM100, CM400, CM700, ve CM-ash olarak adlandırılmıştır. Örnek adlandırmada kullanılan sayılar sıcaklık değerlerini belirtmektedir. Adsorbentlerin alüminyum giderim kapasitesi sırasıyla RS400 > RS700 > RS100 > RS-ash ve CM400 > CM700 > CM-ash > CM100 olarak bulunmuştur.  $Q_{max}$  değerleri ise, RS400 397.6  $\mu\text{mol/g}$ , CM100 242.4  $\mu\text{mol/g}$ , RS100 130.9  $\mu\text{mol/g}$ , CM-ash 204.8  $\mu\text{mol/g}$  ve RS-ash 47.3  $\mu\text{mol/g}$  olarak elde edilmiştir.

**Somasani (2012) [90]** tarafından yapılan çalışmada; alüminyum ve bakır giderimi için adsorbent olarak ham kalker ve demir kaplanmış kalker kullanılmıştır. Adsorpsiyon prosesinde farklı pH değerleri, adsorbent miktarları ve başlangıç konsantrasyonları gibi parametreler incelenmiştir. 15 dakikalık temas süresi sonunda 2 ppm başlangıç konsantrasyonuna sahip alüminyum çözeltisinde ham kalker %85.4'lük alüminyum giderimi sağlamıştır. Demir kaplanmış kalker ile yapılan adsorpsiyon çalışmasında ise, 2 ppm alüminyum konsantrasyonu içeren çözeltide 1 saat temas süresi sonunda %99.79 oranında giderim elde edilmiştir.

**Jordão vd (2010) [16]** tarafından yapılan çalışmada; sulu sentetik çözeltilerden farklı deniz yosunu kullanımıyla pH, metal iyonu konsantrasyonu ve temas süresi gibi parametrelerin  $\text{Al}^{+3}$  adsorpsiyonu üzerine etkisi incelenmiştir. Maximum adsorpsiyon kapasitesi 22.5 mg/g, optimum pH değeri 4 olarak belirlenmiştir. Adsorpsiyon yüzdesi 30 dakikadan daha az bir sürede %80 civarı olmuştur. Endüstriyel atık sudan alüminyum giderimi ise iki farklı sabit yataklı kolonlarda çalışılmıştır. İlk kolonda 27.5 g deniz yosunu besleme yapılan prosesde üç adsorpsiyon ve bir desorpsiyon birbirini takip etmiştir. Birinci aşama (12 mg/g maksimum sorpsiyon kapasitesi) 15 mL/dak akış hızında maksimum adsorpsiyon kapasitesine ulaşması için yeterli olmuştur. İkinci sütun ise 1.100 g yosun ile doldurulmuştur. Aynı deney prosedürü uygulanarak elde edilen sonuçlar aktif kömür dolu bir kolon ile elde edilen verilerle karşılaştırılmıştır. Aktif kömür sadece (250 mL/dak akış hızı) 1.6 mg/g maksimum adsorpsiyon kapasitesine ulaşmış iken, yosun için bu değer 14 mg/g olmuştur.

**Al-Muhtaseb vd (2008) [91]** tarafından yapılan çalışmada; hurma çekirdeğinden elde edilen aktif karbon ve ticari aktif karbon kullanılarak sulu çözeltilerden  $\text{Al}^{+3}$  giderim kapasitesi araştırılmıştır. Her iki adsorbent içinde *optimum* pH değeri 4 bulunmuştur.

Düşük başlangıç konsantrasyonunda (5 mg/L) ve düşük pH'da maximum adsorpsiyon kapasitesi hurma çekirdeğinden elde edilen aktif karbon için 0.305 mg/g, ticari aktif karbon için ise sadece 0.021 mg/g adsorpsiyon kapasitesi gözlemlenmiştir. Adsorpsiyon prosesi Langmuir ve Dubinin–Radushkevich (D–R) adsorpsiyon izoterminin her ikisi içinde uygunluk göstermiştir.

**Choksi ve Joshi (2007) [92]** tarafından yapılan çalışmada; nişasta, aktif kömür, odun kömürü ve kil adsorbentlerinin alüminyum ve nikel giderim kapasiteleri farklı pH (pH 6, 7, 8 ve 8.5) ve 100 mg/L başlangıç konsantrasyonunda çalışılmıştır. Adsorpsiyon prosesinin optimum pH değeri  $Ni^{+2}$  için 7.5,  $Al^{+3}$  için ise 6 bulunmuştur. Elde edilen kinetik datalar Yalancı 1. Derece kinetik modele uygunluk göstermiştir. Hesaplanan termodinamik terimler, prosesin endotermik olduğunu göstermiştir. Kullanılan adsorbentler arasında sulu çözeltilerden alüminyum giderimi değerleri en yüksek kil ile yapılan çalışmalarda elde edilmiştir.

**Singh vd. (2005) [93]** tarafından çalışmada; sulu çözeltilerden düşük maliyetli adsorbentlerden biri olan pirinç kabuğu ve aktifleştirilmiş pirinç kabuğunun alüminyum giderimi kapasiteleri araştırılmıştır. pH, başlangıç konsantrasyonu, temas süresi ve sıcaklık gibi parametrelerin adsorpsiyon prosesin üzerindeki etkisi incelenmiştir. Maximum adsorpsiyon kapasitesi pirinç kabuğu için pH 4.2'de elde edilmiştir. Elde edilen datalar Freundlich adsorpsiyon izoterm modeline, kinetik datalar ise Yalancı 1. derece kinetik modele uygunluk göstermiştir. Sıcaklığın etkisi üzerine yapılan çalışmalar, adsorpsiyon prosesinin ekzotermik olduğunu, dolayısıyla sıcaklık artışı ile adsorpsiyon kapasitesinin düştüğünü göstermiştir.

**Ozdemir ve Baysal (2004) [94]** tarafından yapılan çalışmada; Cr(VI) ve  $Al^{+3}$  biosorpsiyonu için *Chryseomonas luteola* TEM05 kullanılmış, proses üzerinde pH, metal konsantrasyonu ve temas süresi etkileri incelenmiştir. Optimum pH değerleri Cr(VI) ve  $Al^{+3}$  için sırasıyla, 4.0 ve 5.0 olarak bulunmuştur. Elde edilen biosorpsiyon dataları Langmuir ve Freundlich izoterm modellerine uygunluk göstermiştir. *Chryseomonas luteola* TEM05,  $Al^{+3}$  gideriminde Cr(VI) sorpsiyonundan çok daha fazla etkili olmuştur. Elde edilen maksimum biosorpsiyon kapasitesi  $Al^{+3}$  için 55.2 mg/g iken Cr(VI) için 3.0 mg/g olduğu görülmüştür.

Çizelge 6.1 Farklı malzemelerle gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonları

Araştırmacılar	Alüminyum Derişimi	Adsorban Türü ve Derişimi	Deneysel Koşullar	İzoterm Modeli	Adsorpsiyon Kapasitesi (mg/g)
Aly vd. (2014) [3]	1 mg/L	Poliakrilonitril boncukları (PAN)	20, 40 ve 60°C	Langmuir izotermi	0.25
		PAN (toz halde)	5 dak- 24 sa karıştırma süresi		0.71
		PAN (250°C/48 saat)			0.15
Abdel-Ghani vd. (2013) [88]	25 mg/L	Afrika kayın ağacı talaşı (ham)	pH 4 ve pH 6.5	Langmuir, Freundlich ve Temkin izotermi	1.913
		Afrika kayın ağacı talaşı (İşlem görmüş)	240 dak		0.854
Qian L., Chen B., (2013) [89]	25-100 µmol/L	RS400	25 °C - pH 4.3 4 sa	Freundlich and Langmuir izotermi	149.1
		CM100			90.9
		RS100			49.1
		CM-ash			76.8
		RS-ash			17.7

Çizelge 6.1 Farklı malzemelerle gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonları (devamı)

Araştırmacılar	Alüminyum Derişimi	Adsorban Türü ve Derişimi	Deneyzel Koşullar	İzoterm Modeli	Adsorpsiyon Kapasitesi (mg/g)
Abó-Amer vd. (2013) [87]	200 mg/L	Providencia rettgeri bakterisi	30 °C, 24 saat karıştırma süresi, 200 rpm	Langmuir izotermi	0.463
Somasani (2012) [90]	2, 4 ve 10 ppm	Ham kalker Demir kaplı kalker	15 dak 1 saat	-	0.010
Jordão vd (2010) [16]	5 mg/L	Deniz yosunu	pH 4, 30 dak, 175 rpm	Langmuir ve Freundlich izotermi	0.059
Al-Muhtaseb vd (2008) [91]	5 mg/L	Hurma çekirdeđi aktif karbonu Ticari karbon	pH 4 ve pH 6.5 240 dak	Langmuir ve Dubinin Radushkevich izotermi	0.305 0.021
Choksi ve Joshi (2007) [92]	100 mg/L	Pirinç kabuđu aktifleřtirilmiř pirinç kabuđu	pH 6	Freundlich izotermi	0.473
Ozdemir ve Bayşal (2004) [94]	500 mg/L	<i>Chryseomonas luteola</i> TEM05	pH 5	Langmuir ve Freundlich izotermi	55.2

### MATERYAL VE YÖNTEM

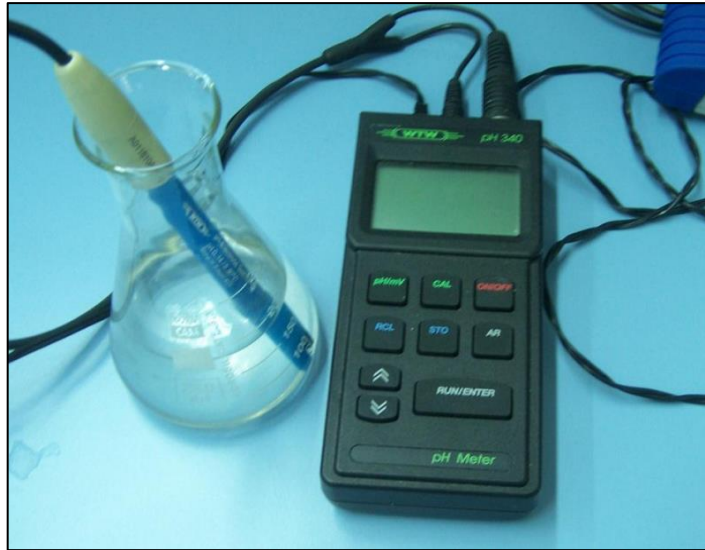
#### 7.1 Kullanılan Cihazlar

##### pH metre

Reaksiyon çözeltisinin pH değerini kontrol etmek amacı ile WTW-pH 340 marka pH kontrol edici kullanılmıştır. Deneylerde kullanılan pH metre Şekil 7.1’de verilmiştir.

pH aralığı: 0 -14 pH, Doğruluk : + 0.01 pH

mV aralığı: -1000 -1000 mV, Doğruluk: + 1 mV



Şekil 7.1 pH metre

## Terazi

Adsorpsiyon işlemi için alüminyum içeren sulu çözelti ortamına ilave edilen biosorbentlerin tartımı için 0.001 g hassasiyete sahip, 0-410 g arası tartım kapasiteli SCALTEC SBA 41 markalı bir terazi kullanılmıştır. Deneyleerde kullanılan hassas terazi Şekil 7.2’de verilmiştir.



Şekil 7.2 Terazi

## Etüv

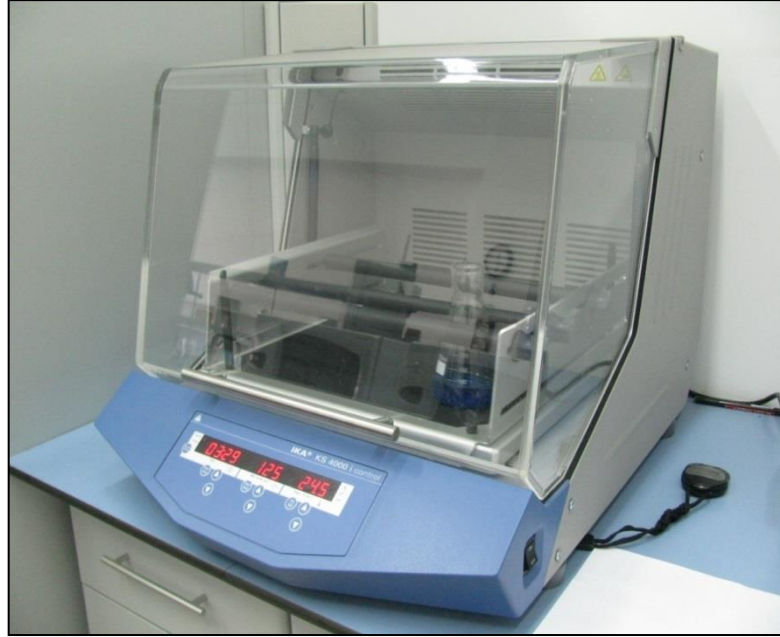
Muz ve limon kabuğu materyallerini biosorbent olarak adsorpsiyon işleminde kullanmadan önce ön işlem uygulanması için Memmert UM 400 marka etüv kullanılmıştır. Deneyleerde kullanılan etüv Şekil 7.3’de verilmiştir.



Şekil 7.3 Etüv

### Orbital Çalkalayıcı

Deneylede adsorpsiyon çözeltilisinin çalkalanmasında İKA KS 4000 İC markalı, maksimum 500 rpm ve 80°C'ye ayarlanabilir çalkalayıcı kullanılmıştır. Deneylede kullanılan çalkalayıcı Şekil 7.4'de verilmiştir.



Şekil 7.4 Orbital çalkalayıcı

### **Mikro santrifüj**

Adsorpsiyon deneylerinde kullanılan 0.5 mL hacmindeki alüminyum çözeltilerini santrifüjlemek için, HETTICH markalı, 12x2.2 mL ( $1.2 \text{ Kg/dm}^3$ ) kapasiteli, 0-13000 devir/dakika aralığında ayarlanabilir dönüş hızına sahip bir santrifüj cihazı kullanılmıştır. Deneyler sırasında kullanılan santrifüj cihazı Şekil 7.5'te gösterilmektedir.



Şekil 7.5 Mikro santrifüj

### **UV Spektrofotometre**

Örneklerin absorbans değerlerini okumak için Döteryum ve Wolfran lambalı, 200-1100 nm aralığında okuma yapabilen, Shimadzu marka UV-150-02 çift ışınlı spektrofotometre kullanılmıştır. Deneyler sırasında kullanılan spektrofotometre Şekil 7.6'da gösterilmektedir.



Şekil 7.6 UV Spektrofotometre

### **FT-IR (Fourier Transform Infra Red) Spektroskopisi**

Numunelerin FT-IR analizleri için Bruker Tensor 27 FT-IR cihazı kullanılmıştır. FTIR analizi sonucu her bir numuneye ait absorpsiyon değerine karşı dalga sayısını gösteren spektrumlar elde edilmiştir. Bunun yanısıra spektrumlardaki fonksiyonel gruplara ait yüzde miktarları da analiz sonucu olarak elde edilmiştir.

### **SEM Analizi**

Kullanılan biosorbentlerin yüzey morfolojisi Jeal JSM-5410 LV marka taramalı elektron mikroskobu (SEM) cihazı ile belirlenmiştir.

### **7.2 Kullanılan Kimyasal Maddeler**

Deneylerde kullanılan alüminyum çözeltileri 1 litre destile suya 13.903 g  $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$  (Merck Chemicals) ilave edilmesi ile hazırlanmıştır. Deneysel çalışmalarda kullanılan çözeltiler istenilen miktarlara uygun şekilde stok çözeltisinden seyreltilerek elde edilmiştir. Adsorpsiyon sonrası alüminyum içeren sulu çözeltide kalan alüminyum konsantrasyonunu UV-spektrofotometre ile belirlemek için alüminyum test kiti (Merck 0.020-1.20 mg/L Al) kullanılmıştır.

### 7.3 Kullanılan Biyosorbentler

Adsorpsiyon deneylerinde kullanılan muz ve limon marketden, susam küspesi Necdet Bükey A.Ş. firmasından, aspir küspesi ise Şifa Yemek ve Gıda Üretim Tesisleri Tic. A.Ş firmasından temin edilmiştir. Deney öncesi ön işlem için, muz ve limon kabukları (<10 mm) küçük parçalar halinde kesilmiştir.

Kabuklar, üzerindeki kirlilikleri uzaklaştırmak için 3 kez musluk suyu ile 2 kez distile su ile yıkanarak, süzgeçten geçirilmiştir. Oda koşullarında 1 saat kurumaya bırakıldıktan sonra, nemlerinden uzaklaştırmak için muz ve limon kabukları, etüvde 105°C'de 12 saat boyunca bekletilmiştir. Kurutulmuş muz (başlangıç nem oranı %78.78 g nem/g ham muz) ve limon kabukları (başlangıç nem oranı %82.07 g nem/g ham limon) ezilerek, toz haline getirilmiş ve -50+100 mesh (ASTM) boyutundaki eleklerden geçirilmiştir.

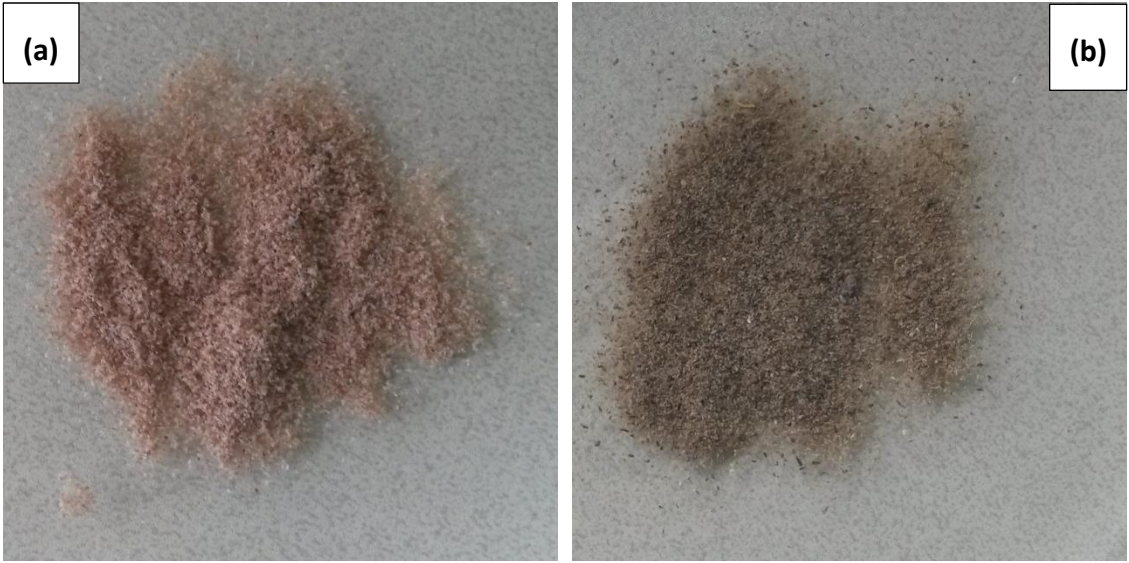
Deneylerde kullanılmak üzere biyosorbentler havasız, vakumlu kaplarda saklanmıştır. Uygulanan ön işlem sonrası deneylerde kullanıma hazır hale gelen muz ve limon kabuğu numuneleri Şekil 7.7'de verilmiştir.

Susam küspesi (başlangıç nem oranı %19.4 g nem/g ham susam küspesi) ve aspir küspesi (%2.65 g nem/g ham aspir küspesi) ezilerek, toz haline getirilmiş ve -50+100 mesh (ASTM) boyutundaki eleklerden geçirilmiştir.

Deneylerde kullanılmak üzere biyosorbentler havasız, vakumlu kaplarda saklanmıştır. Uygulanan ön işlem sonrası deneylerde kullanıma hazır hale gelen susam ve aspir küspesi numuneleri Şekil 7.8'de verilmiştir.



Şekil 7.7 Ön işlem sonrası deneylerde kullanıma hazır hale getirilen biosorbentler  
a) muz kabuğu, b) limon kabuğu



Şekil 7.8 Ön işlem sonrası deneylerde kullanıma hazır hale getirilen biosorbentler  
a) susam küspesi, b) aspirin küspesi

#### **7.4 Alüminyum Çözeltisinin Hazırlanması**

Deneyleerde kullanılan alüminyum stok çözeltileri 1 litre destile suya 13.903 g  $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$  (Merck Chemicals) ilave edilmesi ile hazırlanmıştır. Deneysel çalışmalarda kullanılan çözeltiler istenilen miktarlara uygun şekilde stok çözeltilisinden seyreltilerek elde edilmiştir.

#### **7.5 Deneyleerin Yapılışı**

Adsorpsiyon işlemleri için 250 mL'lik erlen içeresine 100 mL alüminyumun sulu çözeltisi (5 mg  $Al^{+3}$ /100 mL) ilave edilerek orbital çalkalayıcıya konulmuş ve proses parametreleri dengeye geldiğinde çözeltiliye belirlenen miktarda biosorbent ilave edilerek deney başlatılmıştır. Numuneler, orbital çalkalayıcıda 175 rpm karıştırma hızında çalkalanmaya bırakılmıştır [16]. Adsorpsiyon işlemleri 25°C sabit sıcaklıkta, belirlenen pH ve temas sürelerinde gerçekleştirilmiştir. Biosorbentin çözeltiliye eklendiği an, t=0 anı olarak alınmıştır. t=0 anından itibaren belirli zaman aralıklarında numuneler alınarak, mikrosantrifüjde 5000 rpm hızında 5 dak boyunca santrifüjlenmiştir. Santrifüjlenmiş numunelerde, adsorplanmadan geriye kalan alüminyum miktarı analizleri yapılmıştır. Numunelerin, alüminyum kiti ile muamele edildikten sonra spektrofotometrik yöntem ile absorbans değerleri okunmuştur. Bu işlem 3 kez tekrar edilerek ortalama değerler hesaplanmıştır. Elde edilen absorbans değerleri kullanılarak konsantrasyon değerleri hesaplanmıştır.

#### **7.6 Deneysel Çalışmaların Planlanması**

Adsorpsiyon deneyleeri deneysel tasarım yöntemi kullanılarak planlanmıştır. Bu amaç için Design Expert 9.0 programı kullanılmıştır. Yapılan deneysel tasarımda  $2^k$  faktöriyel tasarımı,  $3^k$  faktöriyel tasarımı ve Box-Behnken tasarım metotları kullanılmıştır. Deneyleeri bu tasarım yöntemiyle gerçekleştirilebilmek için, yapılan literatür araştırmaları dikkate alınarak kullanılan biosorbentler ve giderilmesi istenen alüminyum için uygun olan ve adsorpsiyon üzerinde etkisinin incelenmesi istenen birbirine eşit uzaklıktaki faktörler seçilmiştir. Bu doğrultuda belirlenen deney parametreleri Çizelge 7.1'de verilmiştir.

Çizelge 7.1 Adsorpsiyon prosesi için deneysel tasarım ile incelenen parametre değerleri

pH	2	4	6
Biosorbent miktarı (g/100 mL)	0.05	0.15	0.25
Temas süresi (dak)	10	20	30

5 merkez tekrarlı olarak dizayn edilen  $2^k$  faktöriyel tasarımı için 13 deney,  $3^k$  faktöriyel tasarımı için 32 deney, Box-Behnken tasarım metodu için 17 tane farklı kombinasyonlarda deneyler her bir biosorbent için ayrı ayrı gerçekleştirilmiştir.

### 7.7 Alüminyum Analizi

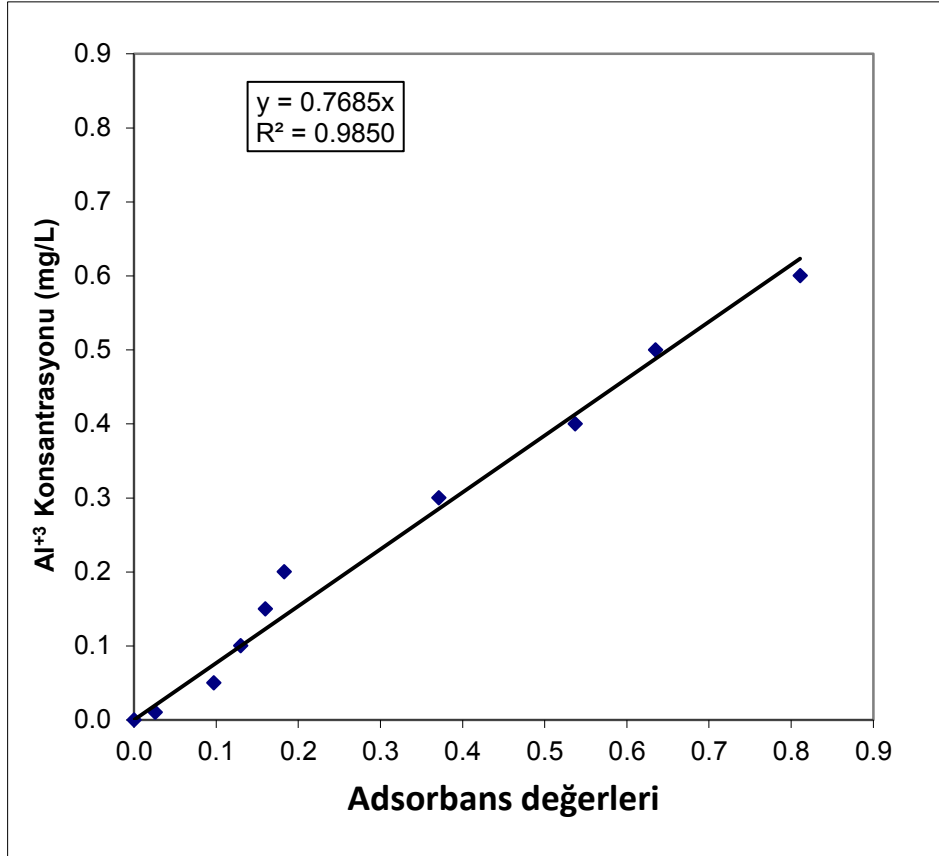
Adsorpsiyon deneyi süresince adsorplanmadan ortamda kalan alüminyum miktarı, kullanılan alüminyum kiti (merck) vasıtasıyla spektrofotometrik olarak 538 nm'de adsorbans değerleri okunarak tayin edilmiştir. UV analizleri, SHIMADZU marka UV-150-02 çift ışınli spektrofotometre ile yapılmıştır.

### 7.8 Kalibrasyon Eğrisinin Oluşturulması

Adsorplanan alüminyum konsantrasyonunun tayini için alüminyum çözeltisinden belirli hacimlerde örnek alınmış ve destile su ile 10 mL'ye tamamlanmıştır. Hazırlanan alüminyum çözeltilerinin adsorbans değerleri UV-spektrofotometrede 538 nm dalga boyunda okunmuştur. Çizelge 7.2'de kalibrasyon eğrisini oluşturmak için kullanılan alüminyum çözeltilerinin konsantrasyonları ve ortalama adsorbans değerleri verilmiştir. Elde edilen veriler, Şekil 7.9'da grafiksel olarak sunulmuştur. İstatistiksel veriler; regresyon katsayısı değeri ( $R^2$ ) 0.9850 ve standart sapma değeri ( $\sigma$ ) 0.0041 olarak bulunmuştur. Elde edilen denklem kullanılarak, okunan adsorbans değeri alüminyum konsantrasyonuna çevrilmiştir.

Çizelge 7.2 Kalibrasyon eğrisi verileri

Al <sup>3+</sup> konsantrasyonu (mg/L)	Ortalama Adsorbans Değerleri
0	0
0.01	0.026
0.05	0.097
0.1	0.130
0.15	0.161
0.2	0.183
0.3	0.320
0.4	0.537
0.5	0.635
0.6	0.811



Şekil 7.9 Alüminyum çözeltisinin kalibrasyon verileri

## 7.9 Hesaplamalar

Analiz edilen örneklere ait alüminyum konsantrasyon değerleri, Eşitlik (7.1) kullanılarak hesaplanmıştır. Konsantrasyon değerleri belirlenmiş olan örneklerin seyreltme faktöründe göz önünde bulundurularak alüminyumun % adsorpsiyon değerleri Eşitlik (7.2) kullanılarak hesaplanmıştır.

$$C \text{ (mg/L)} = 0.7685 * (\text{Adsorbans değeri}) \quad (7.1)$$

$$\text{Adsorplanan \% alüminyum} = \left( \frac{C_0 - C_t}{C_0} \right) * 100 \quad (7.2)$$

Eşitlik (7.2)'de;

$C_0$ : Alüminyumun başlangıç çözeltisindeki konsantrasyonunu (mg/L),

$C_t$ : Herhangi bir t anında çözeltide kalan alüminyum konsantrasyonunu (mg/L),

ifade etmektedir.

Herhangi bir t anında adsorplanan alüminyum miktarı Eşitlik (7.3) kullanılarak hesaplanmıştır.

$$Q_e = \frac{(C_0 - C_t) * V}{M} \quad (7.3)$$

Eşitlik (7.3)'de;

$q_e$ : Adsorbanın birim kütlesi başına adsorpladığı alüminyum miktarı (mg/g)

V: Çözelti hacmi (L)

M: Kullanılan biosorbentin kütlesi (g)

$C_0$ : Alüminyumun başlangıç çözeltisindeki konsantrasyonunu (mg/L)

$C_t$ : Herhangi bir t anında çözeltide kalan alüminyum konsantrasyonunu (mg/L)

ifade etmektedir.

### ARAŞTIRMA BULGULARI

#### 8.1 Biosorbent Numunelerine ait FT-IR Analizleri

Adsorpsiyon öncesi ve sonrası olmak üzere kullanılan biosorbent numunelerinin FT-IR (Fourier Transform Infra Red) analizleri yapılmıştır.

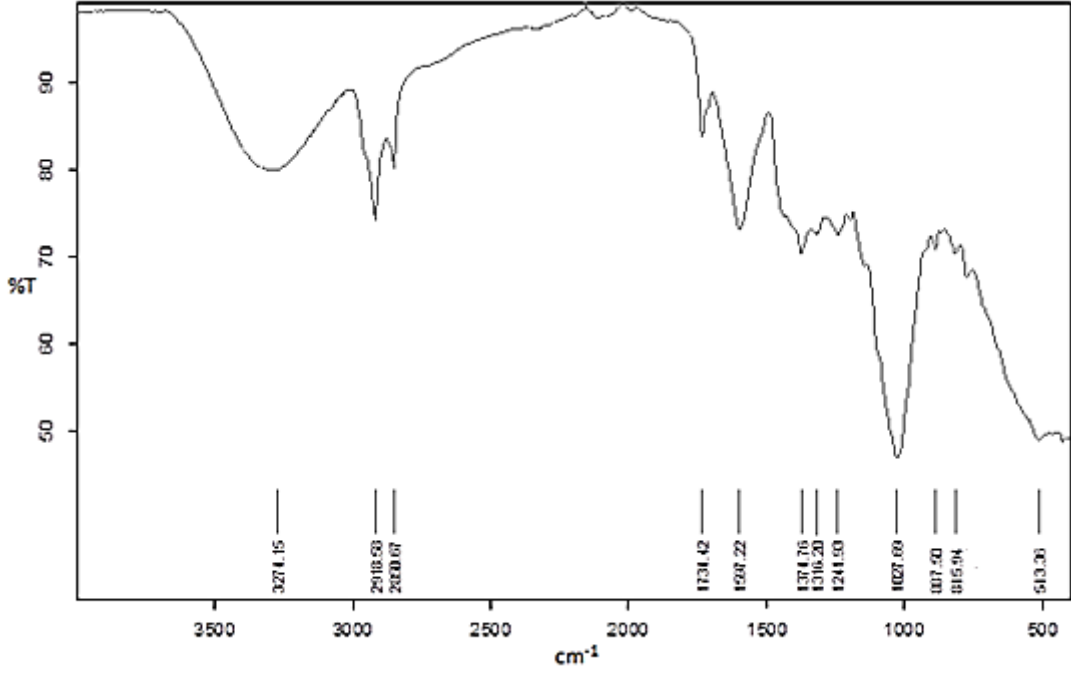
##### 8.1.1 Muz kabuğu numunesine ait FT-IR analizi

FT-IR (Fourier Transform Infra Red) analizleri gerçekleştirilen muz kabuğu numunelerinin adsorpsiyon öncesi ve sonrası FT-IR spektrumları Şekil 8.1 ve 8.2'de sırası ile verilmiştir.

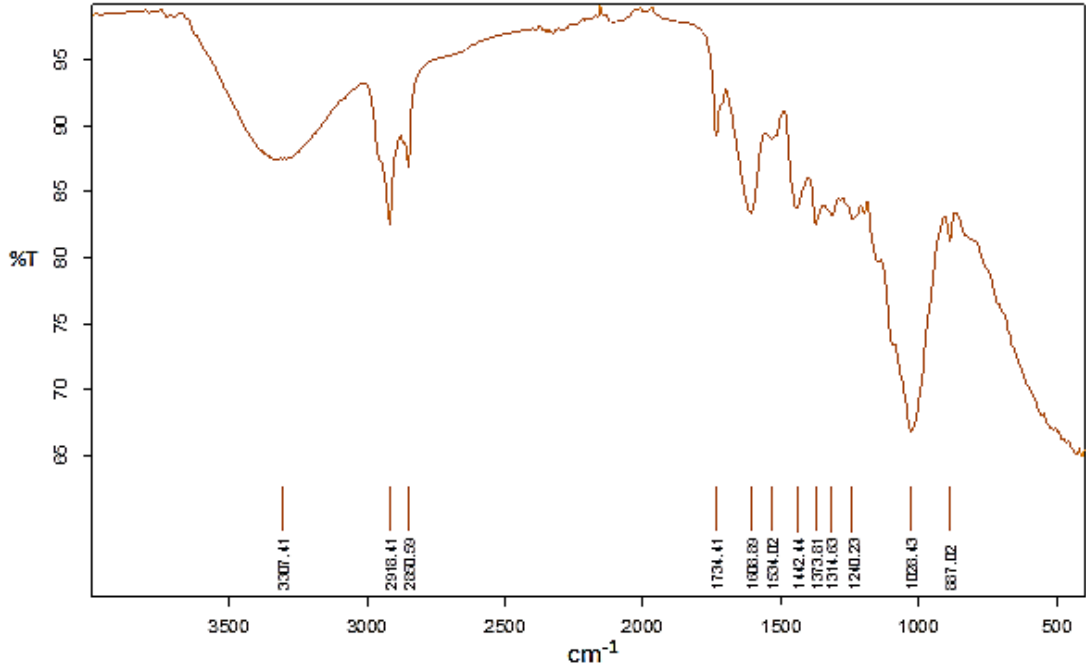
Şekil 8.1'de verilen spektrumda adsorpsiyon öncesi, 3274.1, 2918.5, 2850.6, 1734.4, 1597.2, 1374.7, 1027.6 ve 887.5  $\text{cm}^{-1}$  pikleri gözlemlenmiştir. Özvere vd. (2012) [95] ve Thirumavalavan vd.'nin (2011) [96] gerçekleştirdikleri çalışmalarda belirtildiği üzere pik değerleri sırasıyla, -OH gerilme bandı, C-H bandı, C-H ve CO bir karboksilik asit veya ester gerilme bandı, COO- anyon gerilme bandı, OH bandı, C-O ester veya eter gerilme bandı ve N-H amin deformasyonunun olduğu gerilme bandını göstermektedir. Suantak vd. (2012) [97] tarafından yapılan çalışmada, 1027.6 - 513.3  $\text{cm}^{-1}$  arasındaki pikler Si-O germe bandını ve Si-O bandında silika varlığını göstermesi olarak yorumlanmıştır.

Şekil 8.2'de verilen spektrumda adsorpsiyon sonrası, bazı pik değerlerinde azda olsa azalma görülmüştür. Bu pikler, 1534.02, 1373.81, 1240.23, 887.02  $\text{cm}^{-1}$  olmak üzere,

Özvere vd. (2012) [95] ve Thirumavalavan vd.'nin (2011) [96] gerçekleştirdikleri çalışmalar ile bu pik değerlerinin C-H ve C-O gerilme bandlarında azalmayı işaret ettiği tespit edilmiştir.



Şekil 8.1 Muz kabuğu numunesinin adsorpsiyon öncesi FT-IR spektrumu

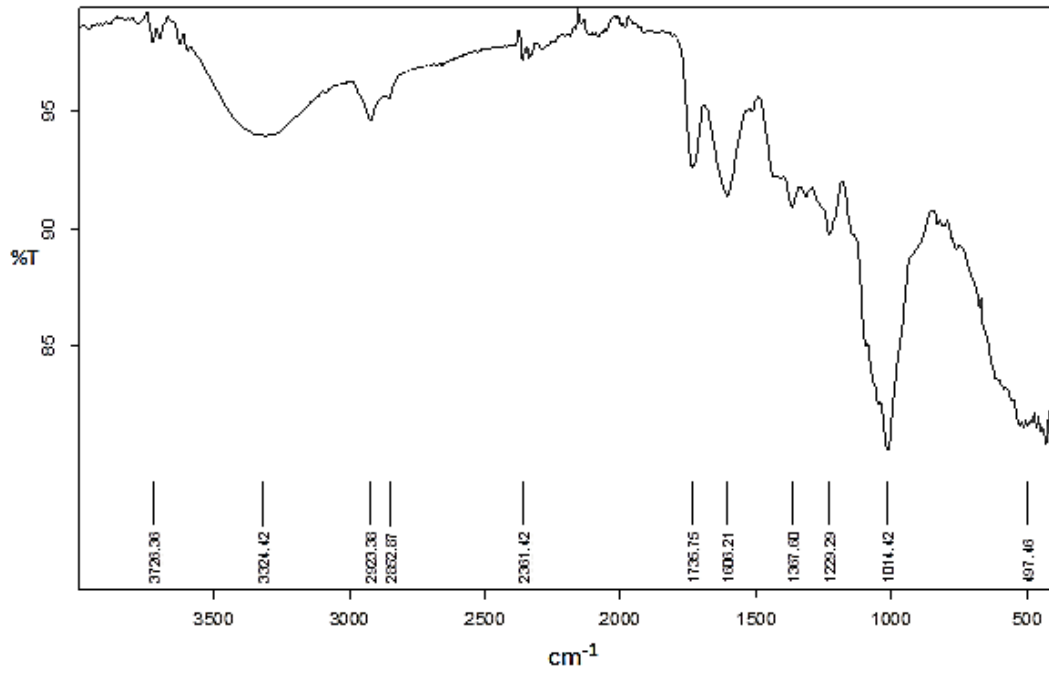


Şekil 8.2 Muz kabuğu numunesinin adsorpsiyon sonrası FT-IR spektrumu

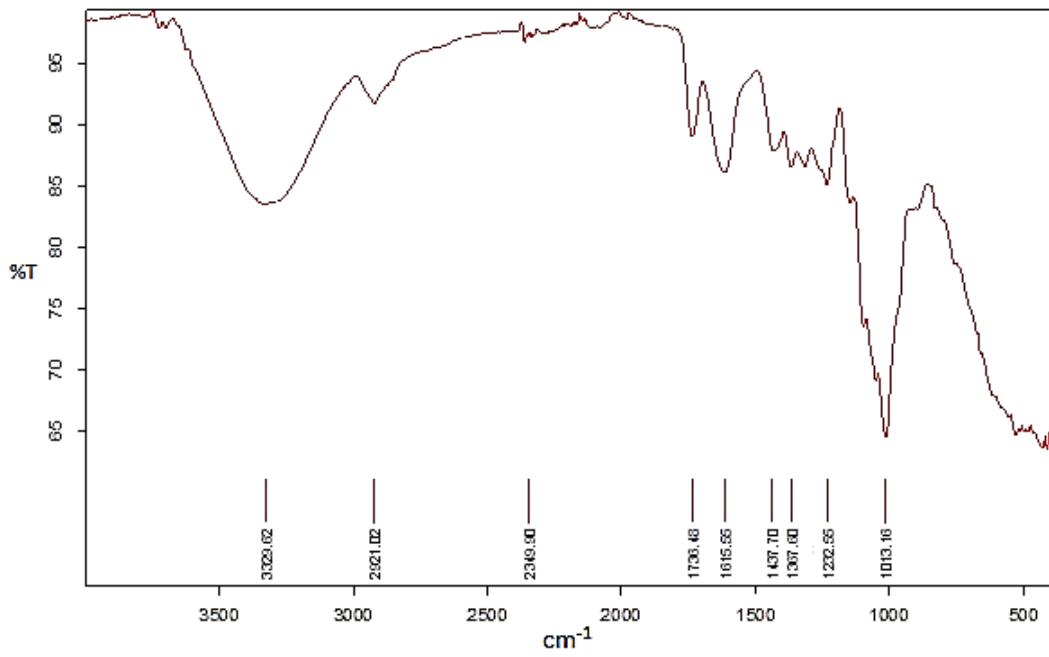
### 8.1.2 Limon kabuğu numunesine ait FT-IR analizi

FT-IR (Fourier Transform Infra Red) analizleri gerçekleştirilen limon kabuğu numunelerinin adsorpsiyon öncesi ve sonrası FT-IR spektrumları Şekil 8.3 ve 8.4'de sırası ile verilmiştir.

Şekil 8.3'de verilen spektrumda adsorpsiyon öncesi, 3726.36, 2923.38, 2852.87, 1735.75, 1606.21, 1367.60, 1014.42, 497.46  $\text{cm}^{-1}$  pikleri gözlemlenmiştir. Görüldüğü üzere pik aralıkları muz kabuğu için yapılan analizde elde edilen pik değerleri ile yakınlık göstermektedir. Özvere vd. (2012) [95] ve Thirumavalavan vd.'nin (2011) [96] gerçekleştirdikleri çalışmalarda belirtildiği üzere bu pik değerleri sırasıyla, -OH gerilme bandı, C-H bandı, C-H ve CO bir karboksilik asit veya ester gerilme bandı, COO- anyon gerilme bandı, OH bandı, bu dalga boyunda C-H titreşimini ve birincil alkollerdeki C-O deformasyonuna bağlı olarak pik oluşumunu belirtmektedir. Şekil 8.4'de verilen spektrumda ise adsorpsiyon sonrası, OH ve C-H bandlarını içeren pikler önemli bir azalma kaydederek, 3329.62, 2921.02, 2349.90  $\text{cm}^{-1}$  olarak gözlemlenmiştir.



Şekil 8.3 Limon kabuğu numunesinin adsorpsiyon öncesi FT-IR spektrumu



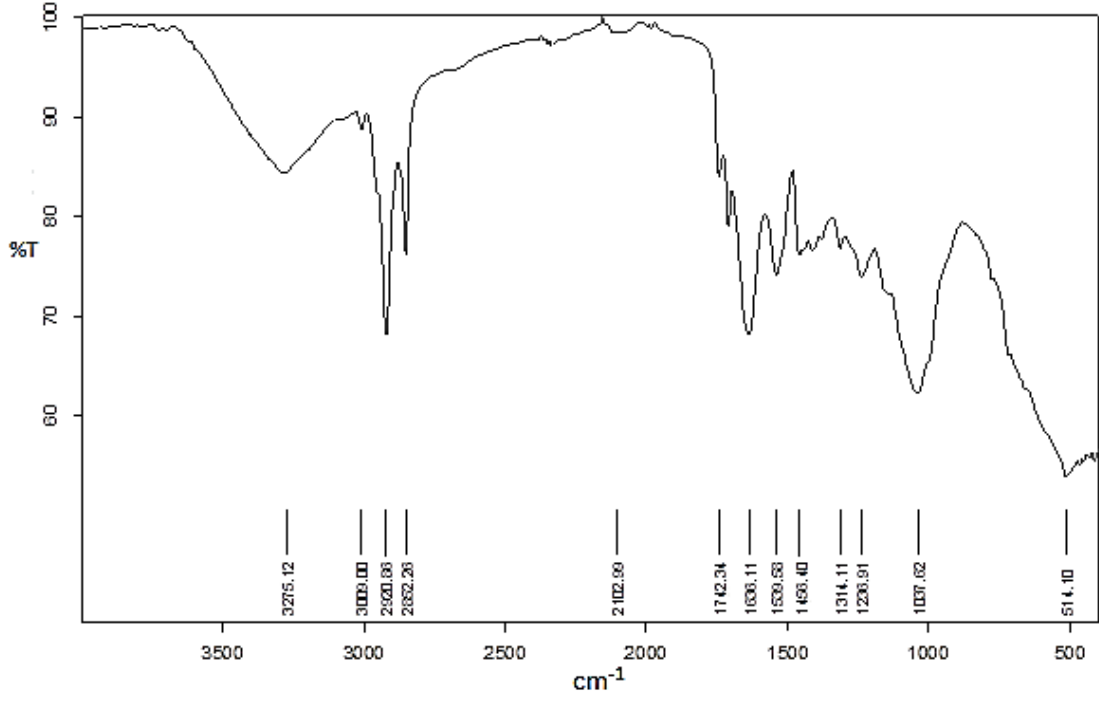
Şekil 8.4 Limon kabuğu numunesinin adsorpsiyon sonrası FT-IR spektrumu

### 8.1.3 Susam küspesi numunesine ait FT-IR analizi

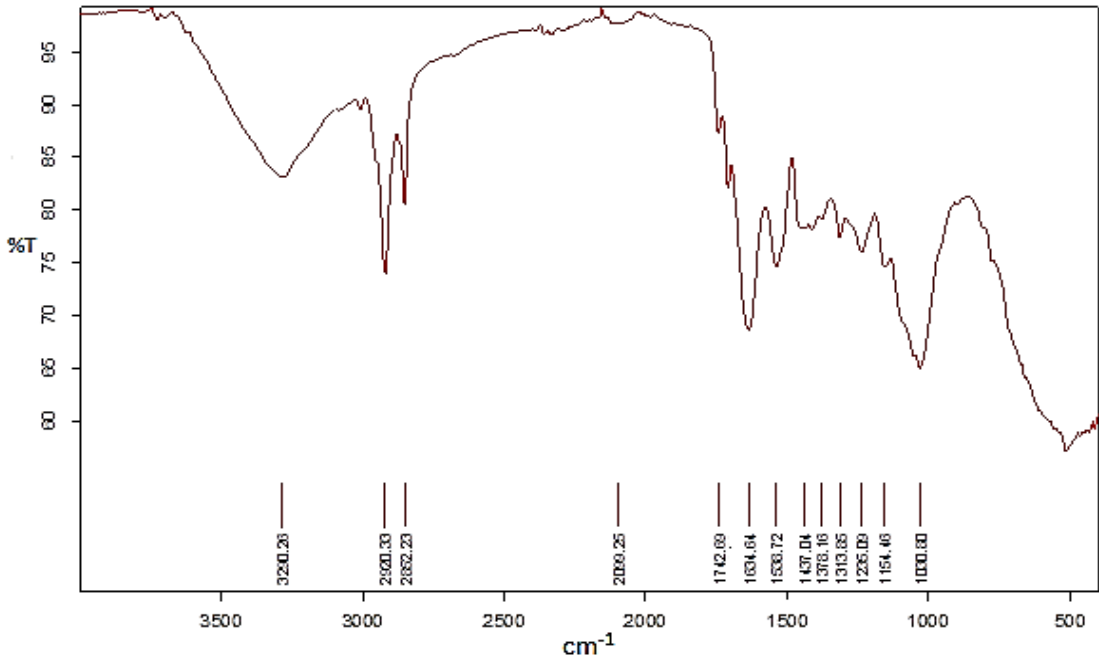
FT-IR (Fourier Transform Infra Red) analizleri gerçekleştirilen susam küspesi numunelerinin adsorpsiyon öncesi ve sonrası FT-IR spektrumları Şekil 8.5 ve 8.6'da sırası ile verilmiştir.

Özvere vd. (2012) [95] ve Thirumavalavan vd.'nin (2011) [96] gerçekleştirdikleri çalışmalar ile elde edilen pik değerleri yorumlanmıştır. Buna göre Şekil 8.5'de verilen spektrumda adsorpsiyon öncesi,  $3275.12 \text{ cm}^{-1}$  dalga boyunda gözlenen pik O-H gruplarından kaynaklandığı tespit edilmiştir.  $2920.86 \text{ cm}^{-1}$ 'deki pik C-H titreşim bandının varlığını göstermektedir ve alkil gruplarına bağlı oluşmuştur.  $1742.34 \text{ cm}^{-1}$ 'deki pik COO- anyon gerilme bandını ifade etmektedir.  $1636.11 \text{ cm}^{-1}$  piki C=O titreşimine bağlı olarak oluşmuştur ve bu pik ester, keton ya da alifatik asit gruplarının mevcut olduğunu göstermektedir.

$1539.58 \text{ cm}^{-1}$ 'deki pik aromatik halka titreşimleri sebebiyle oluşmaktadır.  $1314.11 \text{ cm}^{-1}$  dalga boyu C-H bandı varlığını işaret etmektedir.  $1236.91$  dalga boyu bileşiklerin içerdiği C-O grubundan dolayı oluşmuştur.  $1037.62 \text{ cm}^{-1}$ 'de pikler aromatik halkadaki C-H titreşimine ve birincil alkollerdeki C-O deformasyonuna bağlı olarak oluşmuştur. Şekil 8.6'da elde edilen spektrumda adsorpsiyon sonrası, bazı piklerde  $2920.33$ ,  $1708.70$ ,  $1634.64$ ,  $1534.72$ ,  $1313.85$ ,  $1235.09$ ,  $1030.80 \text{ cm}^{-1}$  olmak üzere azalma gözlemlenmiştir.



Şekil 8.5 Susam küsesi numunesinin adsorpsiyon öncesi FT-IR spektrumu



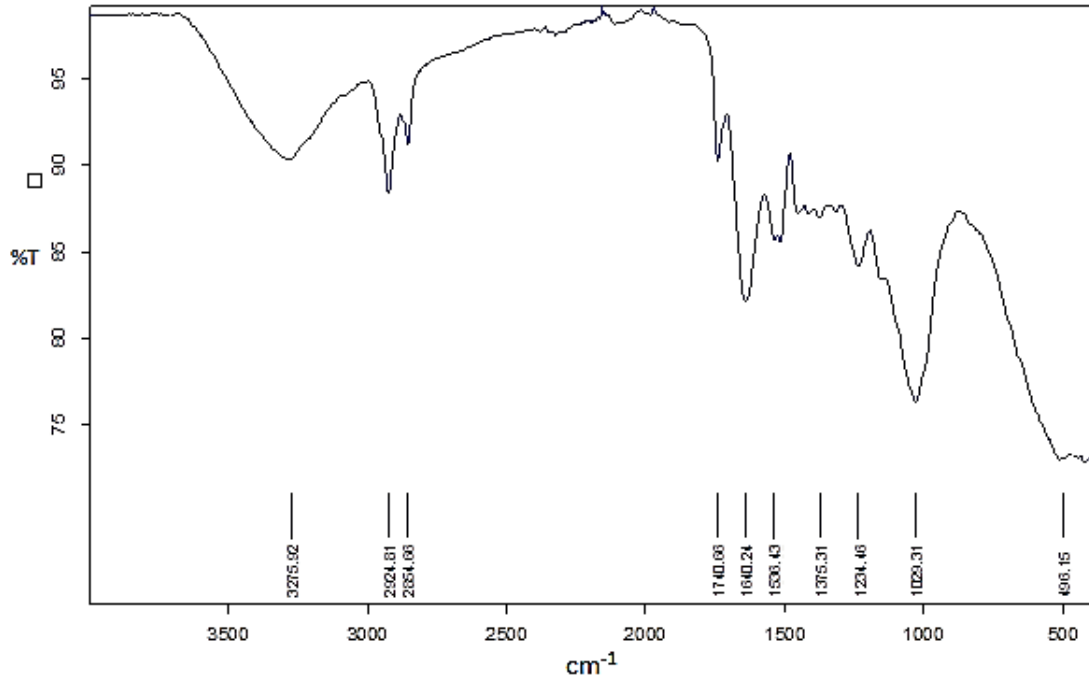
Şekil 8.6 Susam küsesi numunesinin adsorpsiyon sonrası FT-IR spektrumu

#### 8.1.4 Aspir küspesi numunesine ait FT-IR analizi

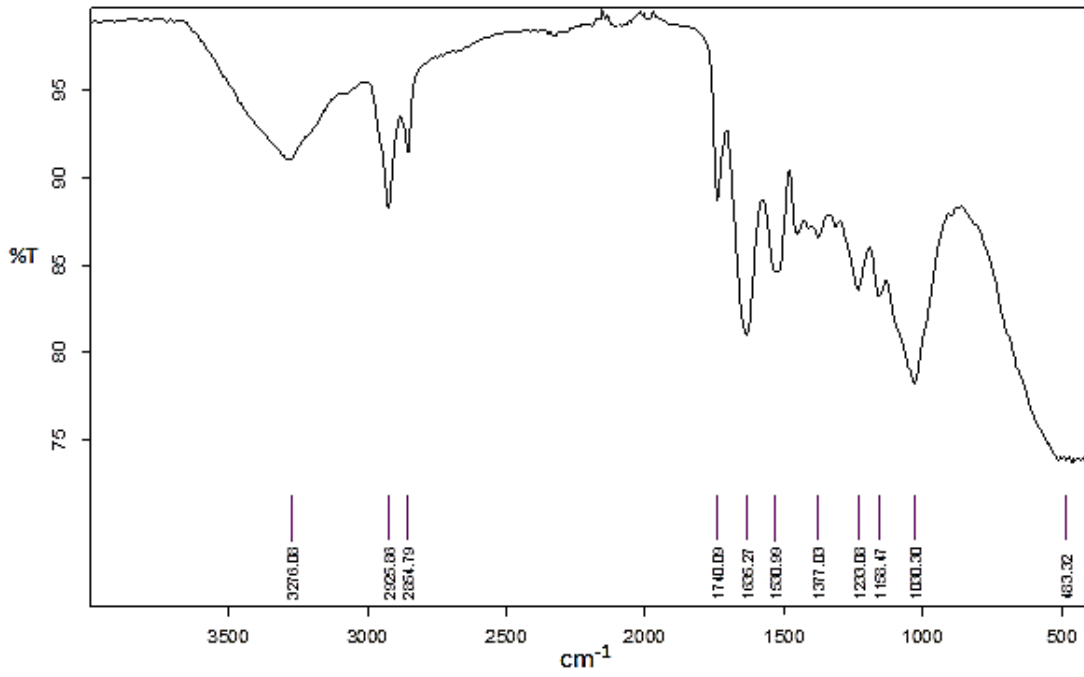
FT-IR (Fourier Transform Infra Red) analizleri gerçekleştirilen aspir küspesi numunelerinin adsorpsiyon öncesi ve sonrası FT-IR spektrumları Şekil 8.7 ve 8.8'de sırası ile verilmiştir.

Özvere vd. (2012) [95] ve Thirumavalavan vd.'nin (2011) [96] gerçekleştirdikleri çalışmalar ile elde edilen pik değerleri yorumlanmıştır. Buna göre Şekil 8.7'de verilen spektrumda adsorpsiyon öncesi,  $3275.92\text{ cm}^{-1}$  dalga boyunda gözlenen pik O-H gruplarından kaynaklanmaktadır.  $2924.81\text{ cm}^{-1}$ 'deki pik alkil gruplarına bağlı olarak C-H titreşim bandının varlığını göstermektedir.  $1740.66\text{ cm}^{-1}$ 'deki dalga boyu COO<sup>-</sup> anyon gerilme bandını ifade etmektedir.  $1640.24\text{ cm}^{-1}$ 'deki dalga boyu C=O titreşimine bağlı olarak oluşmuştur ve bu pik ester, keton ya da alifatik asit gruplarının varlığını göstermektedir.

$1536.43\text{ cm}^{-1}$ 'deki pik aromatik halka titreşimleri sebebiyle meydana gelmektedir.  $1234.46\text{ cm}^{-1}$ 'deki pik bileşiklerin içerdiği C-O grubuna bağlı olarak oluşmuştur.  $1029.31\text{ cm}^{-1}$ 'de pikler aromatik halkadaki C-H titreşimine ve birincil alkollerdeki C-O deformasyonuna bağlı olarak görülmüştür. Şekil 8.8'de verilen spektrumda adsorpsiyon sonrası, 3276.08, 2925.86, 2854.79, 1740.09, 1635.27, 1530.99, 1233.08, 1030.30 pikleri gözlemlenmiştir.



Şekil 8.7 Aspir küspesi numunesinin adsorpsiyon öncesi FT-IR spektrumu



Şekil 8.8 Aspir küspesi numunesinin adsorpsiyon sonrası FT-IR spektrumu

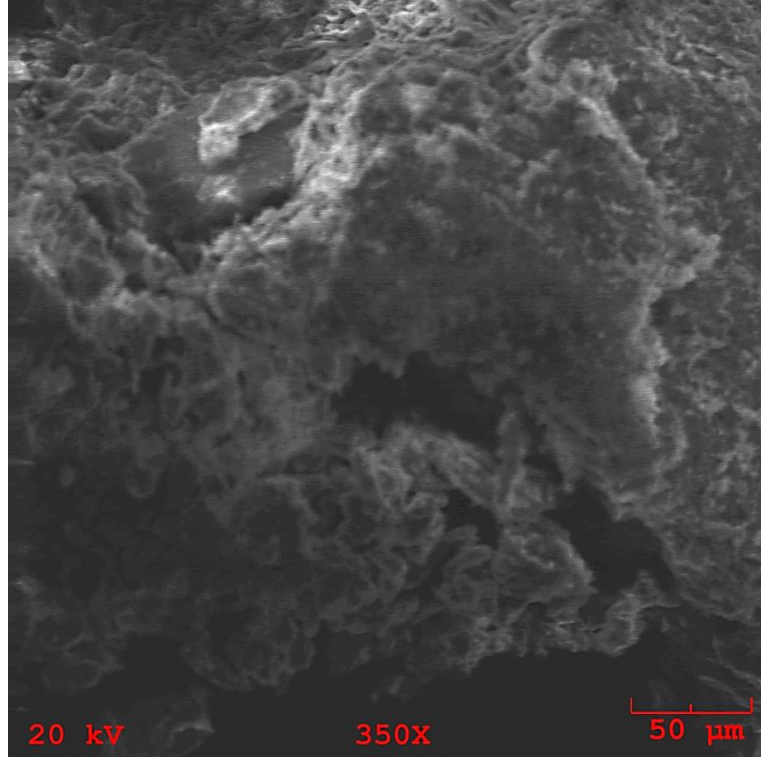
## **8.2 Biosorbent Numunelerine ait SEM Analizleri**

### **8.2.1 Muz kabuđu numunesine ait SEM analizi**

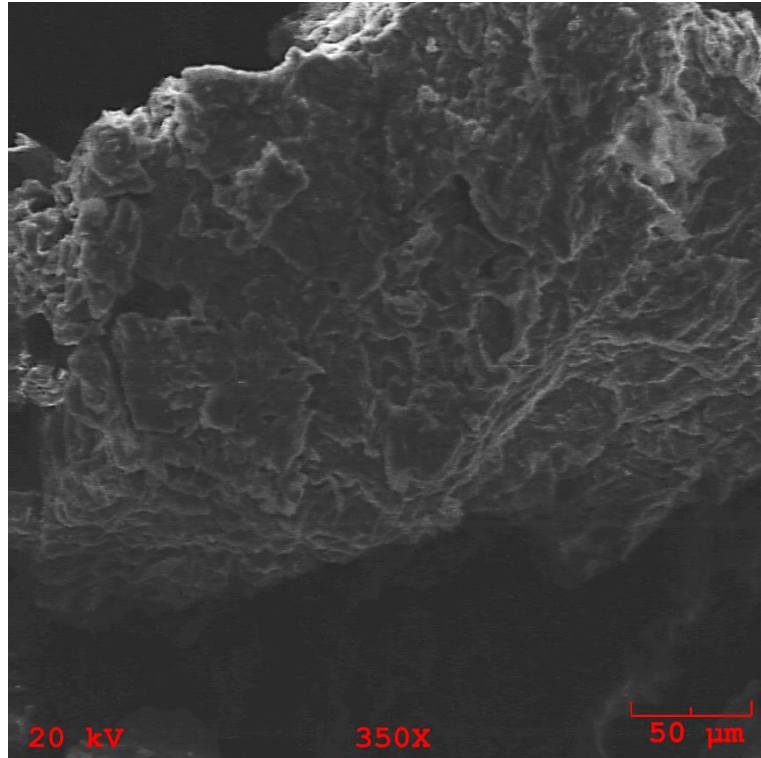
Adsorpsiyon iřlemi ncesi ve sonrasında kullanılan muz kabuđu numunelerinin SEM EDX analizleri gerekleřtirilmiřtir (řekil 8.9 ve 8.10). Elde edilen sonular, kurutulmuř muz kabuđu rneđinin yapısında %49.60 C, %28.34 O, %12.02 K, %1.46 Si, %2.52 Ca, %0.56 Na ve %0.67 Al olduđu; adsorpsiyon sonrasında incelenen numune yapısında ise %58 C, %29.01 O, %9.07 K, %2.98 Al, %0.62 Ca ve %0.23 Na olduđu gzlemlenmiřtir. SEM grntlerinde adsorpsiyon ncesi ve sonrası aıka grlen morfolojik deđiřimin, muz kabuđunun alminiyumu adsorplamasına bađlı olduđunu desteklemektedir.

### **8.2.2 Limon kabuđu numunesine ait SEM analizi**

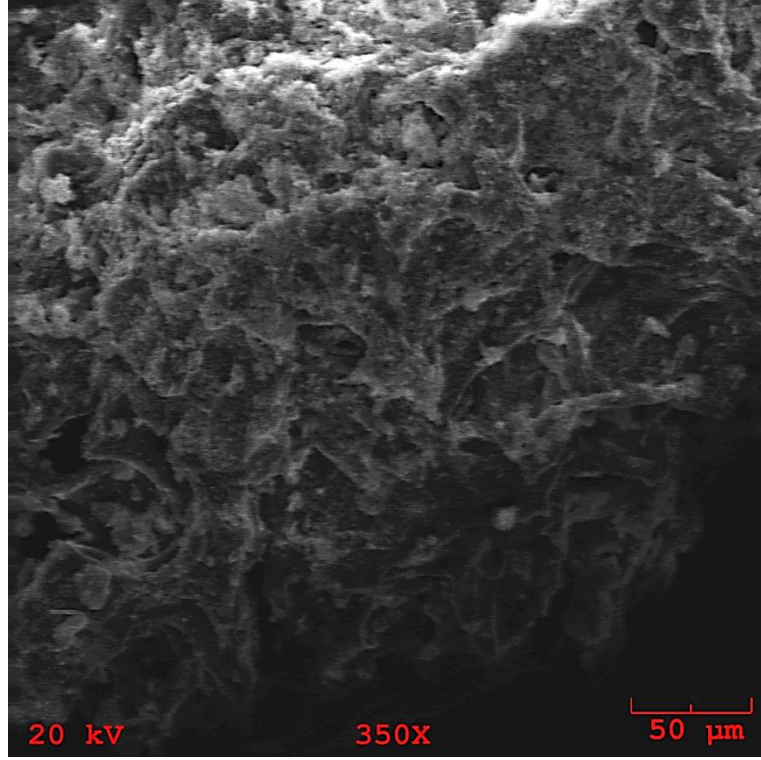
Adsorpsiyon iřlemi ncesi ve sonrasında kullanılan limon kabukları numunelerinin SEM EDX analizleri gerekleřtirilmiřtir (řekil 8.11 ve 8.12). Elde edilen sonular, kurutulmuř limon kabuđu rneđinin yapısında %63.89 C, %25.16 O, %1.07 S, %6.21 Ca ve %4.67 Cl olduđu, adsorpsiyon sonrasında incelenen numune yapısında ise %52.3 C, %19.21 O, %16.9 Cl, %5.57 Al, %3.83 Ca ve %2.19 S olduđu gzlemlenmiřtir. SEM grntlerinde adsorpsiyon ncesi ve sonrası aıka grlen morfolojik deđiřimin, limon kabuđunun alminiyumu adsorplamasına bađlı olduđunu desteklemektedir.



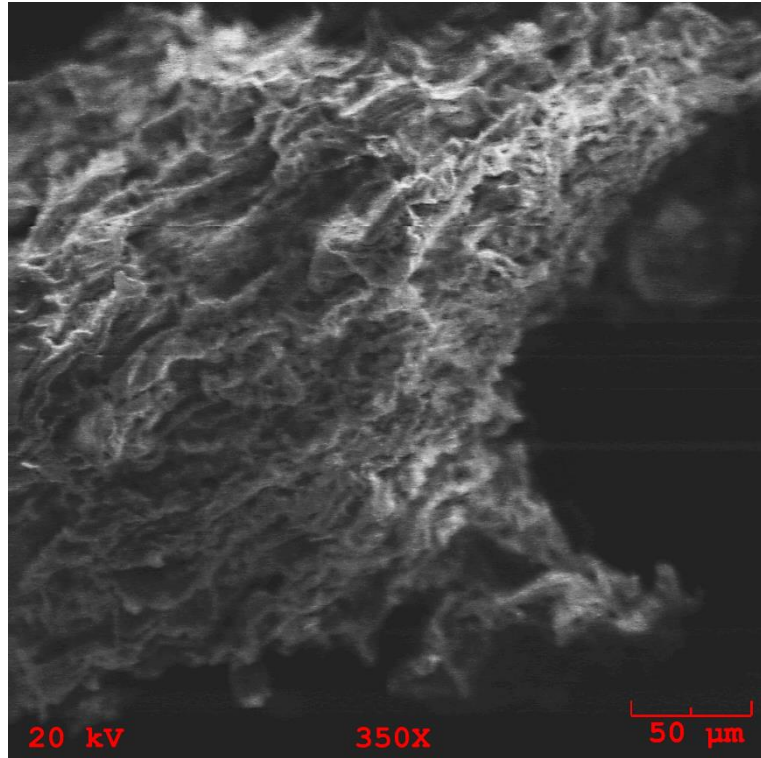
Şekil 8.9 Muz kabuğu numunesinin adsorpsiyon öncesi SEM görüntüsü



Şekil 8.10 Muz kabuğu numunesinin adsorpsiyon sonrası SEM görüntüsü



Şekil 8.11 Limon kabuğu numunesinin adsorpsiyon öncesi SEM görüntüsü



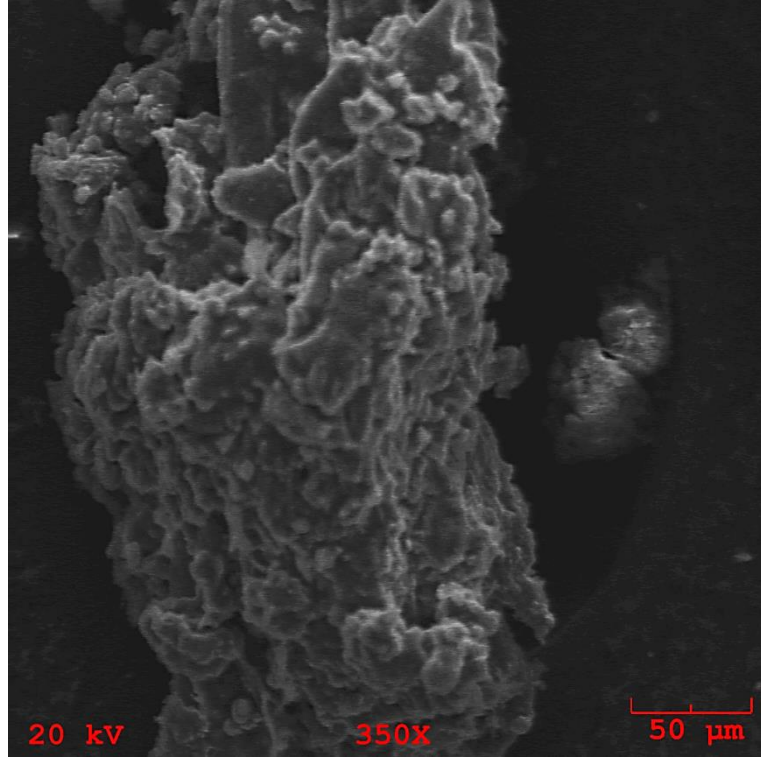
Şekil 8.12 Limon kabuğu numunesinin adsorpsiyon sonrası SEM görüntüsü

### **8.2.3 Susam küspesi numunesine ait SEM analizi**

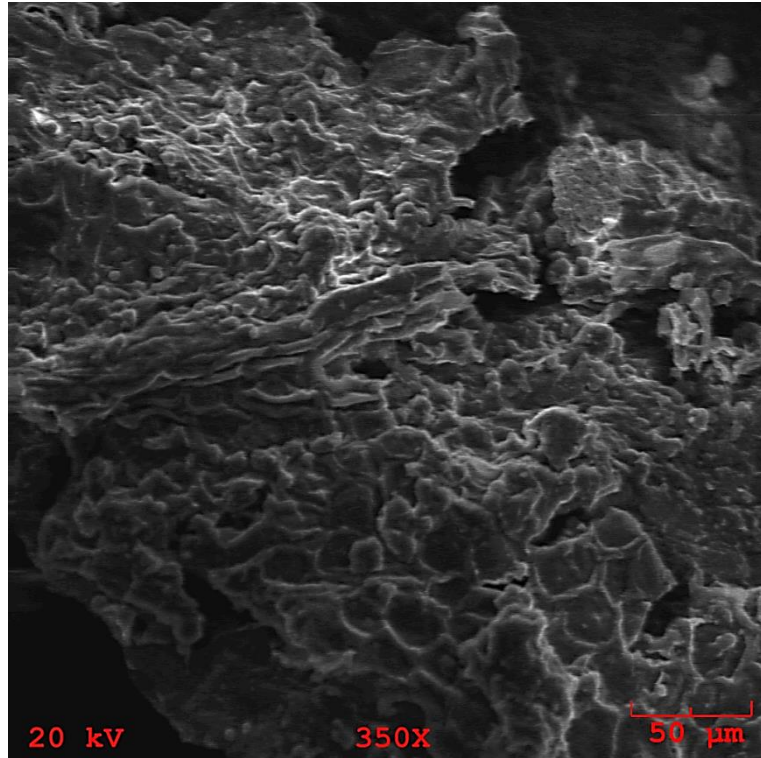
Adsorpsiyon işlemi öncesi ve sonrasında kullanılan susam küspesi numunelerinin SEM EDX analizleri gerçekleştirilmiştir (Şekil 8.13 ve 8.14). Elde edilen sonuçlar, kurutulmuş susam küspesi örneğinin yapısında %67.01 C, %13.91 O, %5.92 Ca, %3.86 K, %3.41 S, %2.13 P, %1.98 Al ve %1.81 Mg olduğu; adsorpsiyon sonrasında incelenen numune yapısında ise %63.23 C, %20.87 O, %7.39 Al, %6.35 Ca ve %2.16 P olduğu gözlemlenmiştir. SEM görüntülerinde adsorpsiyon öncesi ve sonrası açıkça görülen morfolojik değişimin, susam küspesinin alüminyum adsorplamasına bağlı olduğunu desteklemektedir.

### **8.2.4 Aspir küspesi numunesine ait SEM analizi**

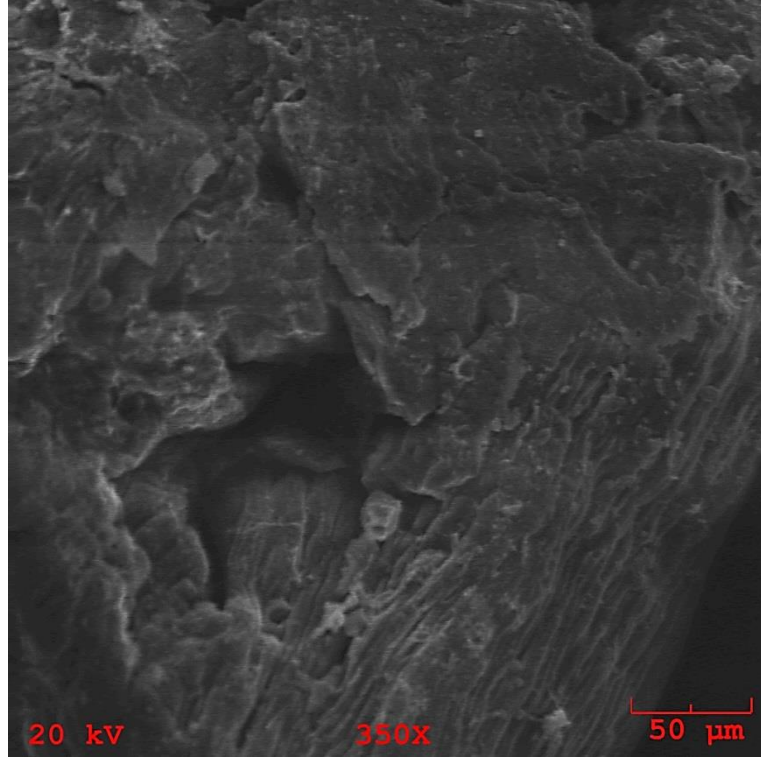
Adsorpsiyon işlemi öncesi ve sonrasında kullanılan aspir küspesi numunelerinin SEM EDX analizleri gerçekleştirilmiştir (Şekil 8.15 ve 8.16). Elde edilen sonuçlar, kurutulmuş aspir küspesi örneğinin yapısında %51.02 C, %31.39 O, %5.72 Ca, %3.86 K, %3.77 S, %2.43 P ve %1.81 N olduğu; adsorpsiyon sonrasında incelenen numune yapısında ise %49.12 C, %32.03 O, %6.44 Al, %6.35 Ca ve %1.16 N olduğu gözlemlenmiştir. SEM görüntülerinde adsorpsiyon öncesi ve sonrası açıkça görülen morfolojik değişimin, aspir küspesinin alüminyum adsorplamasına bağlı olduğunu desteklemektedir.



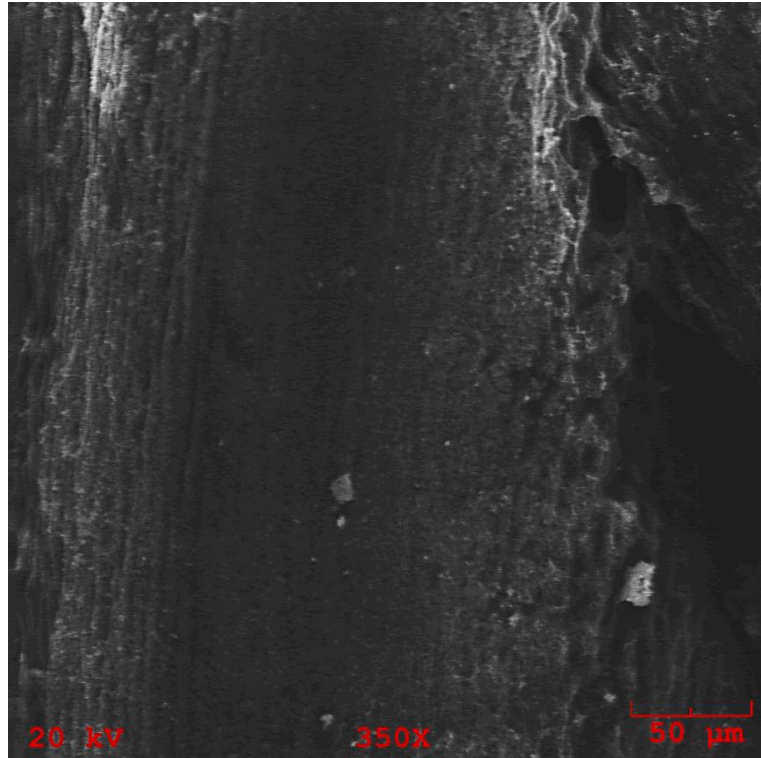
Şekil 8.13 Susam küspesi numunesinin adsorpsiyon öncesi SEM görüntüsü



Şekil 8.14 Susam küspesi numunesinin adsorpsiyon sonrası SEM görüntüsü



Şekil 8.15 Aspir küspesi numunesinin adsorpsiyon öncesi SEM görüntüsü



Şekil 8.16 Aspir küspesi numunesinin adsorpsiyon sonrası SEM görüntüsü

### **8.3 Alüminyum Adsorpsiyonu Çalışmaları İçin Deneysel Tasarımın Uygulanması**

Alüminyumun muz kabuğu, limon kabuğu, susam küspesi ve aspir küspesi ile adsorpsiyonu prosesine pH, biosorbent miktarı ve temas süresi parametrelerinin etkilerinin eş zamanlı incelenmesi amacıyla adsorpsiyon deneyleri, deneysel tasarım yöntemleri uygulanarak Design Expert 9.0 programının önerdiği deney planları çerçevesinde gerçekleştirilmiştir. Deneylerden elde edilen veriler istatistiksel olarak incelenmiş ve yorumlanmıştır. 2k faktöriyel tasarım, 3k faktöriyel tasarım ve Box-Behnken tasarım en uygun deneysel tasarım metodunun belirlenmesi amacıyla uygulanmıştır.

Elde edilen deneysel veriler Design Expert 9.0 programına transfer edilerek adsorpsiyon prosesleri için model denklemler geliştirilmiştir. Oluşturulan modellerin istatistiksel analizleri yapılmıştır. Böylece en uygun model denklemi ve deneysel tasarım yöntemi seçilmiştir. Seçilen tasarım yöntemi için üç boyutlu cevap yüzey grafikleri oluşturulmuş ve proses parametrelerinin birbirleri arasındaki etkileşimleri ve cevap yüzeyi üzerindeki etkileşimleri yorumlanmıştır. Çizelge 8.1'de alüminyum adsorpsiyonu prosesine uygulanan farklı tasarım yöntemleri için incelenen faktörlerin seviye değerleri verilmiştir.

Çizelge 8.1 Deneysel tasarım için incelenen faktörlerin seviye değerleri

Seviye	pH	Biosorbent Miktarı (g)	Temas Süresi (dak)
<b><i>2<sup>k</sup> Faktoriyel Tasarımı</i></b>			
-1	2	0.05	10
+1	6	0.25	30
<b><i>Box-Behnken Tasarımı</i></b>			
-1	2	0.05	10
0	4	0.15	20
+1	6	0.25	30
<b><i>3<sup>k</sup> Faktoriyel Tasarımı</i></b>			
-1	2	0.05	10
0	4	0.15	20
+1	6	0.25	30

### 8.3.1 Muz kabuğu numunesine ait sonuçlar

#### 8.3.1.1 Muz kabuğu numunesine ait 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım sonuçları

2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım yöntemi uygulanarak, gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneyleri sonucunda elde edilen % adsorpsiyon değerleri Çizelge 8.2’de verilmiştir. Deneyler; farklı pH, biosorbent miktarı ve temas sürelerinde gerçekleştirilen 12 deney ve orta noktada 5 tekrar deneyinden oluşmaktadır.

Çizelge 8.2’de görülen X<sub>1</sub>, X<sub>2</sub> ve X<sub>3</sub> kodları sırasıyla pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) parametrelerini ifade etmektedir. Çizelge 8.2 incelendiğinde en yüksek % adsorpsiyon değerinin pH 6, 0.25 g biosorbent miktarı, 30 dak parametre değerlerinde %98.6 giderim, en düşük % adsorpsiyon değerinin ise pH 2, 0.05 g biosorbent miktarı, 10 dak parametre değerlerinde %24.2 giderim elde edildiği görülmektedir. Orta noktalarda gerçekleştirilen 5 tekrar deneyi sonucu elde edilen % adsorpsiyon değerlerinin ise birbirine yakın olduğu gözlemlenmiştir. Elde edilen bu sonuç, deneysel hataların başarıyla minimize edildiğini göstermektedir.

Çizelge 8.2 Muz kabuğu numunesine ait 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım ile elde edilen deneysel veriler

Deney No	X <sub>1</sub>	X <sub>2</sub>	X <sub>3</sub>	% Adsorpsiyon
1	4	0.15	20	83.8
2	6	0.05	30	80.9
3	2	0.05	30	40.8
4	4	0.15	20	83.5
5	2	0.25	10	74.5
6	2	0.05	10	24.2
7	4	0.15	20	84.2
8	4	0.15	20	88.7
9	6	0.25	30	98.6
10	4	0.15	20	80.1
11	2	0.25	30	82.3
12	6	0.25	10	94.0
13	6	0.05	10	75.9

### 8.3.1.2 Muz kabuğu numunesine ait 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak model denklemin geliştirilmesi

Alüminyumun adsorpsiyon prosesi için 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak farklı pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) değerleri ile elde edilen deney verileri kullanılarak Design Expert 9.0 programı vasıtasıyla model denklemler geliştirilmiştir. Quadratik model seçilerek geliştirilen model denklemler sırasıyla Eşitlik (8.1)'de, varyans (ANOVA) analizi sonuçları Çizelge 8.3'de verilmiştir.

Çizelge 8.3 Muz kabuğu numunesine ait 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları

Kaynak	Kareler Toplamı	Serbestlik Derecesi	Karelerin Ortalaması	F-Değeri	P-Değeri
Model	4462.44	3	1487.48	18.54	0.0003
Kalan	722.05	9	80.23		
Toplam	5184.49	12			

Quadratik model için önerilen denklemin prosesi ifade eden en uygun model denklem haline dönüşmesi için, güvenilirlik seviyesi %95'in altında olan terimler yani P değerinin 0.05'den fazla olduğu terimler model denklemden çıkarılmıştır.

$$Y_{muz\ kabuğu} = 13.22500 * X_1 + 299.50000 * X_2 - 35.00000 * X_1 * X_2 - 0.55577 \quad (8.1)$$

Eşitlik 8.1 incelendiğinde, pH ve biosorbent miktarı parametrelerinin artması ile % adsorpsiyon değerinin arttığı görülmektedir. 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım yöntemi uygulandığında elde edilen model denkleme bakılarak, biosorbent miktarının adsorpsiyon prosesi üzerinde daha fazla etkili olduğu görülmektedir. Ayrıca, denklem katsayıları incelendiğinde elde edilen % adsorpsiyon verilerinin (pH\*biosorbent miktarı) terimi artması ile azaldığı görülmektedir.

Design Expert 9.0 programı ile elde edilen model denklemin güvenilirlik değeri, ANOVA analizi sonucu %99.97'nin üzerinde bulunmuştur. 18.54 olarak hesaplanan F değerinin

uygunluđu, 0.8607 olarak hesaplanan korelasyon katsayısının model denklemin uygulanabilir olduđunu göstermiştir.

### 8.3.1.3 Muz kabuđu numunesine ait Box-Behnken tasarım sonuçları

Box-Behnken tasarım yöntemi uygulanarak gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneyleri sonucunda elde edilen % adsorpsiyon deđerleri Çizelge 8.4'de verilmiştir. Deneyler; farklı pH, biosorbent miktarı ve temas sürelerinde gerçekleştirilen 8 deney ve orta noktada 5 tekrar deneyinden oluşmaktadır. Çizelge 8.4'de görülen  $X_1$ ,  $X_2$  ve  $X_3$  kodları sırasıyla pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) parametrelerini ifade etmektedir.

Çizelge 8.4 Muz kabuđu numunesine ait Box-Behnken tasarımı ile elde edilen deneysel veriler

Deney No	$X_1$	$X_2$	$X_3$	% Adsorpsiyon
1	4	0.25	30	92.7
2	2	0.25	20	83.2
3	4	0.15	20	83.8
4	4	0.15	20	84.2
5	4	0.25	10	81.6
6	4	0.05	30	56.8
7	4	0.15	20	84.2
8	4	0.15	20	88.7
9	6	0.15	30	97.5
10	6	0.15	10	92.3
11	4	0.15	20	80.1
12	6	0.05	20	78.4
13	2	0.15	30	57.4
14	4	0.05	10	44.1
15	2	0.15	10	54.0
16	6	0.25	20	96.2
17	2	0.05	20	40.7

Çizelge 8.4 incelendiđinde en yüksek % adsorpsiyon deđerinin pH 6, 0.15 g biosorbent miktarı, 30 dakika deney koşullarında %97.5 giderim, en düşük % adsorpsiyon deđerinin ise pH 2, 0.05 g biosorbent miktarı, 20 dakika deney koşullarında %40.7 olarak elde edildiđi görülmektedir. Orta noktalarda (pH 4, 0.15 g biosorbent miktarı ve

20 dak temas süresi) gerçekleştirilen 5 tekrar deneyi sonucu elde edilen % adsorpsiyon değerlerinin ise birbirine yakın olduğu gözlemlenmiştir. Elde edilen bu sonuç, deneysel hataların başarıyla minimize edildiğini göstermektedir.

#### 8.3.1.4 Muz kabuğu numunesine ait Box-Behnken tasarım metodu uygulanarak model denklem geliştirilmesi

Alüminyumun adsorpsiyon prosesi için Box-Behnken tasarım metodu uygulanarak farklı pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) değerleri ile elde edilen deney verileri kullanılarak Design Expert 9.0 programı vasıtasıyla model denklemler geliştirilmiştir. Quadratik model seçilerek geliştirilen model denklem Eşitlik (8.2)'de, varyans (ANOVA) analizi sonuçları ise Çizelge 8.5'de verilmiştir.

Quadratik model için önerilen denklemin prosesi ifade eden en uygun model denklem haline dönüşmesi için, güvenilirlik seviyesi %95'in altında olan terimler yani P değerinin 0.05'den fazla olduğu terimler model denklemden çıkarılmıştır.

Çizelge 8.5 Muz kabuğu numunesine ait Box-Behnken tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları

Kaynak	Kareler Toplamı	Serbestlik Derecesi	Karelerin Ortalaması	F-Değeri	P-Değeri
Model	5143.79	6	857.30	43.99	< 0.0001
Kalan	194.87	10	19.49		
Toplam	5338.66	16			

$$Y_{muz\ kabuğu} = 12.70000 * X_1 + 534.17763 * X_2 + 3.38237 * X_3 - 30.87500 * X_1 * X_2 - 811.84211 * X_2^2 - 0.074434 * X_3^2 - 48.45625 \quad (8.2)$$

Eşitlik 8.2 incelendiğinde, pH, biosorbent miktarı ve temas süresi parametrelerinin artmasının adsorpsiyon prosesinde % adsorpsiyon değerini arttırdığı görülmektedir. Box-Behnken tasarım yöntemi uygulandığında elde edilen model denklemden, biosorbent miktarının adsorpsiyon prosesi üzerinde daha fazla etkili olduğu görülmektedir. Ayrıca, denklem katsayıları incelendiğinde elde edilen % adsorpsiyon verilerinin (pH\*biosorbent miktarı), (biosorbent miktarı\*biosorbent miktarı) ve (temas süresi\*temas süresi) terimlerinin artması ile azaldığı görülmektedir.

Design Expert 9.0 programı ile elde edilen model denklemin güvenilirlik değeri, ANOVA analizi sonucu %99.99'un üzerinde bulunmuştur. 43.99 olarak hesaplanan F değerinin uygunluğu, 0.9635 olarak hesaplanan korelasyon katsayısının katsayısının 1'e olan yakınlığı model denklemin uygulanabilir olduğunu göstermiştir.

#### **8.3.1.5 Muz kabuğu numunesine ait 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım sonuçları**

3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım yöntemi uygulanarak gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneyleri sonucunda elde edilen % adsorpsiyon değerleri Çizelge 8.6'da verilmiştir. Deneyler; farklı pH, biosorbent miktarı ve temas sürelerinde gerçekleştirilen 27 deney ve orta noktada 5 tekrar deneyinden oluşmaktadır. Çizelge 8.6'da görülen X<sub>1</sub>, X<sub>2</sub> ve X<sub>3</sub> kodları sırasıyla pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) parametrelerini ifade etmektedir.

Çizelge 8.6 incelendiğinde en yüksek % adsorpsiyon değerinin pH 6, 0.25 g biosorbent miktarı, 30 dakika temas süresi deney koşullarında %98.6 olarak, en düşük % adsorpsiyon değerinin ise pH 2, 0.05 g biosorbent miktarı, 10 dakika temas süresi deney koşullarında %24.2 olarak elde edildiği görülmektedir. Orta noktalarda gerçekleştirilen 5 tekrar deneyi sonucu elde edilen % adsorpsiyon değerlerinin ise birbirine yakın olduğu gözlemlenmiştir. Elde edilen bu sonuç, deneysel hataların başarıyla minimize edildiğini göstermektedir.

Çizelge 8.6 Muz kabuğu numunesine ait 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım ile elde edilen deneysel veriler

Deney No	X <sub>1</sub>	X <sub>2</sub>	X <sub>3</sub>	% Adsorpsiyon
1	4	0.05	10	44.1
2	6	0.15	20	95.1
3	6	0.25	10	94.0
4	6	0.15	30	97.5
5	4	0.25	20	92.2
6	4	0.15	20	84.2
7	4	0.15	20	88.7
8	2	0.15	30	57.4
9	4	0.25	30	92.7
10	2	0.05	10	24.2
11	2	0.25	30	82.3
12	6	0.25	30	98.0
13	6	0.05	10	75.9
14	4	0.15	10	71.6
15	4	0.05	30	56.8
16	4	0.05	20	53.7
17	6	0.05	30	80.9
18	6	0.05	20	78.4
19	4	0.15	20	83.8
20	2	0.05	20	25.8
21	4	0.25	10	81.6
22	4	0.15	30	87.1
23	2	0.15	10	54.0
24	4	0.15	20	83.5
25	2	0.25	20	83.2
26	2	0.25	10	74.5
27	6	0.25	20	96.2
28	2	0.05	30	40.8
29	2	0.15	20	56.2
30	4	0.15	20	80.1
31	4	0.15	20	86.6
32	6	0.15	10	92.3

### 8.3.1.6 Muz kabuđu numunesine ait 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak model denklem geliřtirilmesi

Alüminyumun adsorpsiyon prosesi için 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak farklı pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) deđerleri ile elde edilen deney verileri kullanılarak Design Expert 9.0 programı kullanılarak model denklemler geliřtirilmiřtir. Quadratik model seřilerek geliřtirilen model denklem sırasıyla Eřitlik (8.3)'de, varyans (ANOVA) analizi sonuřları Çizelge 8.7'de verilmiřtir.

Quadratik model için önerilen denklemin prosesi ifade eden en uygun model denklem haline dönüşmesi için, güvenilirlik seviyesi %95'in altında olan terimler yani P deđerinin 0.05'den fazla olduđu terimler model denklemden çıkarılmıřtır.

$$Y_{muz\ kabuđu} = 14.60000 * X_1 + 581.01282 * X_2 + 1.71962 * X_3 - 39.83333 * X_1 * X_2 - 822.82051 * X_2^2 - 0.031615 * X_3^2 \quad (8.3)$$

Eřitlik 8.3 incelendiđinde, pH, biosorbent miktarı ve temas süresi parametrelerinin artmasının adsorpsiyon prosesinde % adsorpsiyon deđerini arttırdıđı görölmektedir. Box-Behnken tasarım yöntemi uygulandıđında elde edilen model denklemden, biosorbent miktarının adsorpsiyon prosesi üzerinde daha fazla etkili olduđu görölmektedir. Ayrıca denklem katsayıları incelendiđinde elde edilen % adsorpsiyon verilerinin (pH\*biosorbent miktarı), (biosorbent miktarı\*biosorbent miktarı) ve (temas süresi\* temas süresi) terimlerinin artması ile azaldıđı görölmektedir.

Design Expert 9.0 programı ile elde edilen model denklemin güvenilirlik deđeri, ANOVA analizi sonucu %99.99'un üzerinde bulunmuřtur. 125.23 olarak hesaplanan F deđerinin uygunluđu, 0.9601 olarak hesaplanan korelasyon katsayısının katsayısının 1'e olan yakınlıđı model denklemin uygulanabilir olduđunu göstermiřtir.

Çizelge 8.7 Muz kabuğu numunesine ait  $3^k$  faktöriyel tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları

Kaynak	Kareler Toplamı	Serbestlik Derecesi	Karelerin Ortalaması	F-Değeri	P-değeri
Model	12627.57	5	2525.51	125.23	< 0.0001
Kalan	524.33	26	20.17		
Toplam	13151.89	31			

### 8.3.1.7 Muz kabuğu numunesine ait uygulanan deneysel tasarım yöntemlerinin karşılaştırılması

Alüminyumun adsorpsiyonu prosesinin optimizasyonu için  $2^k$  faktöriyel tasarım,  $3^k$  faktöriyel tasarım ve Box-Behnken olmak üzere uygulanan 3 deneysel tasarım yöntemi ile model denklemler elde edilmiştir. Geliştirilen model denklemlerin istatistiksel açıdan anlamlılığı varyans analiziyle (ANOVA) incelenerek yorumlanmıştır. %99'un üzerinde güvenilirlikle model denklemlerin kullanılabilirliği teyit edilmiştir. Çizelge 8.8'de verilen standart sapma değerleri ve korelasyon katsayıları alüminyumun adsorpsiyonu prosesini en iyi ifade eden deneysel tasarım yöntemini saptamak amacıyla karşılaştırılmıştır. Box-Behnken tasarımı ve  $3^k$  faktöriyel tasarım yöntemlerinin, yüksek korelasyon katsayısı ( $R^2$ ) ve düşük standart sapma ( $\sigma$ ) değerlerine sahip olması, bu tasarım metodlarının uygulanmasının daha doğru sonuçlar vereceği kanısına varılmıştır.

Birbirlerine yakın korelasyon ve standart sapma değerlerine sahip olmalarına rağmen,  $3^k$  faktöriyel tasarımı için yapılması gerekli deney sayılarının Box-Behnken tasarımı için gerekli olan deney sayılarından çok fazla olması, zaman ve maliyet açısından değerlendirildiğinde Box-Behnken tasarımının uygulanmasına karar verilmiştir.

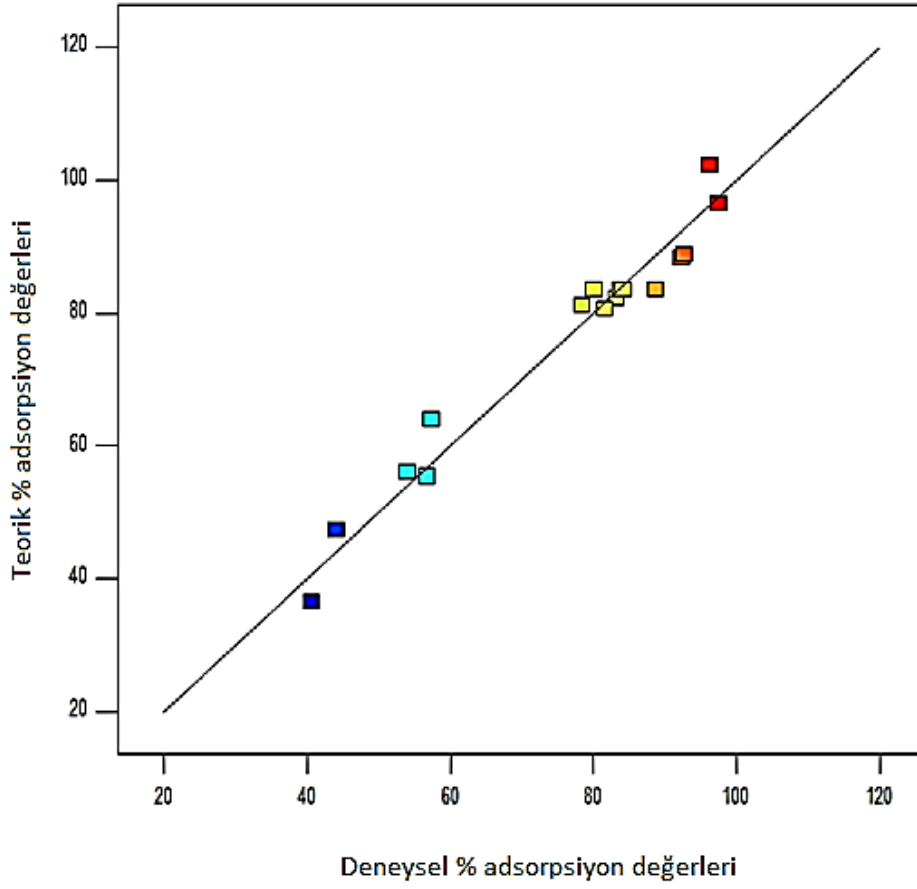
Uygunluđu tespit edilen Box-Behnken tasarım metodu uygulanarak gerekleřtirilen adsorpsiyon deneyleri verilerinin, elde edilen model denklemden hesaplanan teorik % adsorpsiyon deęerleri ile karřılařtırılması izelge 8.9’da verilmiřtir. Ayrıca, deneysel ve teorik % adsorpsiyon deęerlerinin grafiksel karřılařtırılması Őekil 8.17’de verilmiřtir.

izelge 8.8 Muz kabuđu numunesine ait uygulanan deneysel tasarım yntemlerinin korelasyon katsayıları ve standart sapma deęerleri

Tasarım adı	R <sup>2</sup>	σ
2 <sup>k</sup> Faktriyel	0.8607	8.96
Box-Behnken	0.9635	4.42
3 <sup>k</sup> Faktriyel	0.9601	4.49

izelge 8.9 Muz kabuđu numunesine ait Box-Behnken tasarım modelinden elde edilen teorik veriler ile deneysel verilerin karřılařtırılması

X <sub>1</sub>	X <sub>2</sub>	X <sub>3</sub>	% Adsorpsiyon (Teorik)	% Adsorpsiyon (Deneysel)
4	0.25	30	88.7	92.7
2	0.25	20	82.1	83.2
4	0.15	20	83.5	83.8
4	0.15	20	83.5	84.2
4	0.25	10	80.6	81.6
4	0.05	30	55.3	56.8
4	0.15	20	83.5	84.2
4	0.15	20	83.5	88.7
6	0.15	30	96.2	97.5
6	0.15	10	88.1	92.3
4	0.15	20	83.5	80.1
6	0.05	20	81.0	78.4
2	0.15	30	64.0	57.4
4	0.05	10	47.6	44.1
2	0.15	10	55.9	54.0
6	0.25	20	99.1	96.2
2	0.05	20	36.4	40.7



Şekil 8.17 Muz kabuğu numunesine ait farklı pH, biosorbent miktarı ve temas süresi şartlarında gerçekleştirilen deneyler sonucunda elde edilen % adsorpsiyon değerleri ile Box-Behnken tasarımı uygulanarak elde edilen % adsorpsiyon değerlerinin karşılaştırılması

Box-Behnken tasarımı uygulanarak muz kabuğu ile alüminyumun adsorpsiyonu prosesinde, yapılan optimizasyon çalışması ile maksimum adsorpsiyon için Design Expert 9.0 programı tarafından yapılan tahmin ve elde edilmesi beklenen % adsorpsiyon değeri ise Çizelge 8.10'da verilmiştir. Belirlenen optimum koşullarda gerçekleştirilen deneyler sonucunda elde edilen deneysel verilerin program tarafından önerilen teorik % adsorpsiyon değerlerine yakın olması, Box-Behnken tasarımının proses için uygunluğunu göstermektedir.

Çizelge 8.10 Muz kabuğu numunesine ait Box-Behnken tasarımı ile elde edilen optimum koşullar ve bu koşullarda ulaşılabilecek maksimum % adsorpsiyon değeri

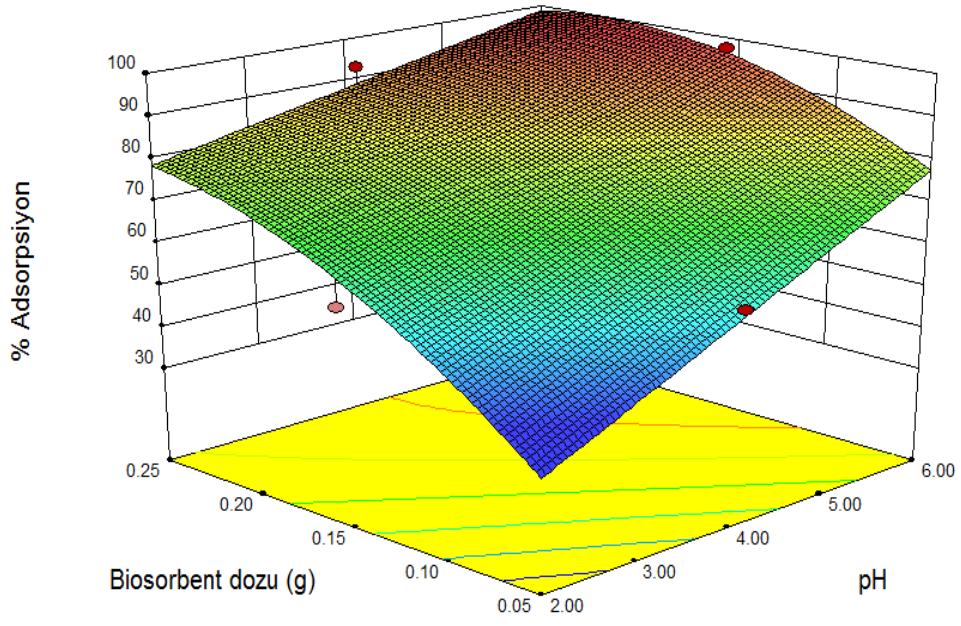
Parametre adı	Parametre değeri	% Adsorpsiyon
pH	6	
Biosorbent miktarı (g)	0.15	97.29
Temas süresi (dak)	30	

Design Expert programı tarafından önerilen Çizelge 8.10'da verilen optimum koşullar dışında, en uygun noktalar olarak belirttiği 42 optimizasyon çözümü daha önermektedir. Bu değerler, Çizelge EK-C.1'de verilmiştir. Design Expert programı, adsorpsiyon prosesi için optimum koşulların 43 farklı kombinasyon arasından seçilmesini ya da işletmecinin hedeflerine göre çalışmak istediği farklı parametreleri belirlemesini mümkün kılmaktadır.

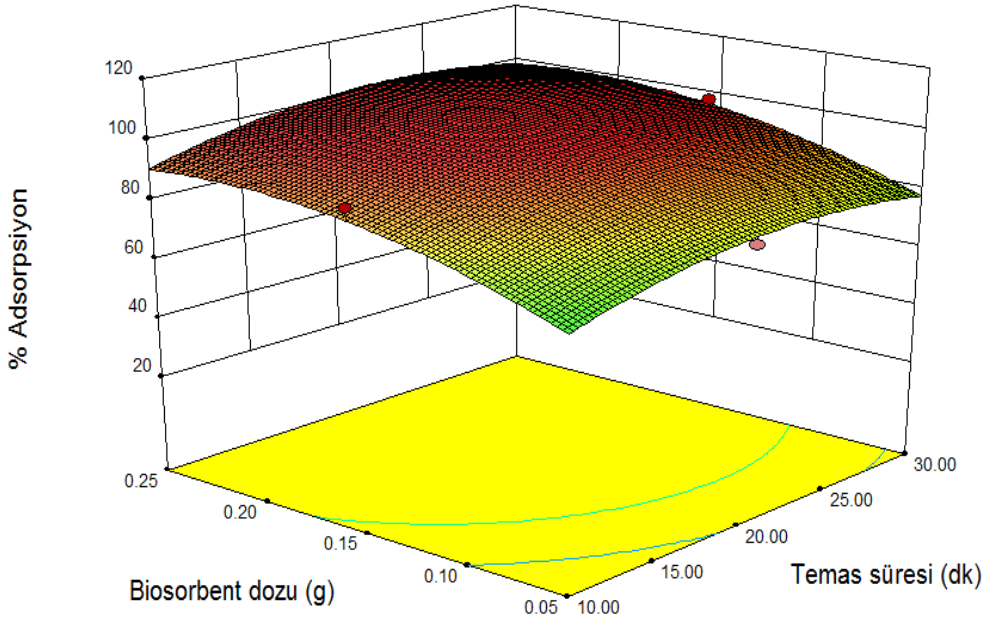
### **8.3.1.8 Muz kabuğu numunesine ait tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği**

Design Expert 9.0 deneysel tasarım programı vasıtasıyla alüminyumun muz kabuğu ile adsorpsiyonu prosesi için parametrelerin adsorpsiyon işleminin verime olan etkilerinin etkilerinin grafiksel olarak gözlemlenmesi ve yorumlanması amacıyla üç boyutlu cevap yüzey grafikleri oluşturulmuştur.

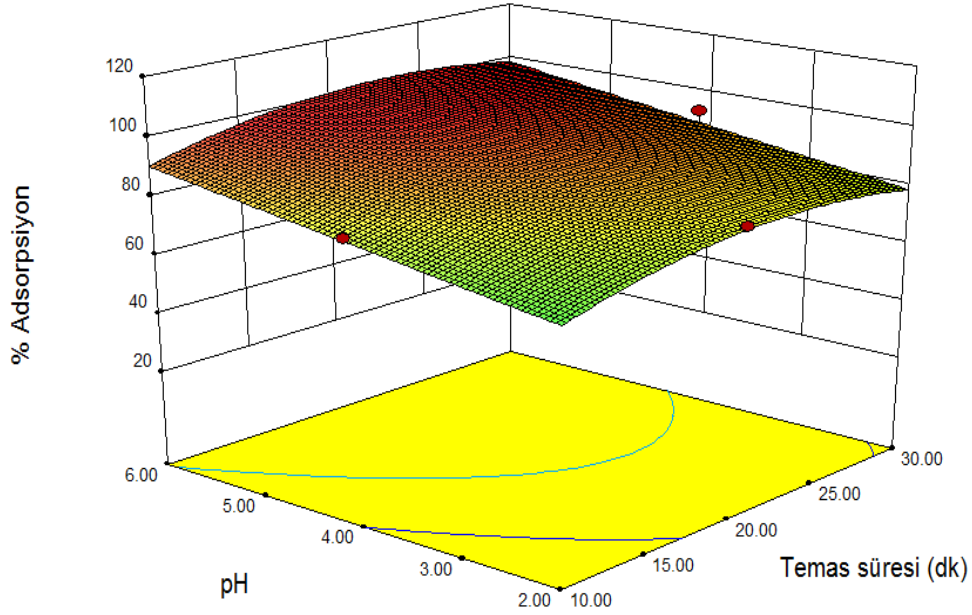
Gerçekleştirilen adsorpsiyon prosesi için, optimum değer olarak belirlenen parametrelerin % adsorpsiyon değeri ile etkileşimi Şekil 8.18-8.20'de gösterilmektedir. Muz kabuğu ile alüminyum giderimi adsorpsiyon prosesinde optimum parametre noktalarında %95'in üzerinde giderim gerçekleştiği görülmektedir.



Şekil 8.18 Muz kabuğu numunesine ait biosorbent dozu ve pH tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 8.19 Muz kabuğu numunesine ait biosorbent dozu ve temas süresi tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 8.20 Muz kabuğu numunesine ait pH ve temas süresi tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği

### 8.3.2 Limon kabuğuna numunesine ait sonuçlar

#### 8.3.2.1 Limon kabuğu numunesine ait $2^k$ faktöriyel tasarım sonuçları

$2^k$  faktöriyel tasarım yöntemi uygulanarak, gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneyleri sonucunda elde edilen % adsorpsiyon değerleri Çizelge 8.11’de verilmiştir. Deneyler; farklı pH, biosorbent miktarı ve temas sürelerinde gerçekleştirilen 12 deney ve orta noktada 5 tekrar deneyinden oluşmaktadır. Çizelge 8.11’de görülen  $X_1$ ,  $X_2$  ve  $X_3$  kodları sırasıyla pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) parametrelerini ifade etmektedir. Çizelge 8.11 incelendiğinde en yüksek % adsorpsiyon değerinin pH 6, 0.25 g biosorbent miktarı, 30 dak deney koşullarında %92.9, en düşük % adsorpsiyon değerinin ise pH 2, 0.05 g biosorbent miktarı, 10 dak deney koşullarında %19 olarak elde edildiği görülmektedir. Orta noktalarda gerçekleştirilen 5 tekrar deneyi sonucu elde edilen % adsorpsiyon değerlerinin ise birbirine yakın olduğu gözlemlenmiştir. Elde edilen bu sonuç, deneysel hataların başarıyla minimize edildiğini göstermektedir.

Çizelge 8.11 Limon kabuğu numunesine ait 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım ile elde edilen deneysel veriler

Deney No	X <sub>1</sub>	X <sub>2</sub>	X <sub>3</sub>	% Adsorpsiyon
1	4	0.15	20	82.1
2	6	0.05	30	87.9
3	2	0.05	30	36.2
4	4	0.15	20	84.2
5	2	0.25	10	51.0
6	2	0.05	10	19.0
7	4	0.15	20	82.3
8	4	0.15	20	88.7
9	6	0.25	30	93.7
10	4	0.15	20	80.1
11	2	0.25	30	74.6
12	6	0.25	10	93.3
13	6	0.05	10	85.4

### 8.3.2.2 Limon kabuğu numunesine ait 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak model denklem geliştirilmesi

Alüminyumun adsorpsiyon prosesi için 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak farklı pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) değerleri ile elde edilen deney verileri kullanılarak Design Expert 9.0 programı vasıtasıyla model denklemler geliştirilmiştir. Quadratik model seçilerek geliştirilen model denklemler sırasıyla Eşitlik (8.4)'de, varyans (ANOVA) analizi sonuçları Çizelge 8.12'de verilmiştir.

Quadratik model için önerilen denklemin prosesi ifade eden en uygun model denklem haline dönüşmesi için, güvenilirlik seviyesi %95'in altında olan terimler yani P değerinin 0.05'den fazla olduğu terimler model denklemden çıkarılmıştır.

$$Y_{\text{limon kabuğu}} = 11.30625 * X_1 + 106.87500 * X_2 + 12.39913 \quad (8.4)$$

Eşitlik 8.4 incelendiğinde, pH ve biosorbent miktarı parametrelerinin artmasının adsorpsiyon prosesinde % adsorpsiyon değerini arttırdığı görülmektedir. 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım yöntemi uygulandığında elde edilen model denkleme bakılarak, biosorbent miktarının adsorpsiyon prosesi üzerinde daha fazla etkili olduğu görülmektedir. Design

Expert 9.0 programı ile elde edilen model denklemin güvenilirlik değeri, ANOVA analizi sonucu %99.99'un üzerinde bulunmuştur. 16.38 olarak hesaplanan F değerinin uygunluğu, 0.7661 olarak hesaplanan korelasyon katsayısının model denklemin uygulanabilir olduğunu göstermiştir.

Çizelge 8.12 Limon kabuğu numunesine ait  $2^k$  faktöriyel tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları

Kaynak	Kareler Toplamı	Serbestlik Derecesi	Karelerin Ortalaması	F-Değeri	P-Değeri
Model	5004.38	2	2502.19	16.38	0.0007
Kalan	1527.92	10	152.79		
Toplam	6532.30	12			

### 8.3.2.3 Limon kabuğu numunesine ait Box-Behnken tasarım sonuçları

Box-Behnken tasarım yöntemi uygulanarak, gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneyleri sonucunda elde edilen % adsorpsiyon değerleri Çizelge 8.13'de verilmiştir. Deneyler; farklı pH, biosorbent miktarı ve temas sürelerinde gerçekleştirilen 8 deney ve orta noktada 5 tekrar deneyinden oluşmaktadır. Çizelge 8.13'de görülen  $X_1$ ,  $X_2$  ve  $X_3$  kodları sırasıyla pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) parametrelerini ifade etmektedir.

Çizelge 8.13 incelendiğinde en yüksek % adsorpsiyon değerinin pH 6, 0.15 g biosorbent miktarı, 30 dakika deney koşullarında %92.9 giderim, en düşük % adsorpsiyon değerinin ise pH 2, 0.05 g biosorbent miktarı ve 20 dakika deney koşullarında %40.6 olarak elde edildiği görülmektedir. Orta noktalarda (pH 4, 0.15 g biosorbent miktarı ve 20dk temas süresi) gerçekleştirilen 5 tekrar deneyi sonucu elde edilen % adsorpsiyon değerlerinin ise birbirine yakın olduğu gözlemlenmiştir. Elde edilen bu sonuç, deneysel hataların başarıyla minimize edildiğini göstermektedir.

Çizelge 8.13 Limon kabuğu numunesine ait Box-Behnken tasarım ile elde edilen deneysel veriler

Deney No	X <sub>1</sub>	X <sub>2</sub>	X <sub>3</sub>	% Adsorpsiyon
1	4	0.25	30	92.9
2	2	0.25	20	69.1
3	4	0.15	20	84.2
4	4	0.15	20	82.1
5	4	0.25	10	90.4
6	4	0.05	30	59.8
7	4	0.15	20	82.8
8	4	0.15	20	83.4
9	6	0.15	30	92.0
10	6	0.15	10	83.4
11	4	0.15	20	81.7
12	6	0.05	20	79.8
13	2	0.15	30	57.4
14	4	0.05	10	41.4
15	2	0.15	10	45.8
16	6	0.25	20	90.9
17	2	0.05	20	40.6

#### 8.3.2.4 Limon kabuğu numunesine ait Box-Behnken tasarım metodu uygulanarak model denklem geliştirilmesi

Alüminyumun adsorpsiyon prosesi için Box-Behnken tasarım metodu uygulanarak farklı pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) değerleri ile elde edilen deney verileri kullanılarak Design Expert 9.0 programı vasıtasıyla model denklemler geliştirilmiştir. Quadratik model seçilerek geliştirilen model denklemler sırasıyla Eşitlik (8.5)'de, varyans (ANOVA) analizi sonuçları Çizelge 8.14'de verilmiştir.

Quadratik model için önerilen denklemin prosesi ifade eden en uygun model denklem haline dönüşmesi için, güvenilirlik seviyesi %95'in altında olan terimler yani P değerinin 0.05'den fazla olduğu terimler model denklemden çıkarılmıştır.

$$Y_{\text{limon kabuğu}} = 36.87961 * X_1 + 722.75658 * X_2 + 2.06375 * X_3 - 51.50000 * X_1 * X_2 - 0.31750 * X_1 * X_3 + 1.79901 * X_1^2 - 1132.10526 * X_2^2 - 103.61875 \quad (8.5)$$

Eşitlik 8.5 incelendiğinde, pH, biosorbent miktarı ve temas süresi parametrelerinin artmasının adsorpsiyon prosesinde % adsorpsiyon değerini arttırdığı görülmektedir. Box-Behnken tasarım yöntemi uygulandığında elde edilen model denkleme bakılarak, biosorbent miktarının adsorpsiyon prosesi üzerinde daha fazla etkili olduğu açıkça ifade edilebilmektedir. Ayrıca denklem parametreleri katsayıları incelendiğinde elde edilen % adsorpsiyon verilerinin, (pH\*biosorbent miktarı), (pH\*temas süresi), (pH\*pH) ve (biosorbent miktarı\*biosorbent miktarı) terimlerinin artması ile azaldığı görülmektedir. Design Expert 9.0 programı ile elde edilen model denklemin güvenilirlik değeri, ANOVA analizi sonucu %99.99'un üzerinde bulunmuştur. 24.65 olarak hesaplanan F değerinin uygunluğu, 0.9504 olarak hesaplanan korelasyon katsayısının model denklemin uygulanabilir olduğunu göstermiştir.

Çizelge 8.14 Limon kabuğu numunesine ait Box-Behnken tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları

Kaynak	Kareler Toplamı	Serbestlik Derecesi	Karelerin Ortalaması	F-Değeri	P-Değeri
Model	6664.66	7	952.09	24.65	< 0.0001
Kalan	347.62	9	38.62		
Toplam	7012.28	16			

### 8.3.2.5 Limon kabuğu numunesine ait 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım sonuçları

3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım yöntemi uygulanarak, gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneyleri sonucunda elde edilen % adsorpsiyon değerleri Çizelge 8.15'de verilmiştir. Deneyler; farklı pH, biosorbent miktarı ve temas sürelerinde gerçekleştirilen 27 deney ve orta noktada 5 tekrar deneyinden oluşmaktadır. Çizelge 8.15'de görülen X<sub>1</sub>, X<sub>2</sub> ve X<sub>3</sub> kodları sırasıyla pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) parametrelerini ifade etmektedir.

Çizelge 8.15 Limon kabuğu numunesine ait 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım ile elde edilen deneysel veriler

Deney No	X <sub>1</sub>	X <sub>2</sub>	X <sub>3</sub>	% Adsorpsiyon
1	6	0.05	30	87.9
2	2	0.05	10	9.00
3	2	0.15	30	79.8
4	4	0.15	10	53.3
5	4	0.15	20	84.1
6	6	0.05	20	81.7
7	6	0.15	10	83.4
8	6	0.05	10	81.2
9	4	0.15	20	82.1
10	2	0.05	20	18.7
11	2	0.25	20	69.1
12	6	0.25	30	93.7
13	4	0.25	10	90.4
14	4	0.15	30	91.1
15	2	0.15	10	45.8
16	4	0.05	20	54.2
17	4	0.25	30	92.9
18	2	0.25	10	51.0
19	6	0.25	10	91.3
20	6	0.15	30	92.0
21	2	0.05	30	36.2
22	4	0.15	20	82.3
23	2	0.15	20	85.3
24	4	0.05	10	41.4
25	4	0.15	20	82.3
26	4	0.25	20	86.5
27	6	0.15	20	90.9
28	4	0.05	30	59.8
29	2	0.25	30	91.0
30	4	0.15	20	82.8
31	4	0.15	20	84.2
32	6	0.25	20	93.2

Çizelge 8.15 incelendiğinde en yüksek % adsorpsiyon değerinin pH 6, 0.25 g biosorbent miktarı, 30 dakika deney koşullarında %93.7 değerinde, en düşük % adsorpsiyon değerinin ise pH 2, 0.05 g biosorbent miktarı ve 10 dakika deney koşullarında %9 değerinde elde edildiği görülmektedir. Orta noktalarda gerçekleştirilen 5 tekrar deneyi

sonucu elde edilen % adsorpsiyon değerlerinin ise birbirine yakın olduğu gözlemlenmiştir. Elde edilen bu sonuç, deneysel hataların başarıyla minimize edildiğini göstermektedir.

### **8.3.2.6 Limon kabuğu numunesine ait 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak model denklem geliştirilmesi**

Alüminyumun adsorpsiyon prosesi için 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak farklı pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) değerleri ile elde edilen deney verileri kullanılarak Design Expert9.0 programı vasıtasıyla model denklemler geliştirilmiştir. Quadratik model seçilerek geliştirilen model denklemler sırasıyla Eşitlik (8.6)'da, varyans (ANOVA) analizi sonuçları Çizelge 8.16'da verilmiştir.

Quadratik model için önerilen denklemin prosesi ifade eden en uygun model denklem haline dönüşmesi için, güvenilirlik seviyesi %95'in altında olan terimler yani P değerinin 0.05'den fazla olduğu terimler model denklemden çıkarılmıştır.

$$Y_{\text{limon kabuğu}} = 22.97458 * X_1 + 705.12222 * X_2 + 2.38544 * X_3 - 48.50833 * X_1 * X_2 - 0.35050 * X_1 * X_3 - 1162.11111 * X_2^2 - 81.98306 \quad (8.6)$$

Eşitlik 8.6 incelendiğinde, pH, biosorbent miktarı ve temas süresi parametrelerinin artmasının adsorpsiyon prosesinde % adsorpsiyon değerini arttırdığı görülmektedir. Box-Behnken tasarım yöntemi uygulandığında ekde edilen model denkleme bakılarak, biosorbent miktarının adsorpsiyon prosesi üzerinde daha fazla etkili olduğu görülmektedir. Ayrıca denklem parametreleri katsayıları incelendiğinde elde edilen % adsorpsiyon verilerinin (pH\*biosorbent miktarı), (biosorbent miktarı\* temas süresi) ve (biosorbent miktarı\*biosorbent miktarı) terimlerinin artması ile azaldığı görülmektedir.

Design Expert 9.0 programı ile elde edilen model denklemin güvenilirlik değeri, ANOVA analizi sonucu %99.99'un üzerinde bulunmuştur. 36.73 olarak hesaplanan F değerinin uygunluğu, 0.8981 olarak hesaplanan korelasyon katsayısının model denklemin uygulanabilir olduğunu göstermiştir.

Çizelge 8.16 Limon kabuğu numunesine ait 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları

Kaynak	Kareler Toplamı	Serbestlik Derecesi	Karelerin Ortalaması	F-Değeri	P-Değeri
Model	14709.16	6	2451.53	36.73	< 0.0001
Kalan	1668.41	25	66.74		
Toplam	16377.57	31			

### 8.3.2.7 Limon kabuğu numunesine ait uygulanan deneysel tasarım yöntemlerinin karşılaştırılması

Alüminyumun adsorpsiyonu prosesinin optimizasyonu için 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım, 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım ve Box-Behnken olmak üzere uygulanan 3 deneysel tasarım yöntemi ile model denklemler elde edilmiştir. Geliştirilen model denklemlerin istatistiksel açıdan anlamlılığı varyans analiziyle (ANOVA) incelenerek yorumlanmıştır. %99'un üzerinde güvenilirlikle model denklemlerin kullanılabilirliği teyit edilmiştir.

Çizelge 8.17'de verilen standart sapma değerleri ve korelasyon katsayıları alüminyumun adsorpsiyonu prosesini en iyi ifade eden deneysel tasarım yöntemini saptamak amacıyla karşılaştırılmıştır. Box-Behnken tasarımı ve 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım yöntemlerinin, yüksek korelasyon katsayısı ( $R^2$ ) ve düşük standart sapma ( $\sigma$ ) değerlerine sahip olması, bu tasarım metotlarının uygulanması ile daha doğru sonuçlar elde edileceği kanısına varılmıştır.

Birbirlerine yakın korelasyon ve standart sapma değerlerine sahip olmalarına rağmen, 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarımı için yapılması gerekli deney sayılarının Box-Behnken tasarımı için gerekli olan deney sayılardan çok fazla olması, zaman ve maliyet açısından değerlendirildiğinde Box-Behnken tasarımının uygulanmasına karar verilmiştir.

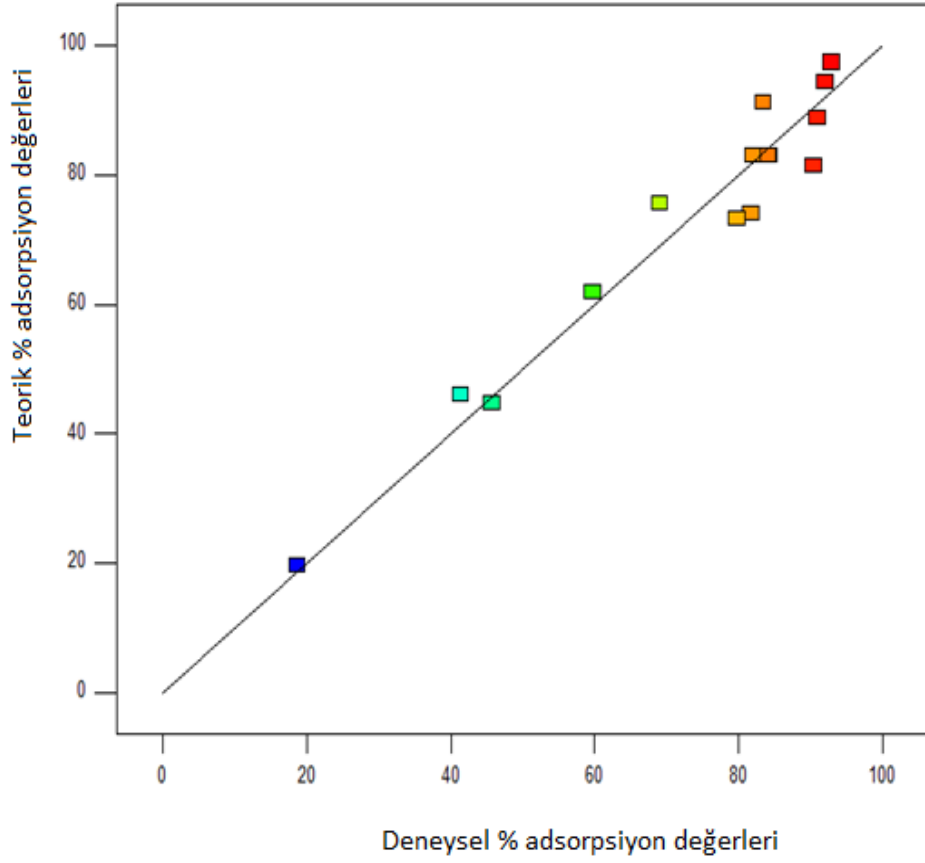
Uygunluđu tespit edilen Box-Behnken tasarım metodu uygulanarak gerekleřtirilen adsorpsiyon deneyleri verilerinin, elde edilen model denklemlerden hesaplanan teorik % adsorpsiyon deęerleri ile karřılařtırılması izelge 8.18’de verilmiřtir. Ayrıca, deneysel ve teorik % adsorpsiyon deęerlerinin grafiksel karřılařtırılması Őekil 8.21’de verilmiřtir.

Box-Behnken tasarım metodu uygulanarak gerekleřtirilen limon kabuęu örnekleri ile alüminyumun adsorpsiyonu prosesinde, yapılan optimizasyon alıřması ile maksimum adsorpsiyon için Design Expert 9.0 programı ile hesaplanan ve elde edilmesi beklenen % adsorpsiyon deęeri ise izelge 8.19’da verilmiřtir.

Belirlenen optimum kořullarda gerekleřtirilen deneyler sonucunda elde edilen deneysel verilerin program tarafından önerilen teorik % adsorpsiyon deęerlerine yakın olması, Box-Behnken tasarımının proses için uygunluęunu göstermektedir.

izelge 8.17 Limon kabuęu numunesine ait uygulanan deneysel tasarım yöntemlerinin korelasyon katsayıları ve standart sapma deęerleri

Tasarım adı	R <sup>2</sup>	σ
2 <sup>k</sup> Faktöriyel	0.7661	12.36
Box-Behnken	0.9504	6.21
3 <sup>k</sup> Faktöriyel	0.8981	8.17



Şekil 8.21 Limon kabuęu numunesine ait farklı pH, biosorbent miktarı ve temas süresi şartlarında gerçekleştirilen deneyler sonucunda elde edilen % adsorpsiyon deęerleri ile Box-Behnken tasarımı uygulanarak elde edilen teorik % adsorpsiyon deęerlerinin karşılaştırılması

Çizelge 8.18 Limon kabuğu numunesine ait Box-Behnken tasarım modelinden elde edilen teorik veriler ile deneysel verilerin karşılaştırılması

$X_1$	$X_2$	$X_3$	% Adsorpsiyon (Teorik)	% Adsorpsiyon (Deneysel)
4	0.25	30	97.3	92.9
2	0.25	20	75.7	69.1
4	0.15	20	83.0	84.2
4	0.15	20	83.0	82.1
4	0.25	10	81.4	90.4
4	0.05	30	61.9	59.8
4	0.15	20	83.0	82.8
4	0.15	20	83.0	84.3
6	0.15	30	94.2	92.0
6	0.15	10	91.0	83.4
4	0.15	20	83.0	84.1
6	0.05	20	73.9	81.7
2	0.15	30	73.2	79.8
4	0.05	10	46.0	41.4
2	0.15	10	44.7	45.8
6	0.25	20	88.7	90.9
2	0.05	20	19.9	18.7

Çizelge 8.19 Limon kabuğu numunesine ait Box-Behnken tasarımı ile elde edilen optimum koşullar ve bu koşullarda ulaşılabilecek maksimum % adsorpsiyon değerleri

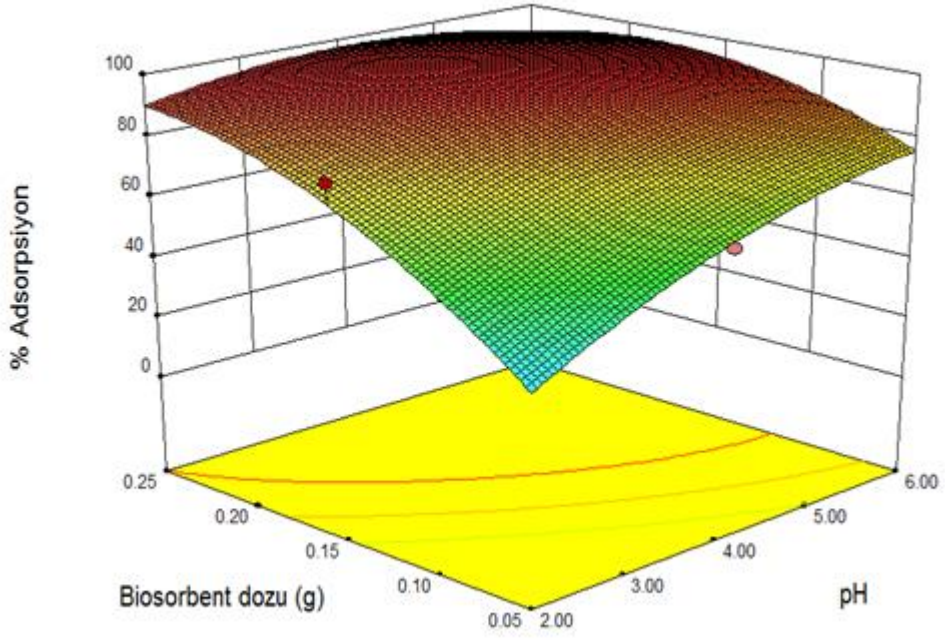
Parametre adı	Parametre değeri	% Adsorpsiyon
pH	6	
Biosorbent miktarı (g)	0.15	94.24
Temas süresi (dak)	30	

Design Expert programı tarafından önerilen Çizelge 8.19'da verilen optimum koşullar dışında, en uygun noktalar olarak belirttiği 42 optimizasyon çözümü daha önermektedir. Bu değerler, Çizelge EK-C.2'de verilmiştir. Design Expert programı, adsorpsiyon prosesi için optimum koşulların 43 farklı kombinasyon arasından seçilmesini ya da işletmecinin hedeflerine göre çalışmak istediği farklı parametreleri belirlemesini mümkün kılmaktadır.

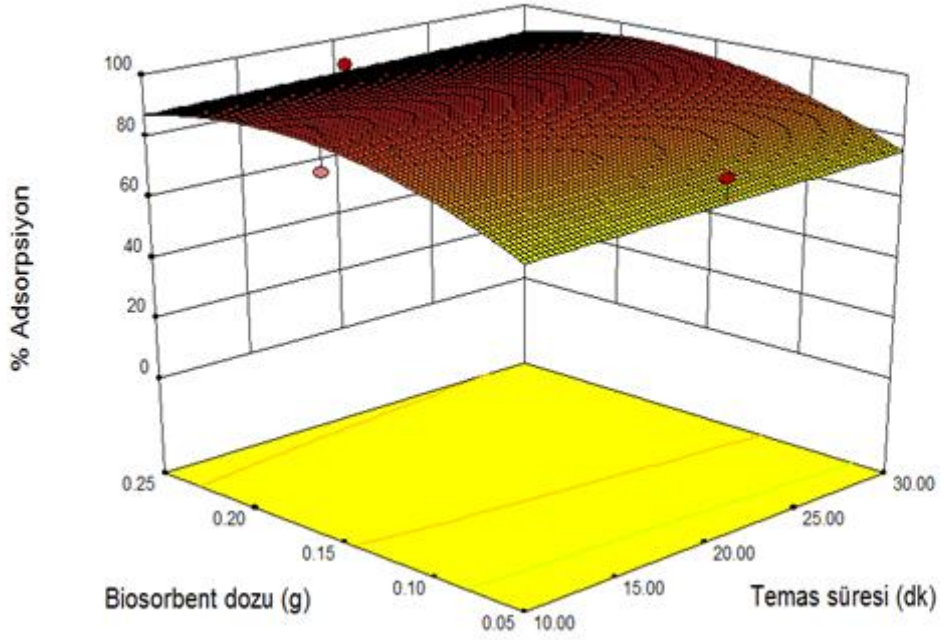
### **8.3.2.8 Limon kabuğu numunesine ait tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği**

Design Expert 9.0 deneysel tasarım programı vasıtasıyla alüminyumun limon kabuğu ile adsorpsiyonu prosesi için parametrelerin adsorpsiyon işleminin verimine olan etkilerinin etkilerinin grafiksel olarak gözlemlenmesi ve yorumlanması amacıyla üç boyutlu cevap yüzey grafikleri oluşturulmuştur.

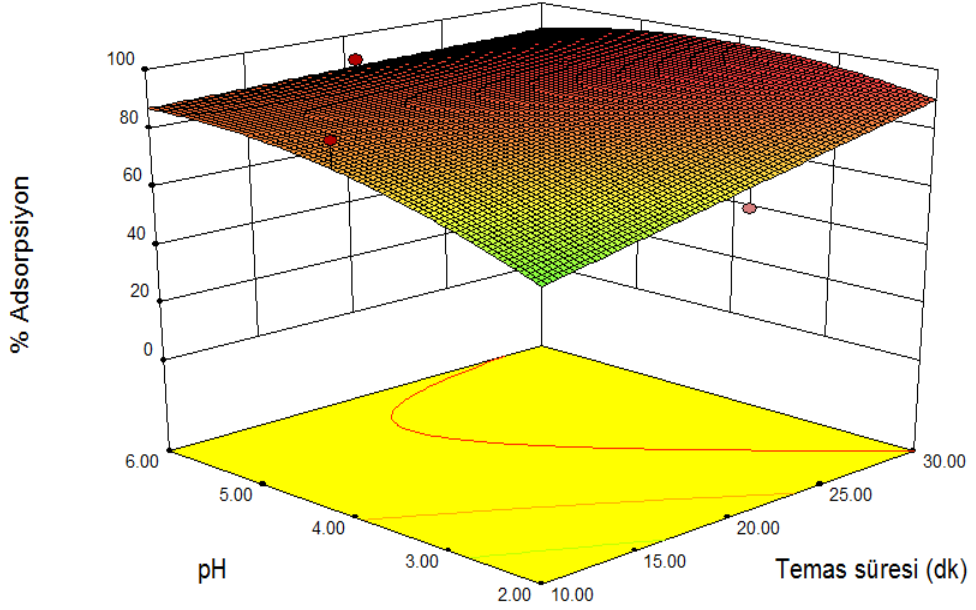
Gerçekleştirilen adsorpsiyon prosesi için, optimum değer olarak belirlenen parametrelerinin, % adsorpsiyon değeri ile etkileşimi Şekil 8.22-8.24'de gösterilmektedir. Limon kabuğu ile alüminyum giderimi adsorpsiyon prosesinde optimum parametre noktalarında %95'in üzerinde giderim gerçekleştiği görülmektedir.



Şekil 8.22 Limon kabuğu numunesine ait biosorbent dozu ve pH tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 8.23 Limon kabuğu numunesine ait biosorbent dozu ve temas süresi tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 8.24 Limon kabuğu numunesine ait pH ve temas süresi tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği

### 8.3.3 Susam küspesi numunesine ait sonuçlar

#### 8.3.3.1 Susam küspesi numunesine ait $2^k$ faktöriyel tasarım sonuçları

$2^k$  faktöriyel tasarım yöntemi uygulanarak, gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneyleri sonucunda elde edilen % adsorpsiyon değerleri Çizelge 8.20’de verilmiştir. Deneyler; farklı pH, biosorbent miktarı ve temas sürelerinde gerçekleştirilen 12 deney ve orta noktada 5 tekrar deneyinden oluşmaktadır. Çizelge 8.20’de görülen  $X_1$ ,  $X_2$  ve  $X_3$  kodları sırasıyla pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) parametrelerini ifade etmektedir.

Çizelge 8.20 incelendiğinde en yüksek % adsorpsiyon değerinin pH 6, 0.25 g biosorbent miktarı, 30 dak deney koşullarında %97.7, en düşük % adsorpsiyon değerinin ise pH 2, 0.05 g biosorbent miktarı, 10 dak deney koşullarında %35.6 olarak elde edildiği görülmektedir.

Orta noktalarda gerçekleştirilen 5 tekrar deneyi sonucu elde edilen % adsorpsiyon değerlerinin ise birbirine yakın olduğu gözlemlenmiştir. Elde edilen bu sonuç, deneysel hataların başarıyla minimize edildiğini göstermektedir.

Çizelge 8.20 Susam küspesi numunesine ait 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım ile elde edilen deneysel veriler

Deney No	X <sub>1</sub>	X <sub>2</sub>	X <sub>3</sub>	% Adsorpsiyon
1	4	0.15	20	96.9
2	6	0.05	30	92.7
3	2	0.05	30	40.2
4	4	0.15	20	95.7
5	2	0.25	10	61.6
6	2	0.05	10	35.6
7	4	0.15	20	97.7
8	4	0.15	20	97.4
9	6	0.25	30	98.3
10	4	0.15	20	96.1
11	2	0.25	30	77.8
12	6	0.25	10	90.1
13	6	0.05	10	85.4

### 8.3.3.2 Susam küspesi numunesine ait 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak model denklem geliştirilmesi

Alüminyumun adsorpsiyon prosesi için 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak farklı pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) değerleri ile elde edilen deney verileri kullanılarak Design Expert9.0 programı vasıtasıyla model denklemler geliştirilmiştir. Quadratik model seçilerek geliştirilen model denklemler sırasıyla Eşitlik (8.7)'de, varyans (ANOVA) analizi sonuçları Çizelge 8.21'de verilmiştir.

Quadratik model için önerilen denklemin prosesi ifade eden en uygun model denklem haline dönüşmesi için güvenilirlik seviyesi %95'in altında olan terimler yani P değerinin 0.05'den fazla olduğu terimler model denklemden çıkarılmıştır.

$$Y_{\text{susam küspesi}} = 9.46125 * X_1 + 44.12269 \quad (8.7)$$

Çizelge 8.21 Susam küspesi numunesine ait  $2^k$  faktöriyel tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları

Kaynak	Kareler Toplamı	Serbestlik Derecesi	Karelerin Ortalaması	F-Değeri	P-Değeri
Model	2864.49	1	2864.49	10.44	0.0080
Kalan	3019.56	11	274.51		
Toplam	5884.05	12			

Eşitlik 8.7 incelendiğinde, pH parametresinin artmasının % adsorpsiyon değerini arttırdığı görülmektedir. Diğer parametrelerin ise  $2^k$  Faktöriyel tasarım metodu ile pozitif etkileşimi görülmemiştir.

Design Expert 9.0 programı ile elde edilen model denklemin güvenilirlik değeri, ANOVA analizi sonucu %99.97'nin üzerinde bulunmuştur. 10.44 olarak hesaplanan F değerinin uygunluğu, 0.4863 olarak hesaplanan korelasyon katsayısının model denklemin uygulanabilir olduğunu göstermiştir.

### 8.3.3.3 Susam küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarım sonuçları

Box-Behnken tasarım yöntemi uygulanarak, gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneyleri sonucunda elde edilen % adsorpsiyon değerleri Çizelge 8.22'de verilmiştir. Deneyler; farklı pH, biosorbent miktarı ve temas sürelerinde gerçekleştirilen 8 deney ve orta noktada 5 tekrar deneyinden oluşmaktadır. Çizelge 8.22'de görülen  $X_1$ ,  $X_2$  ve  $X_3$  kodları sırasıyla pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) parametrelerini ifade etmektedir.

Çizelge 8.22 incelendiğinde en yüksek % adsorpsiyon değerinin pH 4, 0.25 g biosorbent miktarı, 30 dakika deney koşullarında %98.64 değerinde, en düşük % adsorpsiyon değerinin ise pH 2, 0.05 g biosorbent miktarı, 20 dakika deney koşullarında %33.6 değerinde elde edildiği görülmektedir. Orta noktalarda gerçekleştirilen 5 tekrar deneyi

sonucu elde edilen % adsorpsiyon değerlerinin ise birbirine yakın olduğu gözlemlenmiştir. Elde edilen bu sonuç, deneysel hataların başarıyla minimize edildiğini göstermektedir.

Çizelge 8.22 Susam küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarım ile elde edilen deneysel veriler

Deney No	X <sub>1</sub>	X <sub>2</sub>	X <sub>3</sub>	% Adsorpsiyon
1	4	0.25	30	98.6
2	2	0.25	20	76.0
3	4	0.15	20	97.7
4	4	0.15	20	97.6
5	4	0.25	10	84.6
6	4	0.05	30	69.8
7	4	0.15	20	96.9
8	4	0.15	20	96.1
9	6	0.15	30	93.3
10	6	0.15	10	85.8
11	4	0.15	20	97.4
12	6	0.05	20	90.4
13	2	0.15	30	69.0
14	4	0.05	10	56.6
15	2	0.15	10	44.1
16	6	0.25	20	91.9
17	2	0.05	20	33.6

#### 8.3.3.4 Susam küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarım metodu uygulanarak model denklemin geliştirilmesi

Alüminyumun adsorpsiyon prosesi için Box-Behnken tasarım metodu uygulanarak farklı pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) değerleri ile elde edilen deney verileri kullanılarak Design Expert 9.0 programı vasıtasıyla model denklemler geliştirilmiştir. Quadratik model seçilerek geliştirilen model denklemler sırasıyla Eşitlik (8.8)'de, varyans (ANOVA) analizi sonuçları Çizelge 8.23'de verilmiştir.

Quadratik model için önerilen denklemin prosesi ifade eden en uygun model denklem haline dönüşmesi için güvenilirlik seviyesi %95'in altında olan terimler yani P değerinin 0.05'den fazla olduğu terimler model denklemden çıkarılmıştır.

$$Y_{\text{susam küspesi}} = 47.19000 * X_1 + 644.60000 * X_2 + 5.08425 * X_3 - 51.12500 * X_1 * X_2 - 0.15500 * X_1 * X_3 - 3.43000 * X_1^2 - 1044.50000 * X_2^2 - 0.091200 * X_3^2 - 132.05875$$

(8.8)

Eşitlik 8.8 incelendiğinde, pH, biosorbent miktarı ve temas süresi parametrelerinin artmasının adsorpsiyon prosesinde % adsorpsiyon değerini arttırdığı görülmektedir. Box-Behnken tasarım yöntemi uygulandığında elde edilen model denkleme bakılarak, biosorbent miktarının adsorpsiyon prosesi üzerinde daha fazla etkili olduğu açıkça ifade edilebilmektedir. Ayrıca denklem parametreleri katsayıları incelendiğinde elde edilen % adsorpsiyon verilerinin (pH\*biosorbent miktarı), (pH\*temas süresi), (pH\*pH), (biosorbent miktarı\*biosorbent miktarı) ve (temas süresi\*temas süresi) terimlerinin artması ile azaldığı görülmektedir.

Design Expert 9.0 programı ile elde edilen model denklemin güvenilirlik değeri, ANOVA analizi sonucu %99.97'nin üzerinde bulunmuştur. 179.15 olarak hesaplanan F değerinin uygunluğu, 0.9944 olarak hesaplanan korelasyon katsayısının model denklemin uygulanabilir olduğunu göstermiştir.

Çizelge 8.23 Susam küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları

Kaynak	Kareler Toplamı	Serbestlik Derecesi	Karelerin Ortalaması	F-Değeri	P-Değeri
Model	6638.83	8	829.85	179.15	< 0.0001
Kalan	37.06	8	4.63		
Toplam	6675.89	16			

### 8.3.3.5 Susam küspesi numunesine ait 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım sonuçları

3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım yöntemi uygulanarak, gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneyleri sonucunda elde edilen % adsorpsiyon değerleri Çizelge 8.24'de verilmiştir. Deneyler; farklı pH, biosorbent miktarı ve temas sürelerinde gerçekleştirilen 27 deney ve orta noktada 5 tekrar deneyinden oluşmaktadır. Çizelge 8.24'de görülen X<sub>1</sub>, X<sub>2</sub> ve X<sub>3</sub> kodları sırasıyla pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) parametrelerini ifade etmektedir.

Çizelge 8.24 incelendiğinde en yüksek % adsorpsiyon değerinin pH 4, 0.25 g biosorbent miktarı, 30 dak deney koşullarında %98.64 değerinde, en düşük % adsorpsiyon değerinin ise pH 2, 0.05 g biosorbent miktarı, 10 dak deney koşullarında %8.5 değerinde elde edildiği görülmektedir. Orta noktalarda gerçekleştirilen 5 tekrar deneyi sonucu elde edilen % adsorpsiyon değerlerinin ise birbirine yakın olduğu gözlemlenmiştir. Elde edilen bu sonuç, deneysel hataların başarıyla minimize edildiğini göstermektedir.

Çizelge 8.24 Susam küspesi numunesine ait 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım ile elde edilen deneysel veriler

Deney No	X <sub>1</sub>	X <sub>2</sub>	X <sub>3</sub>	% Adsorpsiyon
1	6	0.25	30	98.3
2	2	0.15	10	44.1
3	2	0.05	20	33.6
4	4	0.15	30	98.1
5	4	0.15	20	96.9
6	4	0.15	20	95.7
7	6	0.15	30	93.3
8	2	0.05	30	40.6
9	4	0.15	20	97.7
10	4	0.15	20	97.4
11	4	0.05	30	69.8
12	6	0.05	20	90.4
13	6	0.05	10	83.4
14	6	0.05	30	92.7
15	4	0.15	20	96.1
16	4	0.25	30	98.6
17	2	0.25	10	61.6
18	2	0.15	20	64.9
19	4	0.15	10	83.7
20	4	0.15	20	97.6
21	6	0.25	10	90.1
22	4	0.25	10	84.6
23	2	0.05	10	8.50
24	4	0.25	20	98.1
25	4	0.05	10	56.6
26	6	0.25	20	91.9
27	2	0.25	30	77.7
28	2	0.15	30	69.0
29	6	0.15	10	85.8
30	6	0.15	20	91.1
31	2	0.25	20	76.0
32	4	0.05	20	67.1

### 8.3.3.6 Susam küspesi numunesine ait 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak model denklemin geliştirilmesi

Alüminyumun adsorpsiyon prosesi için 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak farklı pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) değerleri ile elde edilen deney verileri kullanılarak Design Expert 9.0 programı vasıtasıyla model denklem geliştirilmiştir. Quadratik model seçilerek geliştirilen model denklemler sırasıyla Eşitlik (8.9)'da, varyans (ANOVA) analizi sonuçları Çizelge 8.25'de verilmiştir.

Quadratik model için önerilen denklemin prosesi ifade eden en uygun model denklem haline dönüşmesi için, güvenilirlik seviyesi % 95'in altında olan terimler yani P değerinin 0.05'den fazla olduğu terimler model denklemden çıkarılmıştır.

$$Y_{\text{susam küspesi}} = 47.45179 * X_1 + 509.19355 * X_2 + 3.88314 * X_3 - 49.50000 * X_1 * X_2 - 0.20042 * X_1 * X_3 - 3.31828 * X_1^2 - 872.31183 * X_2^2 - 0.057398 * X_3^2 - 119.83858 \quad (8.9)$$

Eşitlik 8.9 incelendiğinde, pH, biosorbent miktarı ve temas süresi parametrelerinin artmasının adsorpsiyon prosesinde % adsorpsiyon değerini arttırdığı görülmektedir. Box-Behnken tasarım yöntemi uygulandığında elde edilen model denkleme bakılarak, biosorbent miktarının adsorpsiyon prosesi üzerinde daha fazla etkili olduğu açıkça ifade edilebilmektedir.

Ayrıca denklem parametreleri katsayıları incelendiğinde elde edilen % adsorpsiyon verilerinin (pH\*biosorbent miktarı), (pH\*temas süresi), (pH\*pH), (biosorbent miktarı\*biosorbent miktarı) ve (temas süresi\*temas süresi) terimlerinin artması ile azaldığı görülmektedir.

Design Expert 9.0 programı ile elde edilen model denklemin güvenilirlik değeri, ANOVA analizi sonucu %99.97'nin üzerinde bulunmuştur. 94.49 olarak hesaplanan F değerinin uygunluğu, 0.9705 olarak hesaplanan korelasyon katsayısının model denklemin uygulanabilir olduğunu göstermiştir.

Çizelge 8.25 Susam küspesi numunesine ait 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları

Kaynak	Kareler Toplamı	Serbestlik Derecesi	Karelerin Ortalaması	F-Değeri	P-Değeri
Model	15158.89	8	1894.86	94.49	< 0.0001
Kalan	461.21	23	20.05		
Toplam	15620.10	31			

### 8.3.3.7 Susam küspesi numunesine ait deneysel tasarım yöntemlerinin uygulanması ile elde edilen model denklemlerin uygunluğunun belirlenmesi

Alüminyumun adsorpsiyonu prosesinin optimizasyonu için 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım, 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım ve Box-Behnken olmak üzere uygulanan 3 deneysel tasarım yöntemi ile model denklemler elde edilmiştir. Geliştirilen model denklemlerin istatistiksel açıdan anlamlılığı varyans analiziyle (ANOVA) incelenerek yorumlanmıştır. %99'un üzerinde güvenilirlikle model denklemlerin kullanılabilirliği teyit edilmiştir.

Çizelge 8.26'da verilen standart sapma değerleri ve korelasyon katsayıları alüminyumun adsorpsiyonu prosesini en iyi ifade eden deneysel tasarım yöntemini saptamak amacıyla karşılaştırılmıştır. Box-Behnken tasarımı ve 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım yöntemlerinin, yüksek korelasyon katsayısı ( $R^2$ ) ve düşük standart sapma ( $\sigma$ ) değerlerine sahip olması, bu tasarım metotlarının uygulanması ile daha doğru sonuçlar elde edileceği kanısına varılmıştır.

Birbirlerine yakın korelasyon ve standart sapma değerlerine sahip olmalarına rağmen, 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarımı için yapılması gerekli deney sayılarının Box-Behnken tasarımı için gerekli olan deney sayılardan çok fazla olması, zaman ve maliyet açısından değerlendirildiğinde Box-Behnken tasarımının uygulanmasına karar verilmiştir.

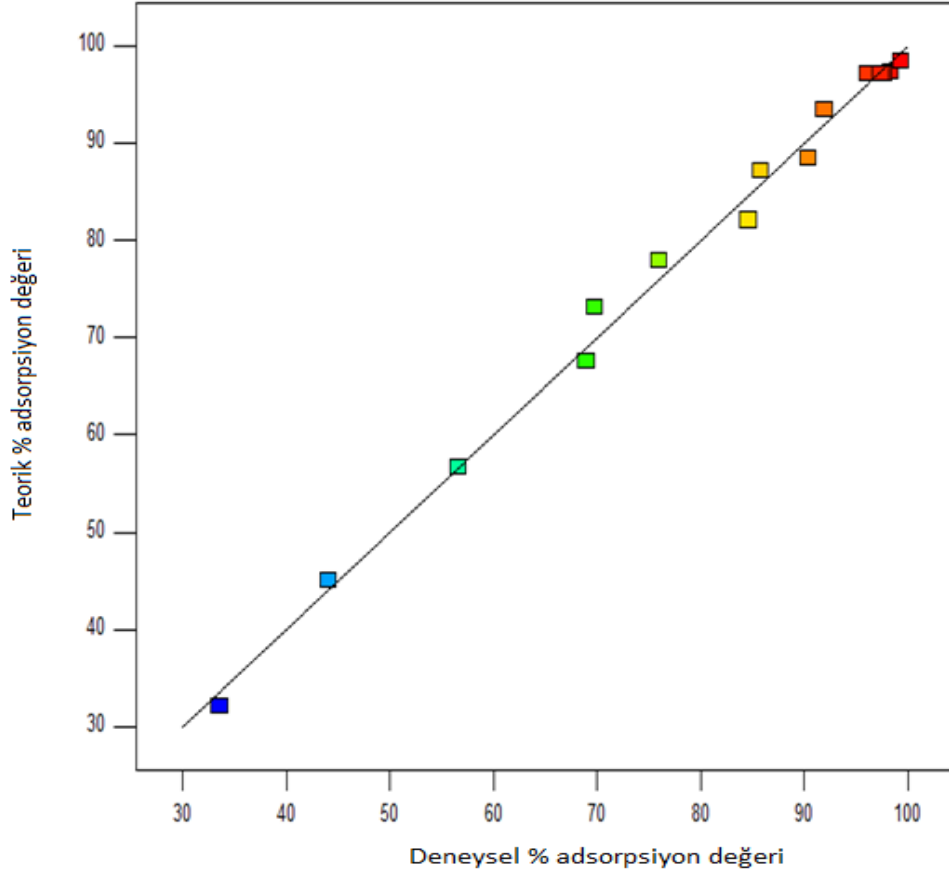
Uygunluđu tespit edilen Box-Behnken tasarım metodu uygulanarak gerekleřtirilen adsorpsiyon deneyleri verilerinin, elde edilen model denklemlerden hesaplanan teorik % adsorpsiyon deęerleri ile yapılan karřılařtırılması izelge 8.27’de verilmiřtir. Ayrıca, deneysel ve teorik % adsorpsiyon deęerlerinin grafiksel karřılařtırılması Őekil 8.25’de verilmiřtir.

Box-Behnken tasarımı uygulanarak limon kabuęu ile alüminyumun adsorpsiyonu prosesinde, yapılan optimizasyon alıřması ile maksimum adsorpsiyon iin Design Expert 9.0 programı tarafından yapılan tahmin ve elde edilmesi beklenen % adsorpsiyon deęeri ise izelge 8.28’de verilmiřtir.

Belirlenen optimum kořullarda gerekleřtirilen deneyler sonucunda elde edilen deneysel verilerin program tarafından önerilen teorik % adsorpsiyon deęerlerine yakın olması, Box-Behnken tasarımının proses iin uygunluęunu gstermektedir.

izelge 8.26 Susam küspesi numunesine ait uygulanan deneysel tasarım yöntemlerinin korelasyon katsayıları ve standart sapma deęerleri

Tasarım adı	R <sup>2</sup>	σ
2 <sup>k</sup> Faktöriyel	0.6338	16.41
Box-Behnken	0.9944	2.15
3 <sup>k</sup> Faktöriyel	0.9705	4.48



Şekil 8.25 Susam küspesi numunesine ait farklı pH, biosorbent miktarı ve temas süresi şartlarında gerçekleştirilen deneyler sonucunda elde edilen % adsorpsiyon değerleri ile Box-Behnken tasarımı uygulanarak elde edilen teorik % adsorpsiyon değerlerinin karşılaştırılması

Çizelge 8.27 Susam küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarım modelinden elde edilen teorik veriler ile deneysel verilerin karşılaştırılması

<b>X<sub>1</sub></b>	<b>X<sub>2</sub></b>	<b>X<sub>3</sub></b>	<b>% Adsorpsiyon (Teorik)</b>	<b>% Adsorpsiyon (Deneysel)</b>
4	0.25	30	98.4	98.6
2	0.25	20	77.9	76.0
4	0.15	20	97.1	97.7
4	0.15	20	97.1	97.6
4	0.25	10	81.4	84.6
4	0.05	30	81.6	69.8
4	0.15	20	97.1	96.9
4	0.15	20	97.1	88.7
6	0.15	30	97.3	98.3
6	0.15	10	87.2	85.8
4	0.15	20	97.1	97.4
6	0.05	20	88.4	90.4
2	0.15	30	67.6	69.0
4	0.05	10	62.9	56.6
2	0.15	10	45.0	44.1
6	0.25	20	93.3	91.9
2	0.05	20	32.1	33.6

Çizelge 8.28 Susam küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarımı ile elde optimum koşullar ve bu koşullarda ulaşılabilecek maksimum % adsorpsiyon değerleri

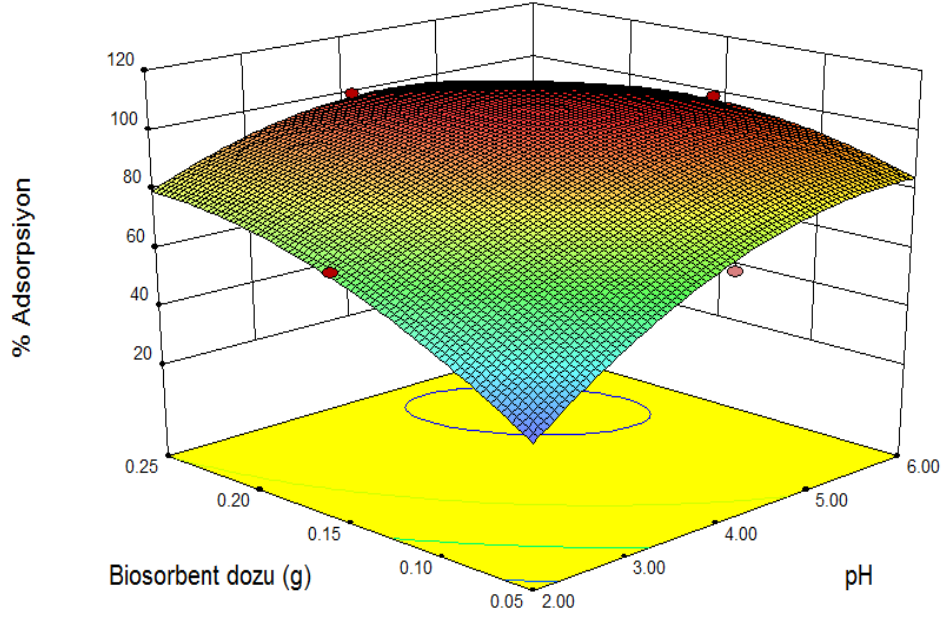
<b>Parametre adı</b>	<b>Parametre değeri</b>	<b>% Adsorpsiyon</b>
pH	4	
Biosorbent miktarı (g)	0.25	98.41
Temas süresi (dak)	30	

Design Expert programı tarafından önerilen Çizelge 8.28’da verilen optimum koşullar dışında, en uygun noktalar olarak belirttiği 42 optimizasyon çözümü daha önermektedir. Bu değerler, Çizelge EK-C.3’de verilmiştir. Design Expert programı, adsorpsiyon prosesi için optimum koşulların 43 farklı kombinasyon arasından seçilmesini ya da işletmecinin hedeflerine göre çalışmak istediği farklı parametreleri belirlemesini mümkün kılmaktadır.

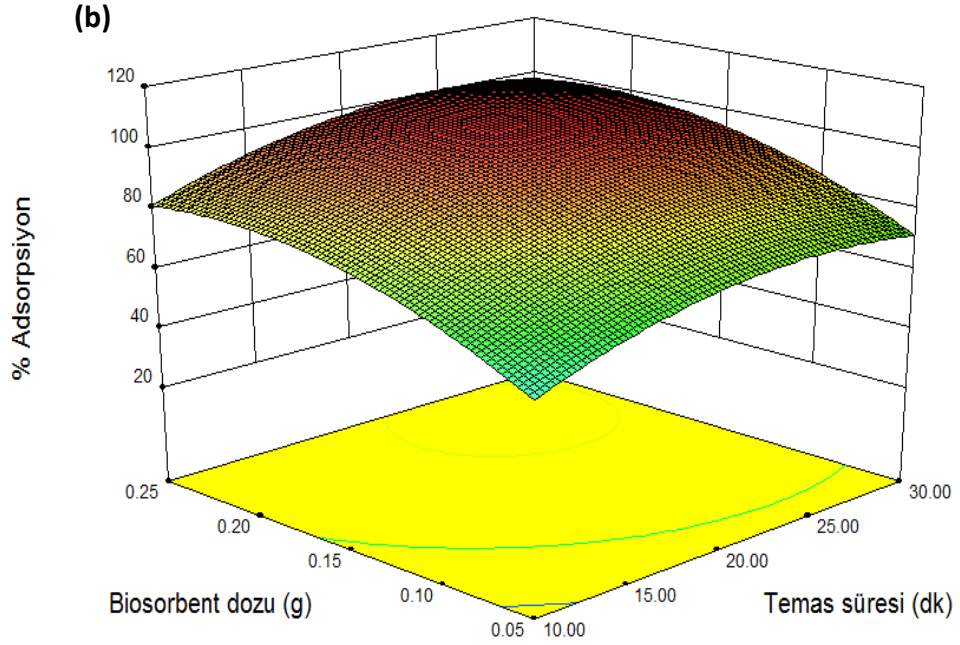
#### **8.3.3.8 Susam küspesi numunesine ait tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği**

Design Expert 9.0 deneysel tasarım programı vasıtasıyla alüminyumun muz kabuğu ile adsorpsiyonu prosesi için parametrelerin adsorpsiyon işleminin verimine olan etkilerinin etkilerinin grafiksel olarak gözlemlenmesi ve yorumlanması amacıyla üç boyutlu cevap yüzey grafikleri oluşturulmuştur.

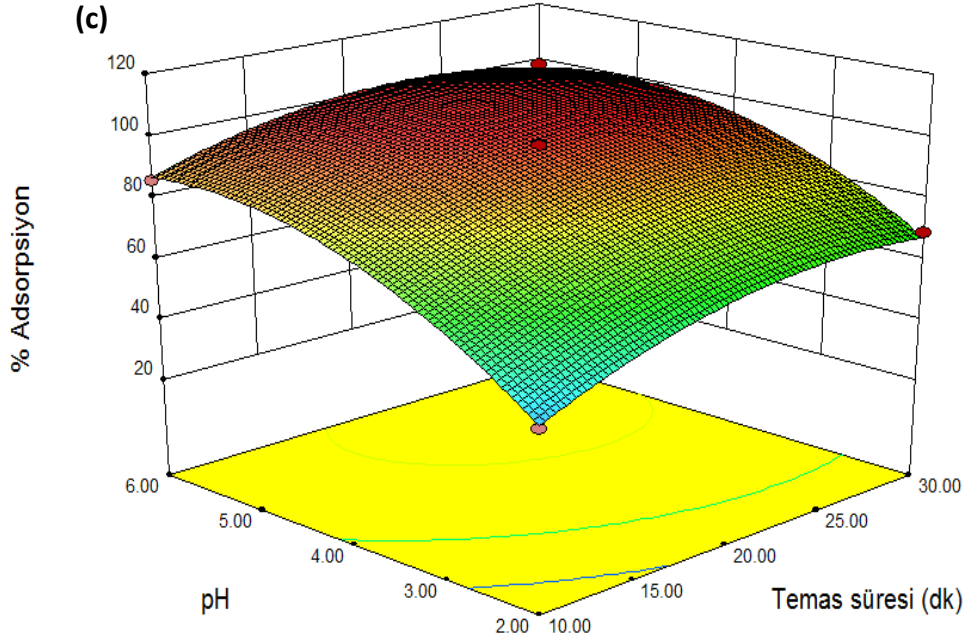
Gerçekleştirilen adsorpsiyon prosesi için, optimum değer olarak belirlenen parametrelerinin, % adsorpsiyon değeri ile etkileşimi Şekil 8.26-8.28’de gösterilmektedir. Susam küspesi ile alüminyum giderimi adsorpsiyon prosesinde optimum parametre noktalarında %95’in üzerinde giderim gerçekleştiği görülmektedir.



Şekil 8.26 Susam küspesi numunesine ait biosorbent dozu ve pH tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 8.27 Susam küspesi numunesine ait biosorbent dozu ve temas süresi tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 8.28 Susam küspesi numunesine ait pH ve temas süresi tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği

### 8.3.4 Aspir küspesi numunesine ait sonuçlar

#### 8.3.4.1 Aspir küspesi numunesine ait $2^k$ faktöriyel tasarım sonuçları

$2^k$  faktöriyel tasarım yöntemi uygulanarak, gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneyleri sonucunda elde edilen % adsorpsiyon değerleri Çizelge 8.29’da verilmiştir. Deneyler; farklı pH, biosorbent miktarı ve temas sürelerinde gerçekleştirilen 12 deney ve orta noktada 5 tekrar deneyinden oluşmaktadır. Çizelge 8.29’da görülen  $X_1$ ,  $X_2$  ve  $X_3$  kodları sırasıyla pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) parametrelerini ifade etmektedir.

Çizelge 8.29 incelendiğinde en yüksek % adsorpsiyon değerinin pH 6, 0.25 g biosorbent miktarı, 30 dakika deney koşullarında %97.7 değerinde, en düşük % adsorpsiyon değerinin ise pH 2, 0.05 g biosorbent miktarı ve 10 dakika deney koşullarında %25.6 değerinde elde edildiği görülmektedir. Orta noktalarda gerçekleştirilen 5 tekrar deneyi sonucu elde edilen % adsorpsiyon değerleri ise birbirine yakın olduğu gözlemlenmiştir. Elde edilen bu sonuç, deneysel hataların başarıyla minimize edildiğini göstermektedir.

Çizelge 8.29 Aspir küspesi numunesine ait 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım ile elde edilen deneysel veriler

Deney No	X <sub>1</sub>	X <sub>2</sub>	X <sub>3</sub>	% Adsorpsiyon
1	4	0.15	20	75.4
2	6	0.05	30	92.2
3	2	0.05	30	41.0
4	4	0.15	20	76.3
5	2	0.25	10	32.2
6	2	0.05	10	25.6
7	4	0.15	20	76.8
8	4	0.15	20	75.4
9	6	0.25	30	97.7
10	4	0.15	20	75.0
11	2	0.25	30	67.0
12	6	0.25	10	94.4
13	6	0.05	10	88.4

#### 8.3.4.2 Aspir küspesi numunesine ait 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak model denklem geliştirilmesi

Alüminyumun adsorpsiyon prosesi için 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak farklı pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) değerleri ile elde edilen deney verileri kullanılarak Design Expert9.0 programı vasıtasıyla model denklem geliştirilmiştir. Quadratik model seçilerek geliştirilen model denklemler sırasıyla Eşitlik (8.10)'de, varyans (ANOVA) analizi sonuçları Çizelge 8.30'da verilmiştir.

Quadratik model için önerilen denklemin prosesi ifade eden en uygun model denklem haline dönüşmesi için güvenilirlik seviyesi %95'in altında olan terimler yani P değerinin 0.05'den fazla olduğu terimler model denklemden çıkarılmıştır.

$$Y_{\text{aspir küspesi}} = 12.93875 * X_1 + 0.71475 * X_3 + 4.52846 \quad (8.10)$$

Eşitlik 8.10 incelendiğinde, pH ve temas süresi parametrelerinin artmasının adsorpsiyon prosesinde % adsorpsiyon değerini arttırdığı görülmektedir. Geliştirilen model denklemler için elde edilen model denklemin güvenilirlik değeri, ANOVA analizi sonucu %99.99'un üzerinde bulunmuştur. 33.97 olarak hesaplanan F değerinin

uygunluđu, 0.8717 olarak hesaplanan korelasyon katsayısının denklemin uygulanabilir olduđunu göstermiřtir.

Çizelge 8.30 Aspir küspesi numunesine ait 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları

Kaynak	Kareler Toplamı	Serbestlik Derecesi	Karelerin Ortalaması	F-Deđeri	P-Deđeri
Model	5765.85	2	2882.93	33.97	< 0.0001
Kalan	848.68	10	84.87		
Toplam	6614.53	12			

#### 8.3.4.3 Aspir küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarım sonuçları

Box-Behnken tasarım yöntemi uygulanarak planlanan ve gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneyleri sonucunda elde edilen % adsorpsiyon deđerleri Çizelge 8.31’de verilmiřtir. Deneyler; farklı pH, biosorbent miktarı ve temas sürelerinde gerçekleştirilen 8 deney ve orta noktada 5 tekrar deneyinden oluřmaktadır. Çizelge 8.31’de görölen X<sub>1</sub>, X<sub>2</sub> ve X<sub>3</sub> kodları sırasıyla pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) parametrelerini ifade etmektedir.

Çizelge 8.31 incelendiđinde en yüksek % adsorpsiyon deđerinin pH 6, 0.25 g, 20 dak deney kořullarında %97 deđerinde, en düşük % adsorpsiyon deđerinin ise pH 2, 0.05 g, 20 dak deney kořullarında %38.4 deđerinde elde edildiđi görölmektedir. Orta noktalarda gerçekleştirilen 5 tekrar deneyi sonucu elde edilen % adsorpsiyon deđerlerinin ise birbirine yakın olduđu gözlemlenmiřtir. Elde edilen bu sonuç, deneysel hataların başarıyla minimize edildiđini göstermektedir.

Çizelge 8.31 Aspir küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarımı ile elde edilen deneysel veriler

Deney No	X <sub>1</sub>	X <sub>2</sub>	X <sub>3</sub>	% Adsorpsiyon
1	4	0.25	30	94.2
2	2	0.25	20	64.2
3	4	0.15	20	75.4
4	4	0.15	20	76.8
5	4	0.25	10	75.5
6	4	0.05	30	56.5
7	4	0.15	20	73.1
8	4	0.15	20	76.3
9	6	0.15	30	96.2
10	6	0.15	10	89.3
11	4	0.15	20	75.0
12	6	0.05	20	90.9
13	2	0.15	30	59.2
14	4	0.05	10	48.0
15	2	0.15	10	43.8
16	6	0.25	20	97.0
17	2	0.05	20	38.4

#### 8.3.4.4 Aspir küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarım metodu uygulanarak model denklem geliştirilmesi

Alüminyumun adsorpsiyon prosesi için Box-Behnken tasarım metodu uygulanarak farklı pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) değerleri ile elde edilen deney verileri kullanılarak Design Expert 9.0 programı vasıtasıyla model denklem geliştirilmiştir. Quadratik model seçilerek geliştirilen model denklemler sırasıyla Eşitlik (8.11)'de, varyans (ANOVA) analizi sonuçları Çizelge 8.32'de verilmiştir.

Quadratik model için önerilen denklemin prosesi ifade eden en uygun model denklem haline dönüşmesi için, güvenilirlik seviyesi %95'in altında olan terimler yani P değerinin 0.05'den fazla olduğu terimler model denklemden çıkarılmıştır.

$$Y_{\text{aspir küspesi}} = 14.18750 * X_1 + 221.17500 * X_2 + 0.60600 * X_3 - 24.62500 * X_1 * X_2 - 14.8606 \quad (8.11)$$

Eşitlik 8.11 incelendiğinde, pH, biosorbent miktarı ve temas süresi parametrelerinin artmasının adsorpsiyon prosesinde % adsorpsiyon değerini arttırdığı görülmektedir. Box-Behnken tasarım yöntemi uygulandığında elde edilen model denkleme bakılarak, biosorbent miktarının adsorpsiyon prosesi üzerinde daha fazla etkili olduğu açıkça ifade edilebilmektedir. Ayrıca denklem parametreleri katsayıları incelendiğinde elde edilen % adsorpsiyon verilerinin (pH\*biosorbent miktarı) terimi artması ile azaldığı görülmektedir.

Design Expert 9.0 programı ile elde edilen model denklemin güvenilirlik değeri, ANOVA analizi sonucu %99.99'un üzerinde bulunmuştur. 52.65 olarak hesaplanan F değerinin uygunluğu, 0.9461 olarak hesaplanan korelasyon katsayısının 1'e olan yakınlığı model denklemin uygulanabilir olduğunu göstermiştir.

Çizelge 8.32 Aspir küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları

Kaynak	Kareler Toplamı	Serbestlik Derecesi	Karelerin Ortalaması	F-Değeri	P-Değeri
Model	5118.55	4	1279.64	52.65	< 0.0001
Kalan	291.66	12	24.30		
Toplam	5410.20	16			

#### 8.3.4.5 Aspir küspesi numunesine ait 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım sonuçları

3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım yöntemi uygulanarak, gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneyleri sonucunda elde edilen % adsorpsiyon değerleri Çizelge 8.33'de verilmiştir. Deneyler; farklı pH, biosorbent miktarı ve temas sürelerinde gerçekleştirilen 27 deney ve orta noktada 5 tekrar deneyinden oluşmaktadır. Çizelge 8.33'de görülen X<sub>1</sub>, X<sub>2</sub> ve X<sub>3</sub> kodları sırasıyla pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) parametrelerini ifade etmektedir. Çizelge 8.33'de incelendiğinde en yüksek % adsorpsiyon değerinin pH 6, 0.25 g ve 30 dakika deney koşullarında %97.7 değerinde, en düşük % adsorpsiyon

değerinin ise pH 2, 0.05 g ve 10 dakika deney koşullarında %32.2 değerinde elde edildiği görülmektedir. Orta noktalarda gerçekleştirilen 5 tekrar deneyi sonucu elde edilen % adsorpsiyon değerleri ise birbirine yakın olduğu gözlemlenmiştir. Elde edilen bu sonuç, deneysel hataların başarıyla minimize edildiğini göstermektedir.

Çizelge 8.33 Aspir küspesi numunesine ait  $3^k$  faktöriyel tasarım ile elde edilen deneysel veriler

Deney No	X <sub>1</sub>	X <sub>2</sub>	X <sub>3</sub>	% Adsorpsiyon
1	2	0.15	10	43.8
2	4	0.15	30	80.6
3	4	0.25	30	88.5
4	6	0.25	10	94.4
5	4	0.05	10	48.0
6	4	0.25	10	76.5
7	6	0.25	30	97.7
8	4	0.15	30	76.3
9	4	0.15	20	76.8
10	2	0.05	10	32.2
11	6	0.05	20	90.9
12	2	0.25	10	46.6
13	4	0.05	20	55.8
14	6	0.15	30	96.2
15	4	0.05	30	56.5
16	6	0.15	20	92.3
17	2	0.15	30	67.0
18	4	0.25	20	88.5
19	4	0.15	10	58.2
20	4	0.15	20	75.4
21	2	0.25	20	64.2
22	2	0.05	30	41.0
23	4	0.15	20	71.4
24	6	0.05	10	88.4
25	4	0.15	20	75.0
26	6	0.05	30	92.2
27	2	0.15	30	59.2
28	2	0.05	20	38.4
29	2	0.15	20	56.6
30	6	0.25	20	97.0
31	6	0.15	10	89.3
32	4	0.15	20	73.1

### 8.3.4.6 Aspir küspesi numunesine ait 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak model denklem geliştirilmesi

Alüminyumun adsorpsiyon prosesi için 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu uygulanarak farklı pH, biosorbent miktarı (g) ve temas süresi (dak) değerleri ile elde edilen deney verileri kullanılarak Design Expert 9.0 programı vasıtasıyla model denklem geliştirilmiştir. Quadratik model seçilerek geliştirilen model denklemler sırasıyla Eşitlik (8.12)'de, varyans (ANOVA) analizi sonuçları Çizelge 8.34'de verilmiştir.

Quadratik model için önerilen denklemin prosesi ifade eden en uygun model denklem haline dönüşmesi için, güvenilirlik seviyesi %95'in altında olan terimler yani P değerinin 0.05'den fazla olduğu terimler model denklemden çıkarılmıştır.

$$Y_{\text{aspir küspesi}} = 13.85944 * X_1 + 179.34444 * X_2 + 0.56356 * X_3 - 20.23333 * X_1 * X_2 \quad (8.12)$$

Eşitlik 8.12 incelendiğinde, pH, biosorbent miktarı ve temas süresi parametrelerinin artmasının adsorpsiyon prosesinde % adsorpsiyon değerini arttırdığı görülmektedir. Box-Behnken tasarım yöntemi uygulandığında elde edilen model denkleme bakılarak, biosorbent miktarının adsorpsiyon prosesi üzerinde daha fazla etkili olduğu açıkça ifade edilebilmektedir. Ayrıca denklem parametreleri katsayıları incelendiğinde elde edilen % adsorpsiyon verilerinin (pH\*biosorbent miktarı) terimi artması ile azaldığı görülmektedir.

Design Expert 9.0 programı ile elde edilen model denklemin güvenilirlik değeri, ANOVA analizi sonucu %99.99'un üzerinde bulunmuştur. 98.51 olarak hesaplanan F değerinin uygunluğu, 0.9359 olarak hesaplanan korelasyon katsayısının model denklemin uygulanabilir olduğunu göstermiştir.

Çizelge 8.34 Aspir küspesi numunesine ait 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım metodu ile elde edilen model denklemin ANOVA analiz sonuçları

Kaynak	Kareler Toplamı	Serbestlik Derecesi	Karelerin Ortalaması	F-Değeri	P-Değeri
Model	10947.57	4	2736.89	98.51	< 0.0001
Kalan	750.16	27	27.78		
Toplam	11697.73	31			

#### 8.3.4.7 Aspir küspesi numunesine ait uygulanan deneysel tasarım yöntemlerinin karşılaştırılması

Alüminyumun adsorpsiyonu prosesinin optimizasyonu için 2<sup>k</sup> faktöriyel tasarım, 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım ve Box-Behnken olmak üzere uygulanan 3 deneysel tasarım yöntemi ile model denklemler elde edilmiştir. Geliştirilen model denklemlerin istatistiksel açıdan anlamlılığı varyans analiziyle (ANOVA) incelenerek yorumlanmıştır. %99'un üzerinde güvenilirlikle model denklemlerin kullanılabilirliği teyit edilmiştir.

Çizelge 8.35'de verilen standart sapma değerleri ve korelasyon katsayıları alüminyumun adsorpsiyonu prosesini en iyi ifade eden deneysel tasarım yöntemini saptamak amacıyla karşılaştırılmıştır. Box-Behnken tasarımı ve 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarım yöntemlerinin, yüksek korelasyon katsayısı ( $R^2$ ) ve düşük standart sapma ( $\sigma$ ) değerlerine sahip olması, bu tasarım metotlarının uygulanması ile daha doğru sonuçlar elde edileceği kanısına varılmıştır.

Birbirlerine yakın korelasyon ve standart sapma değerlerine sahip olmalarına rağmen, 3<sup>k</sup> faktöriyel tasarımı için yapılması gerekli deney sayılarının Box-Behnken tasarımı için gerekli olan deney sayılarının çok fazla olması sebebiyle, ayrıca zaman ve maliyet

açısından değerlendirildiğinde Box-Behnken tasarımının uygulanmasına karar verilmiştir.

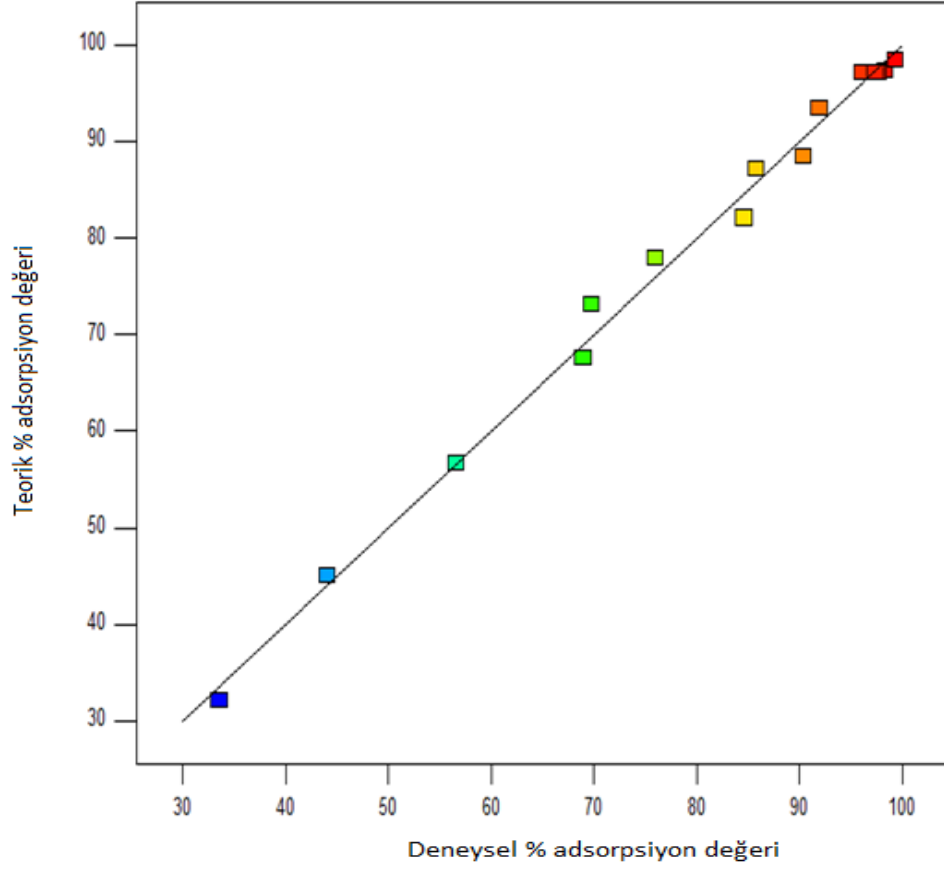
Uygunluğu tespit edilen Box-Behnken tasarım metodu uygulanarak gerçekleştirilen adsorpsiyon deneyleri verilerinin, elde edilen model denklemlerden hesaplanan teorik % adsorpsiyon değerleri ile yapılan karşılaştırılması Çizelge 8.36'da verilmiştir. Ayrıca, deneysel ve teorik % adsorpsiyon değerlerinin grafiksel karşılaştırılması Şekil 8.29'da verilmiştir.

Box-Behnken tasarımı uygulanarak muz kabuğu ile alüminyumun adsorpsiyonu prosesinde, yapılan optimizasyon çalışması ile maksimum adsorpsiyon için Design Expert 9.0 programı tarafından yapılan tahmin ve elde edilmesi beklenen % adsorpsiyon değeri ise Çizelge 8.37'de verilmiştir.

Belirlenen optimum koşullarda gerçekleştirilen deneyler sonucunda elde edilen deneysel verilerin program tarafından önerilen teorik % adsorpsiyon değerlerine yakın olması, Box-Behnken tasarımının proses için uygunluğunu göstermektedir.

Çizelge 8.35 Aspir küspesi numunesine ait uygulanan deneysel tasarım yöntemlerinin korelasyon katsayıları ve standart sapma değerleri

Tasarım adı	R <sup>2</sup>	$\sigma$
2 <sup>k</sup> Faktöriyel	0.8717	9.21
Box-Behnken	0.9461	0.92
3 <sup>k</sup> Faktöriyel	0.9359	5.27



Şekil 8.29 Aspirin küspesi numunesine ait farklı pH, biosorbent miktarı ve temas süresi şartlarında gerçekleştirilen deneyler sonucunda elde edilen % adsorpsiyon değerleri ile Box-Behnken tasarımı uygulanarak elde edilen teorik % adsorpsiyon değerlerinin karşılaştırılması

Çizelge 8.36 Aspir küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarım modelinden elde edilen teorik veriler ile deneysel verilerin karşılaştırılması

$X_1$	$X_2$	$X_3$	% Adsorpsiyon (Teorik)	% Adsorpsiyon (Deneysel)
4	0.25	30	90.7	92.7
2	0.25	20	56.6	64.2
4	0.15	20	72.4	83.8
4	0.15	20	72.4	84.2
4	0.25	10	78.6	81.6
4	0.05	30	66.2	56.8
4	0.15	20	72.4	84.2
4	0.15	20	72.4	88.7
6	0.15	30	99.4	97.5
6	0.15	10	87.3	92.3
4	0.15	20	72.4	80.1
6	0.05	20	86.0	78.4
2	0.15	30	62.3	57.4
4	0.05	10	54.0	44.1
2	0.15	10	59.6	54.0
6	0.25	20	99.7	96.2
2	0.05	20	34.2	40.7

Çizelge 8.37 Aspir küspesi numunesine ait Box-Behnken tasarımı ile elde edilen optimum koşullar ve bu koşullarda ulaşılabilecek maksimum % adsorpsiyon değerleri

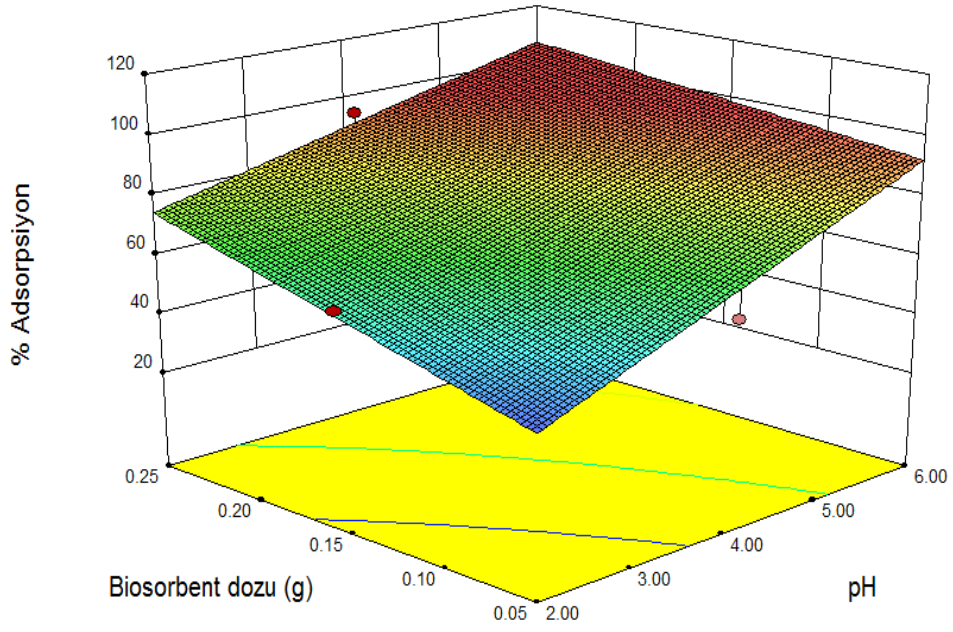
Parametre adı	Parametre değeri	% Adsorpsiyon
pH	6	
Biosorbent miktarı (g)	0.25	99.45
Temas süresi (dak)	30	

Design Expert programı tarafından önerilen Çizelge 8.37’de verilen optimum koşullar dışında, en uygun noktalar olarak belirttiği 42 optimizasyon çözümü daha önermektedir. Bu değerler, Çizelge EK-C.4’de verilmiştir. Design Expert programı, adsorpsiyon prosesi için optimum koşulların 43 farklı kombinasyon arasından seçilmesini ya da işletmecinin hedeflerine göre çalışmak istediği farklı parametreleri belirlemesini mümkün kılmaktadır.

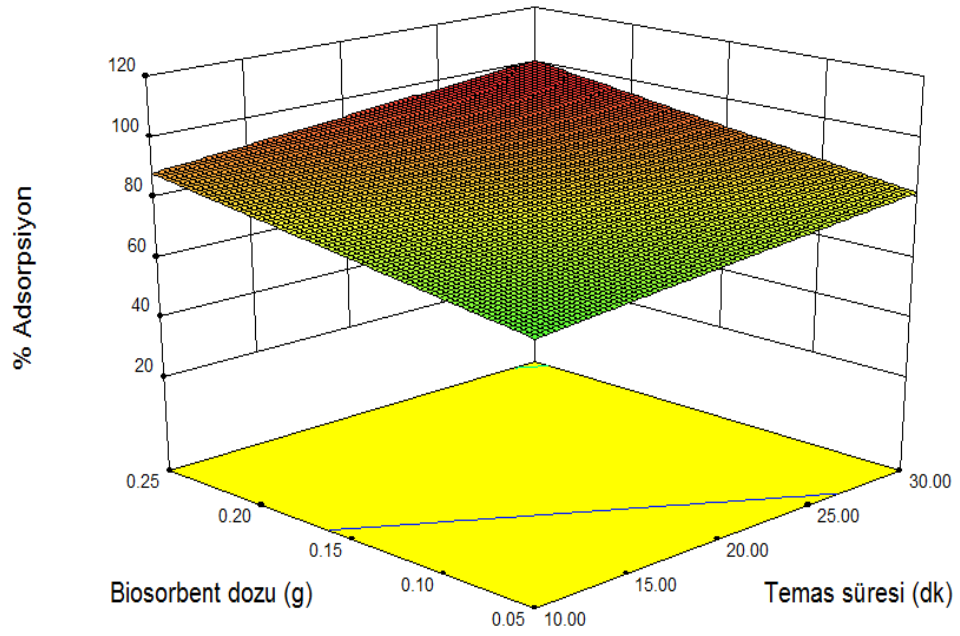
#### **8.3.4.8 Aspir küspesi numunesine ait tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği**

Design Expert 9.0 deneysel tasarım programı vasıtasıyla alüminyumun muz kabuğu ile adsorpsiyonu prosesi için parametrelerin adsorpsiyon işleminin verimine olan etkilerinin etkilerinin grafiksel olarak gözlemlenmesi ve yorumlanması amacıyla üç boyutlu cevap yüzey grafikleri oluşturulmuştur.

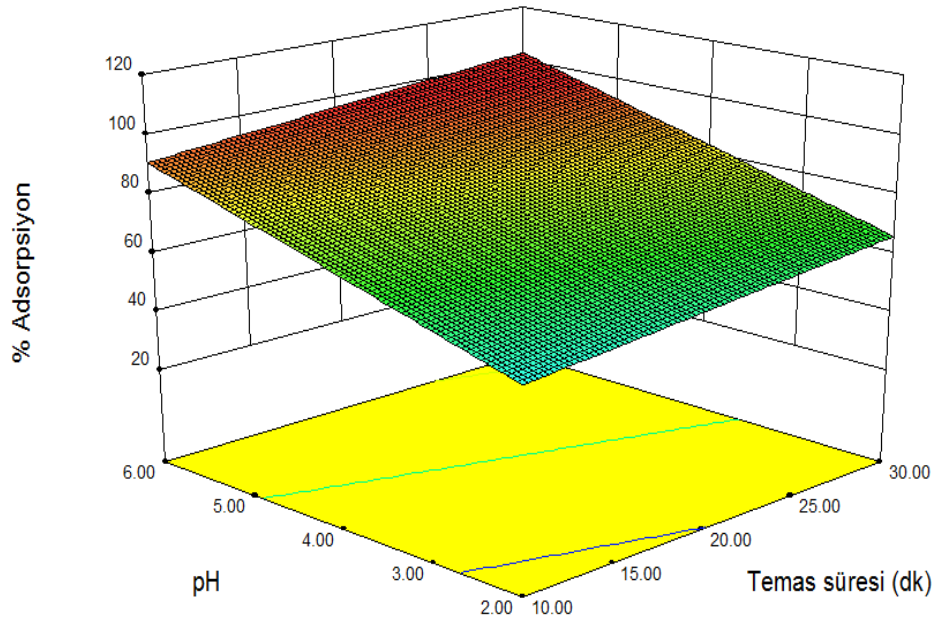
Gerçekleştirilen adsorpsiyon prosesi için, optimum değer olarak belirlenen parametrelerinin, % adsorpsiyon değeri ile etkileşimi Şekil 8.30-8.32’de gösterilmektedir. Aspir küspesi ile alüminyum giderimi adsorpsiyon prosesinde optimum parametre noktalarında %95’in üzerinde giderim gerçekleştiği görülmektedir.



Şekil 8.30 Aspir küspesi numunesine ait biosorbent dozu ve pH tasarım parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 8.31 Aspir küspesi numunesine ait biosorbent dozu ve temas süresi parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği



Şekil 8.32 Aspir küspesi numunesine ait pH ve temas süresi parametrelerinin % adsorpsiyon ile etkileşimini veren Box-Behnken tasarımı 3D cevap yüzey grafiği

## 8.4 Adsorpsiyon İzotermi

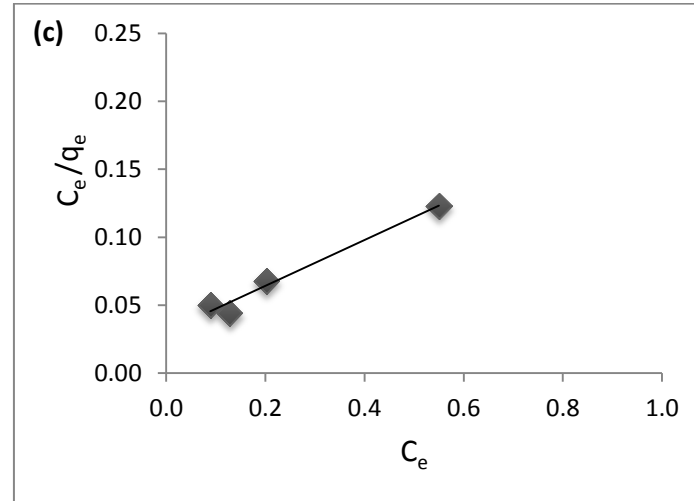
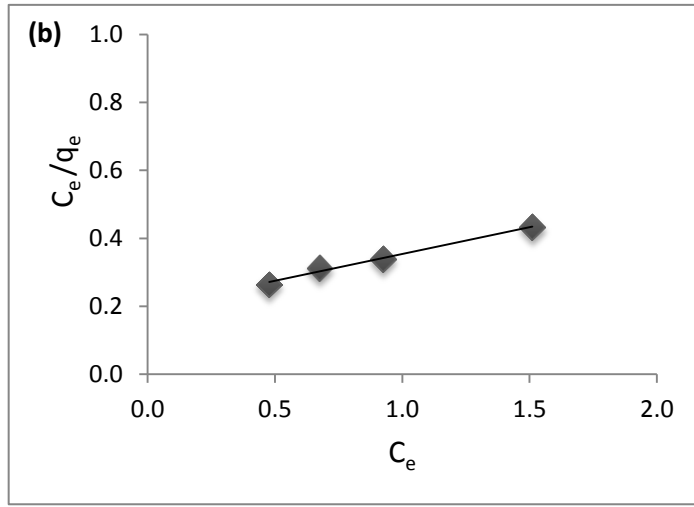
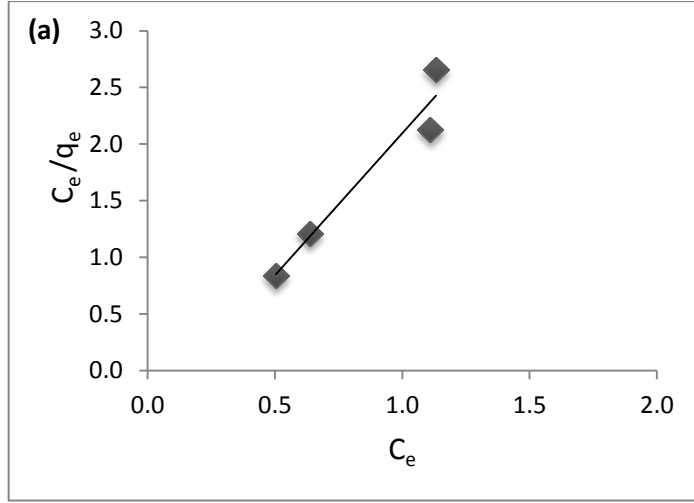
### 8.4.1 Muz kabuğu numunesine ait adsorpsiyon izoterm çalışmaları

Bu bölümde; muz kabuğu numuneleri ile yapılan adsorpsiyon deneyleri sonucunda elde edilen verileri ile oluşturulan izoterm modellerinden elde edilen veriler karşılaştırılmış ve deneysel verilerin izoterm modellerine uygunlukları incelenmiştir. Alüminyumun muz kabuğu ile adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen veriler Langmuir, Freundlich ve BET izoterm modellerine uygulanarak ilgili sabitler hesaplanmıştır.  $R^2$  katsayıları ve standart sapma ( $\sigma$ ) değerleri karşılaştırıldığında Langmuir modelinin alüminyum ile muz kabuğu adsorpsiyonu prosesi için en uygun izoterm modeli olduğu görülmüştür ( Şekil 8.33).

Çizelge 8.38’de verilen değerlerden, Langmuir izoterm modelinin regresyon katsayısı ( $R^2$ ) değerlerinin 1’e oldukça yakın olduğu görülmektedir. Ayrıca Langmuir izoterm modelinin standart sapma ( $\sigma$ ) değerlerinin küçük olması sebebiyle de Langmuir izoterm modelinin alüminyumun muz kabuğu ile adsorpsiyonu prosesi için en uygun model olduğu görülmüştür.  $Q_{max}$  değerleri karşılaştırıldığında en yüksek maksimum alüminyum adsorpsiyonu kapasitesi ( $Q_{max}$ ) pH 6 ve 25 °C şartlarında 11.041 mg/g olarak bulunmuştur. Bununla birlikte, pH 6’da gerçekleştirilen deneylerde adsorpsiyon kapasitesinin pH 2 ve pH 4’dekilere kıyasla daha fazla olduğu tespit edilmiştir.

Çizelge 8.39’da verilen değerlerden, Freundlich izoterm modelinin muz kabuğunun alüminyum üzerine adsorpsiyonunu açıklamakta Langmuir izoterm modeline yakın sonuçlar vermiş olsada, karşılaştırıldığında yetersiz kaldığı kanısına varılmıştır. Freundlich izoterm modelinin alüminyumun adsorpsiyonu işlemini açıklamakta Langmuir izoterm modeline göre yetersiz kalmasının bir diğer nedeninde standart sapma değerlerinin daha yüksek olmasıdır.

Çizelge 8.40’da deneysel verilerin BET izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler verilmiştir. Çizelge 8.40 incelendiğinde korelasyon ( $R^2$ ) katsayısının 1’den oldukça uzak olduğu görülmektedir. Ayrıca standart sapma değerlerinin çok yüksek olması sebebiyle de BET izoterm modelinin adsorpsiyon işlemine uygun olmadığı sonucuna varılmıştır.



Şekil 8.33 Muz kabuğu numunesine ait 5 mg Al<sup>+3</sup>/L başlangıç konsantrasyonu, 25°C ve farklı pH değerlerinde alüminyum adsorpsiyonu-Langmuir izotermi (■ Deneysel; — Langmuir) (a) pH 2.0, (b) pH 4.0 ve (c) pH 6.0

Çizelge 8.38 Muz kabuğu numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Langmuir izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler

pH	T (°C)	$Q_{max}$ (mg/g)	b (L/mg)	$R^2$	$\sigma$
2	25	4.9164	1.8682	0.9796	0.0599
4	25	6.7843	0.8063	0.9956	0.0099
6	25	11.0410	0.1708	0.9873	0.0069

Çizelge 8.39 Muz kabuğu numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Freundlich izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler

pH	T (°C)	$K_F$ (mg <sup>1-1/n</sup> L <sup>1/n</sup> g <sup>-1</sup> )	n	$R^2$	$\sigma$
2	25	1.6748	1.8587	0.8007	0.2508
4	25	2.9285	1.3821	0.9809	0.1003
6	25	1.0307	1.8304	0.9794	0.1291

Çizelge 8.40 Muz kabuğu numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin BET izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler

pH	T (°C)	$Q_{max}$ (mg/g)	$K_B$	$R^2$	$\sigma$
2	25	0.021	0.795	0.3300	3.0226
4	25	0.058	0.729	0.4257	2.1845
6	25	0.480	1.616	0.9086	4.8299

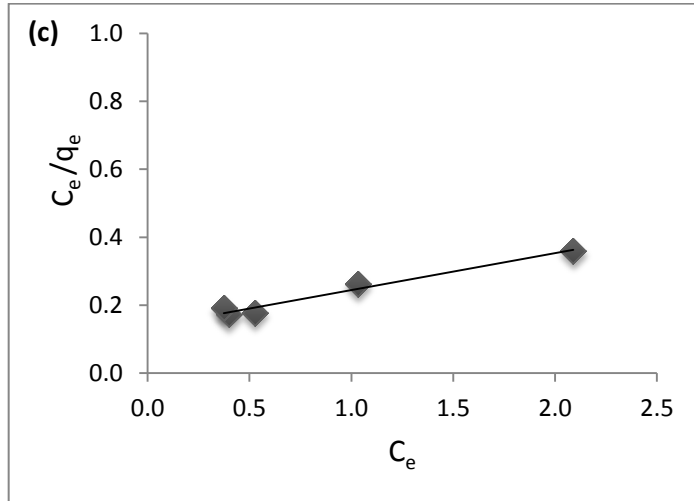
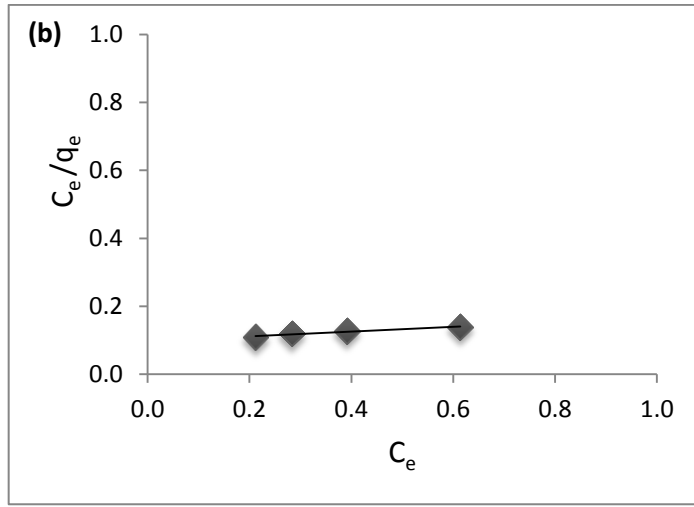
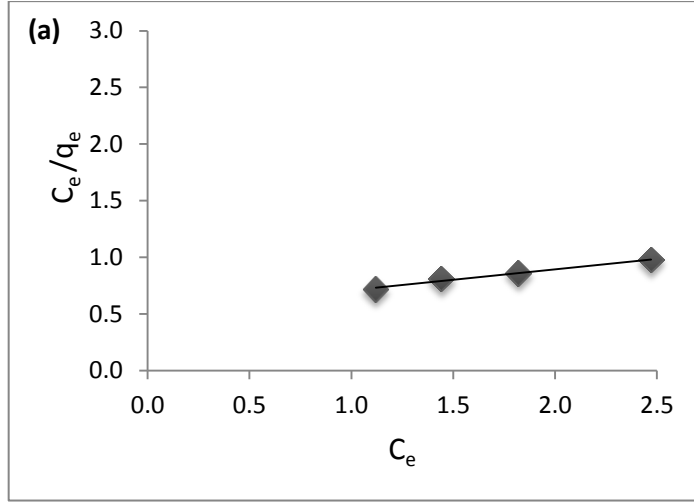
#### 8.4.2 Limon kabuğu numunesine ait adsorpsiyon izoterm çalışmaları

Bu bölümde; limon kabuğu numuneleri ile yapılan adsorpsiyon deneyleri sonucunda elde edilen verileri ile oluşturulan izoterm modellerinden elde edilen veriler karşılaştırılmış ve deneysel verilerin izoterm modellerine uygunlukları incelenmiştir. Alüminyumun limon kabuğu ile adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen veriler Langmuir, Freundlich ve BET izoterm modellerine uygulanarak ilgili sabitler hesaplanmıştır.  $R^2$  katsayıları ve standart sapma ( $\sigma$ ) değerleri karşılaştırıldığında Langmuir modelinin alüminyum ile limon kabuğu adsorpsiyonu prosesi için en uygun izoterm modeli olduğu görülmüştür (Şekil 8.34).

Çizelge 8.41'de verilen değerlerden, Langmuir izoterm modelinin regresyon katsayısı ( $R^2$ ) değerlerinin 1'e oldukça yakın olduğu görülmektedir. Ayrıca Langmuir izoterm modelinin standart sapma ( $\sigma$ ) değerlerinin küçük olması sebebiyle de Langmuir izoterm modelinin alüminyumun limon kabuğu ile adsorpsiyonu prosesi için en uygun model olduğu görülmüştür. Bunun yanı sıra Çizelge 8.41'de verilen  $Q_{max}$  değerleri karşılaştırıldığında maksimum alüminyum adsorpsiyonu kapasitesi ( $Q_{max}$ ) pH 6 ve 25 °C deney koşullarında 7.8678 mg/g olarak hesaplanmıştır. Bununla birlikte pH 6'da gerçekleştirilen deneylerde adsorpsiyon kapasitesinin pH 2 ve pH 4'dekilere kıyasla daha fazla olduğu tespit edilmiştir.

Çizelge 8.42'de verilen değerlerden, Freundlich izoterm modelinin limon kabuğunun alüminyum üzerine adsorpsiyonunu açıklamakta Langmuir izoterm modeline yakın sonuçlar vermiş olsada, karşılaştırıldığında yetersiz kaldığı kanısına varılmıştır. Freundlich izoterm modelinin alüminyumun adsorpsiyonu işlemini açıklamakta Langmuir izoterm modeline göre yetersiz kalmasının bir diğer nedeninde standart sapma değerlerinin daha yüksek olmasıdır.

Çizelge 8.43'de deneysel verilerin BET izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler verilmiştir. Çizelge 8.42 incelendiğinde korelasyon ( $R^2$ ) katsayısının 1'den oldukça uzak olduğu görülmektedir. Ayrıca standart sapma değerlerinin çok yüksek olması sebebiyle de BET izoterm modelinin adsorpsiyon işlemine uygun olmadığı sonucuna varılmıştır.



Şekil 8.34 Limon kabuğu numunesine ait 5 mg Al<sup>3+</sup>/L başlangıç konsantrasyonu, 25°C ve farklı pH değerlerinde alüminyum adsorpsiyonu-Langmuir izotermi (■ Deneysel; — Langmuir) (a) pH 2.0, (b) pH 4.0 ve (c) pH 6.0

Çizelge 8.41 Limon kabuğu numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Langmuir izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler

pH	T (°C)	$Q_{\max}$ (mg/g)	b (L/mg)	$R^2$	$\sigma$
2	25	3.9032	0.3438	0.9923	0.0161
4	25	5.5188	1.0031	0.9919	0.1678
6	25	7.8678	0.7044	0.9834	0.0027

Çizelge 8.42 Limon kabuğu numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Freundlich izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler

pH	T (°C)	$K_F$ ( $\text{mg}^{1-1/n}\text{L}^{1/n}\text{g}^{-1}$ )	n	$R^2$	$\sigma$
2	25	1.3342	1.2496	0.9843	0.0687
4	25	4.0466	1.5033	0.9427	0.1300
6	25	9.9612	0.8842	0.9311	0.2520

Çizelge 8.43 Limon kabuğu numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin BET izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler

pH	T (°C)	$Q_{\max}$ (mg/g)	$K_B$	$R^2$	$\sigma$
2	25	0.0078	0.8070	0.7519	1.8127
4	25	0.0916	0.7113	0.2929	3.7316
6	25	0.7993	0.6737	0.7915	0.0603

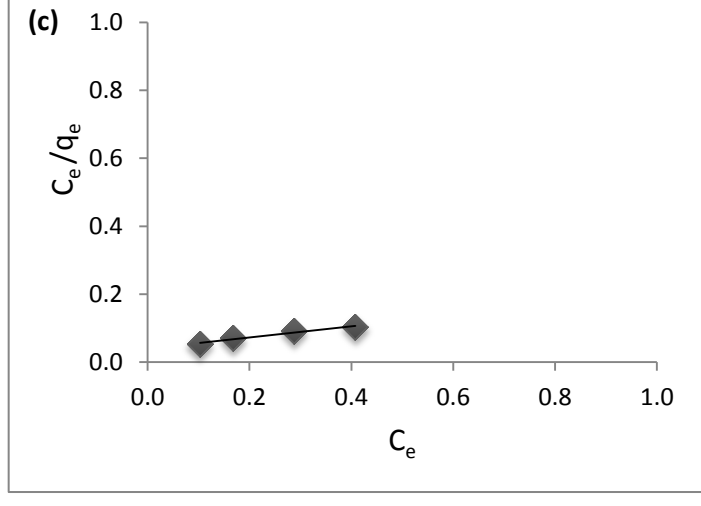
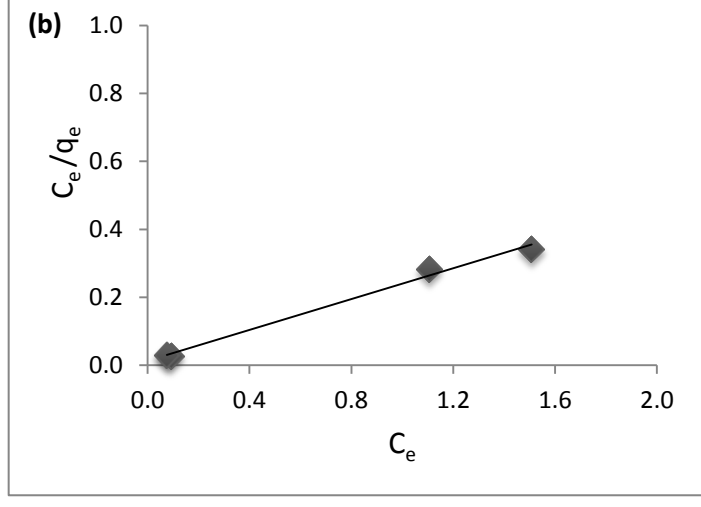
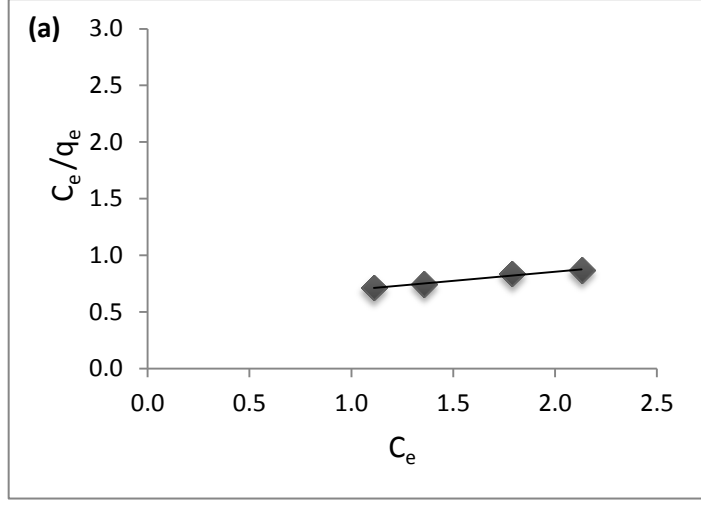
#### 8.4.3 Susam küspesi numunesine ait adsorpsiyon izoterm çalışmaları

Bu bölümde; susam küspesi numuneleri ile yapılan adsorpsiyon deneyleri sonucunda elde edilen verileri ile oluşturulan izoterm modellerinden elde edilen veriler karşılaştırılmış ve deneysel verilerin izoterm modellerine uygunlukları incelenmiştir. Alüminyumun susam küspesi ile adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen veriler Langmuir, Freundlich ve BET izoterm modellerine uygulanarak ilgili sabitler hesaplanmıştır.  $R^2$  katsayıları ve standart sapma ( $\sigma$ ) değerleri karşılaştırıldığında Langmuir modelinin alüminyum ile susam küspesi adsorpsiyonu prosesi için en uygun izoterm modeli olduğu görülmüştür (Şekil 8.35).

Çizelge 8.44'de verilen değerlerden, Langmuir izoterm modelinin regresyon katsayısı ( $R^2$ ) değerlerinin 1'e oldukça yakın olduğu görülmektedir. Ayrıca Langmuir izoterm modelinin standart sapma ( $\sigma$ ) değerlerinin küçük olması sebebiyle de Langmuir izoterm modelinin alüminyumun susam küspesi ile adsorpsiyonu prosesi için en uygun model olduğu görülmüştür. Bunun yanı sıra Çizelge 8.44'de verilen  $Q_{max}$  değerleri karşılaştırıldığında maksimum alüminyum adsorpsiyonu kapasitesi ( $Q_{max}$ ) pH 4 ve 25 °C deney koşullarında 12.315 mg/g olarak hesaplanmıştır. Bununla birlikte pH 4'te gerçekleştirilen deneylerde adsorpsiyon kapasitesinin pH 2 ve pH 6'dekilere kıyasla daha fazla olduğu görülmüştür.

Çizelge 8.45'de verilen değerlerden, Freundlich izoterm modelinin susam küspesinin alüminyum üzerine adsorpsiyonunu açıklamakta Langmuir izoterm modeline yakın sonuçlar vermiş olsada, karşılaştırıldığında yetersiz kaldığı kanısına varılmıştır. Freundlich izoterm modelinin alüminyumun adsorpsiyonu işlemini açıklamakta Langmuir izoterm modeline göre yetersiz kalmasının bir diğer nedeninde standart sapma değerlerinin daha yüksek olmasıdır.

Çizelge 8.46'da deneysel verilerin BET izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler verilmiştir. Çizelge 8.46 incelendiğinde korelasyon ( $R^2$ ) katsayısının 1'den oldukça uzak olduğu görülmektedir. Ayrıca standart sapma değerlerinin çok yüksek olması sebebiyle de BET izoterm modelinin adsorpsiyon işlemine uygun olmadığı sonucuna varılmıştır.



Şekil 8.35 Susam küspesi numunesine ait 5 mg Al<sup>+3</sup>/L başlangıç konsantrasyonu, 25°C ve farklı pH değerlerinde alüminyum adsorpsiyonu-Langmuir izotermi (■ Deneysel; — Langmuir) (a) pH 2.0, (b) pH 4.0 ve (c) pH 6.0

Çizelge 8.44 Susam küspesi numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Langmuir izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler

pH	T (°C)	$Q_{max}$ (mg/g)	b (L/mg)	$R^2$	$\sigma$
2	25	7.0721	0.2973	0.9891	0.0131
4	25	12.315	15.2500	0.9969	0.0141
6	25	9.6805	4.1518	0.9818	0.0052

Çizelge 8.45 Susam küspesi numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Freundlich izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler

pH	T (°C)	$K_F$ ( $mg^{1-1/n}L^{1/n}g^{-1}$ )	n	$R^2$	$\sigma$
2	25	1.3474	1.0585	0.9957	0.0581
4	25	1.3185	0.6226	0.9683	0.1494
6	25	10.7155	1.2321	0.9632	0.1556

Çizelge 8.46 Susam küspesi numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin BET izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler

pH	T (°C)	$Q_{max}$ (mg/g)	$K_B$	$R^2$	$\sigma$
2	25	0.027	0.786	0.7488	1.9220
4	25	0.036	0.727	0.5796	1.1186
6	25	0.110	0.664	0.9324	0.0181

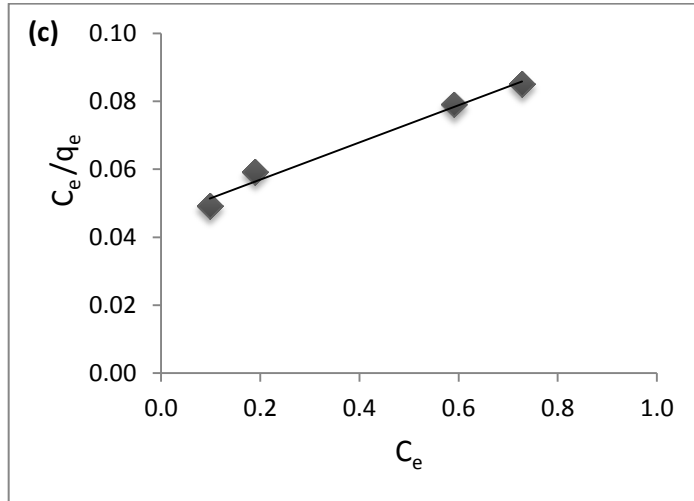
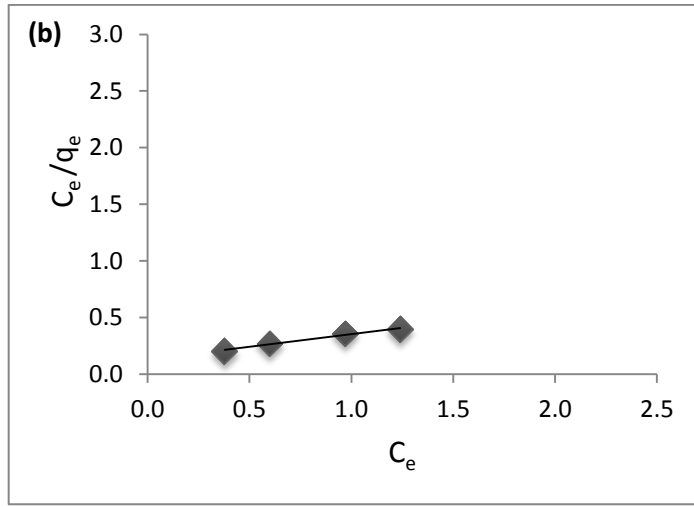
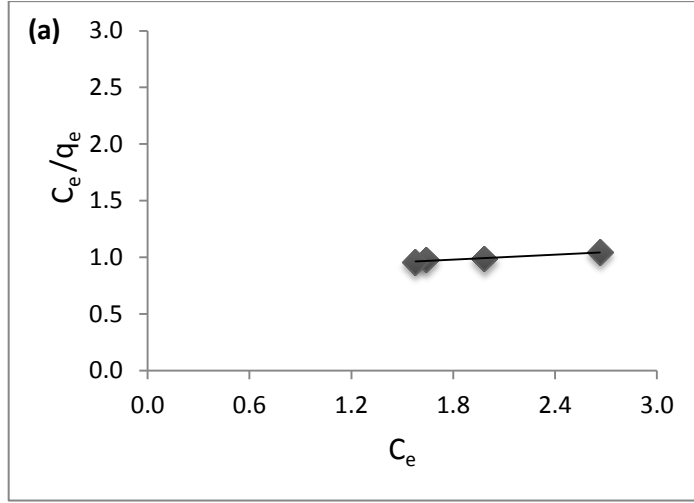
#### 8.4.4 Aspir küspesi numunesine ait adsorpsiyon izoterm çalışmaları

Bu bölümde; aspir küspesi numuneleri ile yapılan adsorpsiyon deneyleri sonucunda elde edilen verileri ile oluşturulan izoterm modellerinden elde edilen veriler karşılaştırılmış ve deneysel verilerin izoterm modellerine uygunlukları incelenmiştir. Alüminyumun aspir küspesi ile adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen veriler Langmuir, Freundlich ve BET izoterm modellerine uygulanarak ilgili sabitler hesaplanmıştır.  $R^2$  katsayıları ve standart sapma ( $\sigma$ ) değerleri karşılaştırıldığında Langmuir modelinin alüminyum ile aspir küspesi adsorpsiyonu prosesi için en uygun izoterm modeli olduğu görülmüştür (Şekil 8.36).

Çizelge 8.47’de verilen değerlerden, Langmuir izoterm modelinin regresyon katsayısı ( $R^2$ ) değerlerinin 1’e oldukça yakın olduğu görülmektedir. Ayrıca Langmuir izoterm modelinin standart sapma ( $\sigma$ ) değerlerinin küçük olması sebebiyle de Langmuir izoterm modelinin alüminyumun aspir küspesi ile adsorpsiyonu prosesi için en uygun model olduğu görülmüştür. Bunun yanı sıra Çizelge 8.47’de verilen  $Q_{max}$  değerleri karşılaştırıldığında maksimum alüminyum adsorpsiyonu kapasitesi ( $Q_{max}$ ) pH 6 ve 25 °C şartlarında 9.0367 mg/g olarak bulunmuştur. Bununla birlikte pH 6’da gerçekleştirilen deneylerde adsorpsiyon kapasitesinin pH 2 ve pH 4’dekilere kıyasla daha fazla olduğu görülmüştür.

Çizelge 8.48’de verilen değerlerden, Freundlich izoterm modelinin aspir küspesinin alüminyum üzerine adsorpsiyonunu açıklamakta Langmuir izoterm modeline yakın sonuçlar vermiş olsada, karşılaştırıldığında yetersiz kaldığı kanısına varılmıştır. Freundlich izoterm modelinin alüminyumun adsorpsiyonu işlemini açıklamakta Langmuir izoterm modeline göre yetersiz kalmasının bir diğer nedeninde standart sapma değerlerinin daha yüksek olmasıdır.

Çizelge 8.49’da deneysel verilerin BET izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler verilmiştir. Çizelge 8.49 incelendiğinde korelasyon ( $R^2$ ) katsayısının 1’den oldukça uzak olduğu görülmektedir. Ayrıca standart sapma değerlerinin çok yüksek olması sebebiyle de BET izoterm modelinin adsorpsiyon işlemine uygun olmadığı sonucuna varılmıştır.



Şekil 8.36 Aspir küspesi numunesine ait 5 mg Al<sup>+3</sup>/L başlangıç konsantrasyonu, 25°C ve farklı pH değerlerinde alüminyum adsorpsiyonu-Langmuir izotermi (■ Deneysel; — Langmuir) (a) pH 2.0, (b) pH 4.0 ve (c) pH 6.0

Çizelge 8.47 Aspir küspesi numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Langmuir izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler

pH	T (°C)	$Q_{\max}$ (mg/g)	b (L/mg)	$R^2$	$\sigma$
2	25	5.0940	0.0859	0.9819	0.0085
4	25	6.0423	1.7457	0.9893	0.0155
6	25	9.0367	1.1891	0.9918	0.0026

Çizelge 8.48 Aspir küspesi numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Freundlich izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler

pH	T (°C)	$K_F$ ( $\text{mg}^{1-1/n} \text{L}^{1/n} \text{g}^{-1}$ )	n	$R^2$	$\sigma$
2	25	0.7617	0.1923	0.9390	0.1670
4	25	2.9730	0.4490	0.9693	0.1159
6	25	10.8764	0.7085	0.9773	0.1407

Çizelge 8.49 Aspir küspesi numunesi ile gerçekleştirilen alüminyumun adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin BET izoterm modeline uygulanmasıyla elde edilen değerler

pH	T (°C)	$Q_{\max}$ (mg/g)	$K_B$	$R^2$	$\sigma$
2	25	0.0089	0.7936	0.9425	4.8137
4	25	0.0187	0.7441	0.1671	5.0870
6	25	0.1228	0.8151	0.9838	4.7175

#### **8.4.5 Muz kabuđu, limon kabuđu, susam kspesti ve aspir kspesti numunelerine ait adsorpsiyon kapasitelerinin karřılařtırılması**

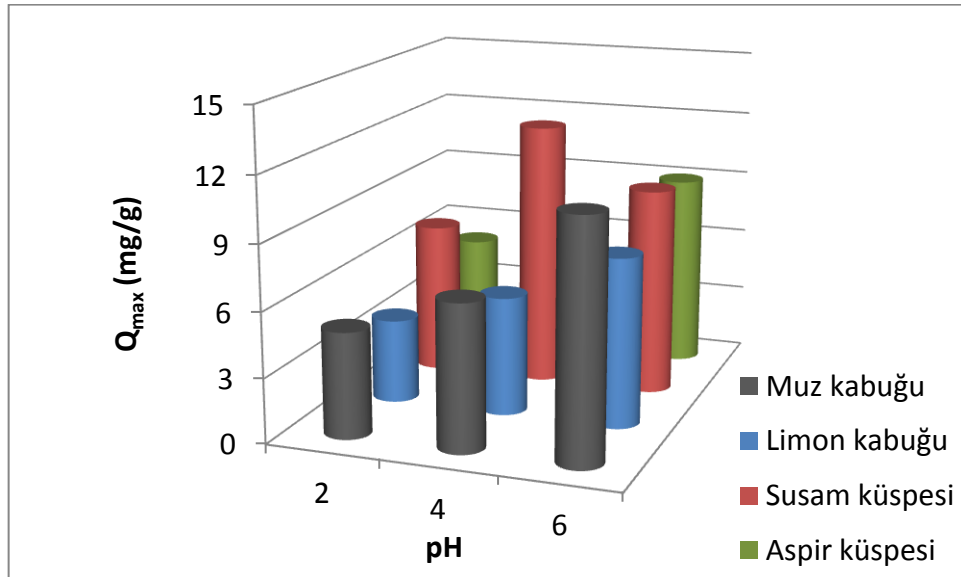
Adsorpsiyon izoterm verileri  $R^2$  ve standart sapma verileri bakımından incelendiđinde alminyum adsorpsiyonunun en iyi Langmuir izoterm modeline uyduđu grlmektedir. Bu durum adsorpsiyon iřleminin tek tabaka halinde meydana gelmesi olarak aıklanabilmektedir [56].

Tarımsal atıklar ile gerekleřtirilen alminyum adsorpsiyonu deneyleri sonucunda kullanılan biosorbentlerin en yksek adsorpsiyon kapasiteleri susam kspesti iin pH 4'de, muz kabuđu, aspir kspesti ve limon kabuđu iin pH 6'da elde edildiđi gzlemlenmiřtir. 25°C ve farklı pH deđerlerinde (pH 2, 4 ve 6) gerekleřtirilen adsorpsiyon iřlemleri sonucunda elde edilen maksimum adsorpsiyon kapasiteleri her bir biosorbent iin grafiksel olarak verilmiř ve karřılařtırılmıřtır (řekil 8.37). Deneysel tasarımı yntemiyle gerekleřtirilen adsorpsiyon deneyleri sonucunda elde edilen en yksek % adsorpsiyon deđerleri ve en yksek adsorpsiyon kapasiteleri ( $Q_{max}$ ) deđerleri izelge 8.50'de karřılařtırılmıřtır.

Sulu zeltiilerden muz kabuđu, limon kabuđu, susam kspesti ve aspir kspesti ile alminyum giderimi alıřmasından elde edilen veriler ile literatrde varolan diđer alıřmalardaki veriler ile karřılařtırılmıřtır (izelge 8.51). Muz ve limon kabuđu, susam ve aspir kspesti ile alminyum adsorpsiyonu alıřması sonucunda tespit edilen her bir biosorbentin maksimum adsorpsiyon kapasitelerinin izelge 8.51'de sunulmuř olan mevcut alıřmalardaki adsorpsiyon kapasitelerinden daha yksek olduđu gzlemlenmiřtir. Muz kabuđu, limon kabuđu, susam kspesti ve aspir kspesti biosorbentlerinin sulu zeltiilerden alminyum adsorpsiyonu iin kullanımının elveriřli olduđu tespit edilmiřtir.

Çizelge 8.50 Biosorbentler ile elde edilen en yüksek adsorpsiyon yüzdeleri ve adsorpsiyon kapasiteleri değerlerinin karşılaştırılması

Biosorbent	Biosorbent Miktarı (g)	T (°C)	pH	Temas Süresi (dak)	% Adsorpsiyon	$Q_{max}$ (mg/g)
Muz kabuğu	0.25	25	6	30	98.02	11.041
Limon kabuğu	0.25	25	6	30	93.76	7.8678
Susam küspesi	0.25	25	4	30	98.64	12.315
Aspir küspesi	0.25	25	6	30	97.77	9.0367



Şekil 8.37 Muz kabuğu, limon kabuğu, susam küspesi ve aspir küspesi numunelerine ait 5 mg  $Al^{+3}$ /L başlangıç konsantrasyonu, 25°C ve farklı pH değerlerinde elde edilen maksimum adsorpsiyon kapasitelerinin karşılaştırılması

Çizelge 8.51 Literatürdeki veriler ile bu çalışmadan elde edilen verilerin karşılaştırılması

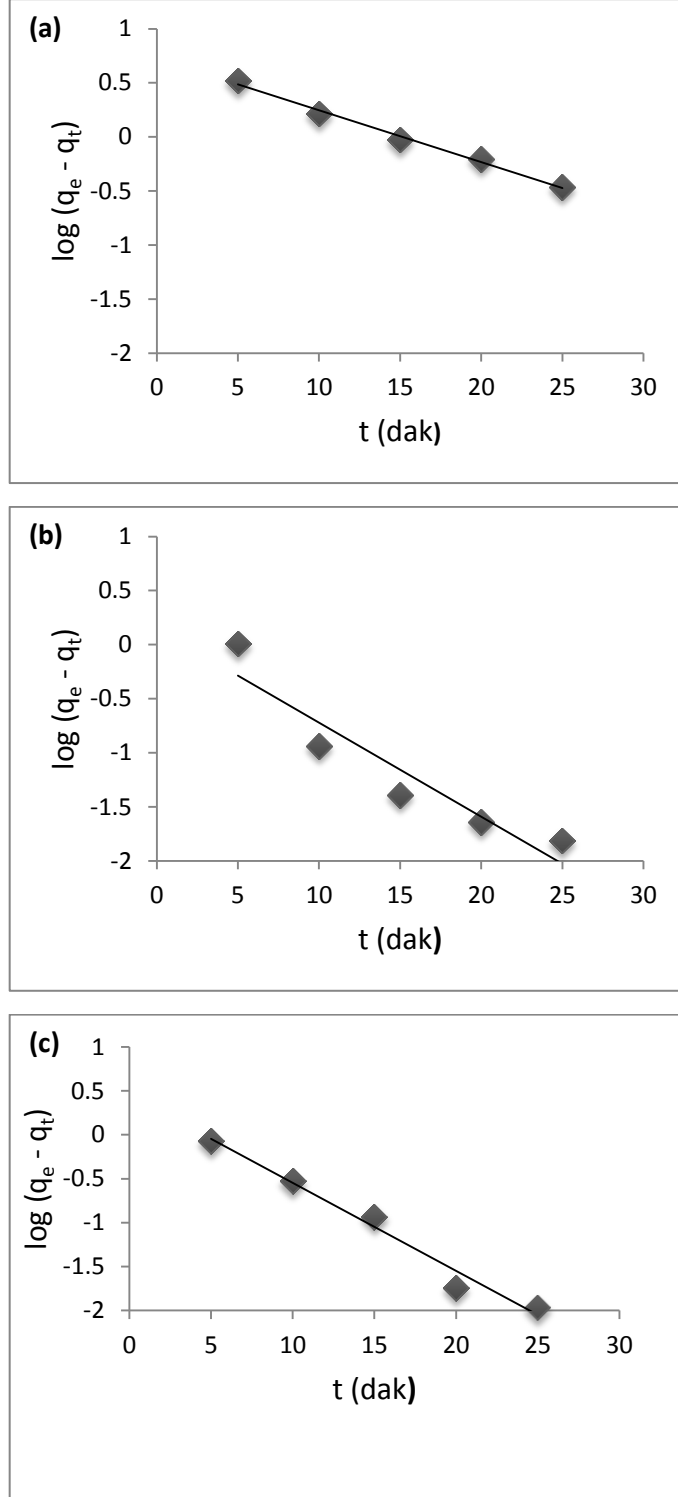
Adsorbent	Al <sup>3+</sup> Kons. (mg/L)	Adsorbent Miktarı	pH	Temas Süresi	Karıştırma Hızı (rpm)	Q <sub>max</sub> (mg/g)	Ref.
Susam küspesi	5	0.25 g	4	30 dak	175	12.315	Bu çalışma (2014)
Muz kabuğu			6			11.041	
Aspir küspesi			6			9.0367	
Limon kabuğu			6			7.8678	
Poliakrilonitril boncukları (PAN)	1	-	5.6	24 saat	-	0.25	[3] (2014)
PAN (toz halde)						0.71	
PAN (ön işlem 250°C/48 saat)						0.15	
Hurma çekirdeği esaslı karbon	5	0.1 g	4	240 dak	-	0.305	[91] (2008)
Ticari karbon			6.5			0.21	
<i>Providencia rettgeri</i> bakterisi	200	-	-	24 saat	200	0.463	[87] (2013)
Deniz yosunu	5	0.25 g	4	30 dak	175	0.059	[16] (2010)
Pirinç kabuğu	100	0.25 g	6	100 dak	-	0.473	[92] (2007)
<i>Chryseomonas luteola</i> TEM05	500	0.01 g	5	20 dak	150	55.2	[94] (2004)
Afrika kayın ağacı talaşı (ham)	25	0.5 g	4	240 dak	100	1.913	[88] (2013)
Afrika kayın ağacı talaşı (işlem görmüş)							

## 8.5 Adsorpsiyon Kinetikleri

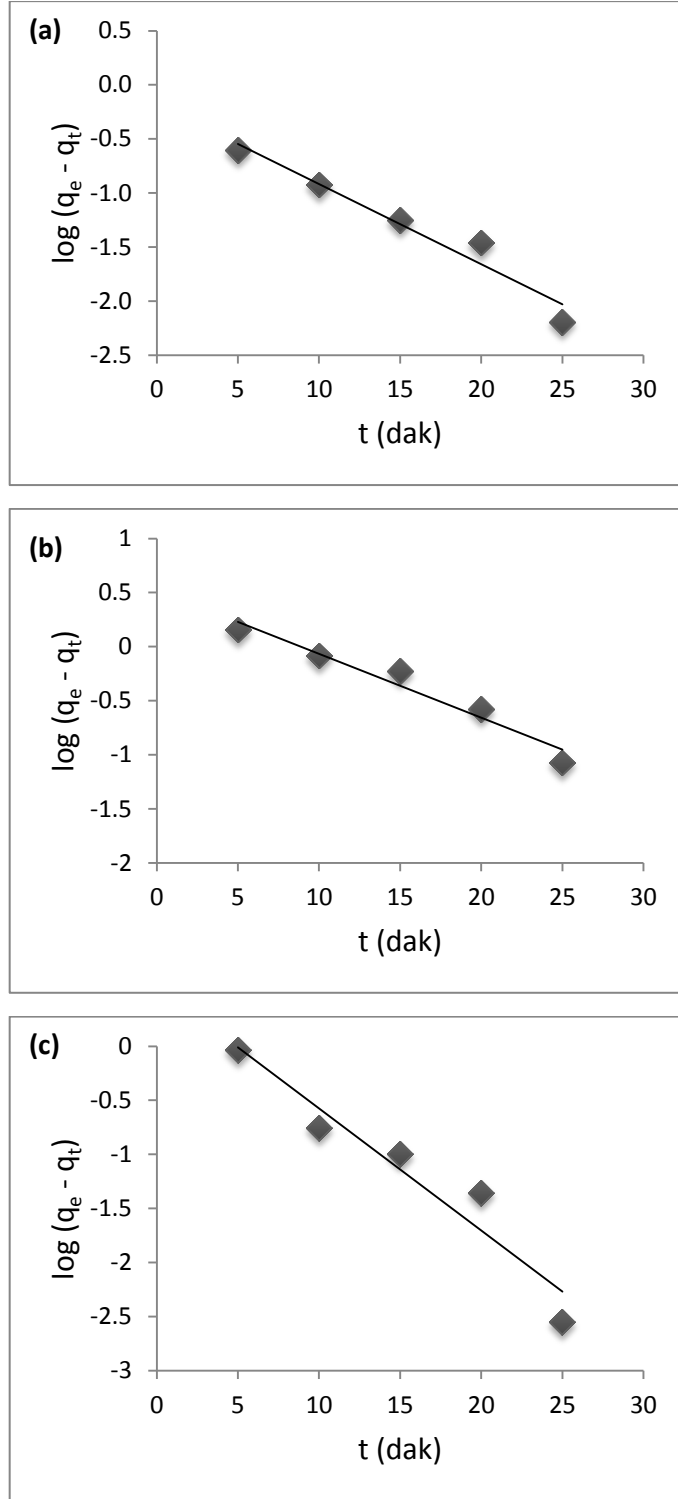
### 8.5.1 Muz kabuğu numunesine ait adsorpsiyon kinetiği çalışmaları

Muz kabuğu ile gerçekleştirilen kinetik çalışmalardan elde edilen verilerin modelleme aşaması için Yalancı 1. Derece Kinetik, Yalancı 2. Derece Kinetik ve Parçacık İçi Difüzyon Kinetik modelleri kullanılmıştır. Muz kabuğu örnekleri ile farklı pH ve biosorbent miktarları koşullarında gerçekleştirilen deneylerin kinetik model verileri incelendiğinde (Çizelge 8.52),  $R^2$  katsayısının 1'e en yakın olduğu modelin Yalancı 1. Derece Kinetik modeli olduğu görülmüştür. Yalancı 1. Derece kinetik ile elde edilen grafikler Şekil 8.38-8.40'da verilmiştir.

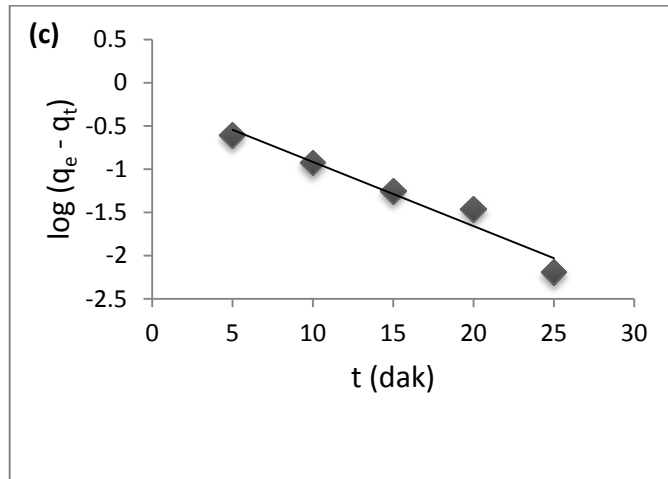
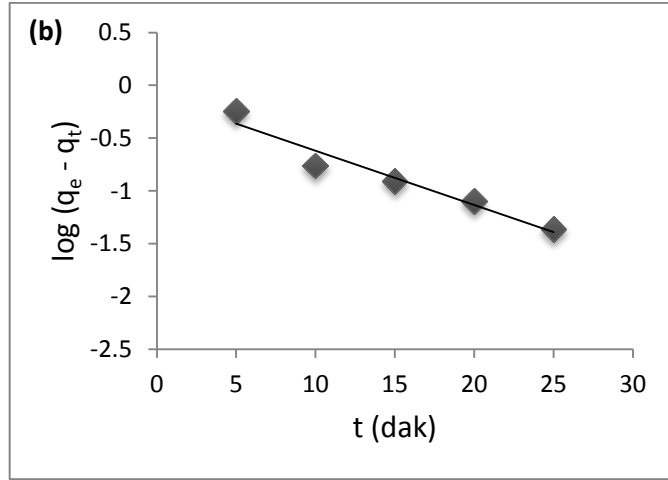
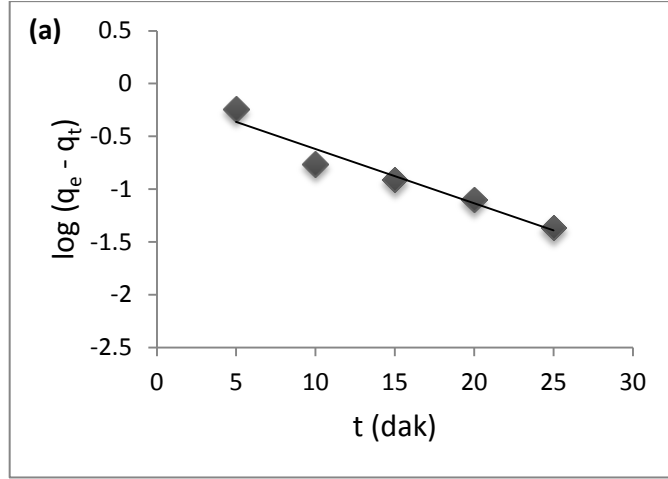
Uygulanan tüm modellere ilişkin veriler, Çizelge 8.52'de sunulmuştur. Model verileri standart sapma değerleri açısından incelendiğinde, Yalancı 2. Derece Kinetik modeli en düşük standart sapma ( $\sigma$ ) değerlerine sahip olmasına rağmen, korelasyon ( $R^2$ ) değerlerinin oldukça düşük olması sebebiyle bu adsorpsiyon prosesi için uygun kinetik modeli olmadığı görülmüştür. Parçacık İçi Kinetik Difüzyon modeli, regresyon katsayısı bakımından 1'e yakın değerlere sahip olsada,  $R^2$  katsayıları ve standart sapma değerleri bakımından Yalancı 1. Derece Kinetik modeli ile karşılaştırıldığında adsorpsiyon prosesi için uygun model olmadığı sonucuna ulaşılmıştır.



Şekil 8.38 Muz kabuğu numuesi için pH 2.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik)  
 (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L



Şekil 8.39 Muz kabuğu numunesi için pH 4.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik)  
 (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L



Şekil 8.40 Muz kabuğu numunesi için pH 6.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik)  
 (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L

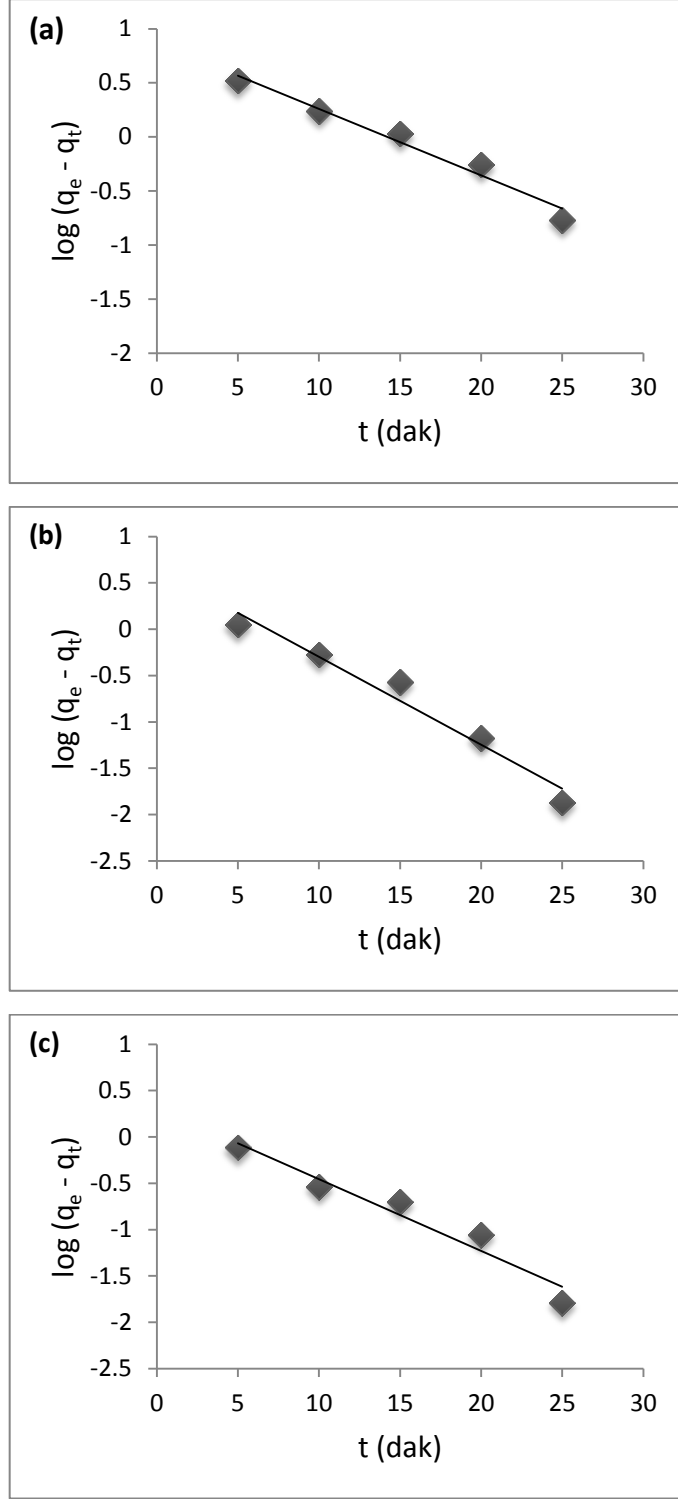
Çizelge 8.52 Muz kabuğu numunesi ile gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinin kinetik parametreler

pH	Biosorbent Miktarı (g)	Yalancı 1. Derece Kinetik			Yalancı 2. Derece Kinetik			Parçacık İçi Difüzyon Kinetiği			
		$k_1$ (dak <sup>-1</sup> )	R <sup>2</sup>	$\sigma$	$k_2$ (g/mg.dak)	R <sup>2</sup>	$\sigma$	$k_i$ (mg g <sup>-1</sup> dak <sup>-2</sup> )	$C_i$ (mg g <sup>-1</sup> )	R <sup>2</sup>	$\sigma$
2	0.05	0.1103	0.9964	0.0367	0.000976	0.7462	0.3099	0.9571	0.9647	0.9627	0.3643
	0.15	0.2001	0.9428	0.2804	0.000320	0.6868	0.1920	0.6462	0.2645	0.7933	0.2729
	0.25	0.2305	0.9883	0.1405	0.000374	0.7227	0.1736	0.4510	0.2743	0.9013	0.1597
4	0.05	0.2093	0.9678	0.2156	0.000053	0.8079	0.0293	2.4128	0.6559	0.9192	0.3776
	0.15	0.1361	0.9753	0.1222	0.000282	0.8879	0.0789	0.4009	0.4420	0.9871	0.0963
	0.25	0.0259	0.9624	0.2904	0.000320	0.7207	0.1785	0.5841	0.2518	0.8429	0.2160
6	0.05	0.9025	0.9678	0.2156	0.000007	0.8126	0.0087	5.6029	0.4945	0.8830	0.3525
	0.15	0.1361	0.9753	0.1222	0.000012	0.8210	0.0153	2.4604	0.1549	0.8987	0.1016
	0.25	0.2590	0.9624	0.2904	0.001168	0.8968	0.0136	1.5846	0.0739	0.9537	0.0313

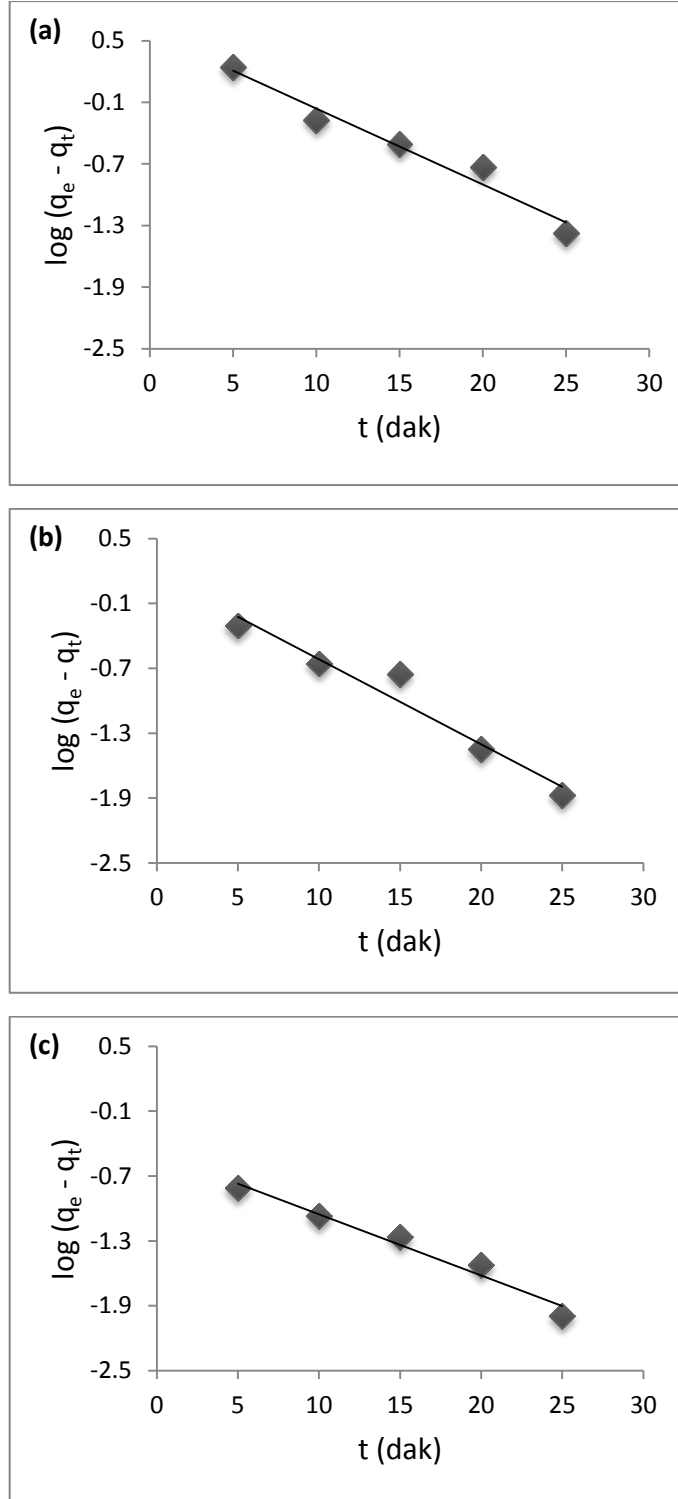
### 8.5.2 Limon kabuđu numunesine ait adsorpsiyon kinetiđi alıřmaları

Limon kabuđu ile gerekleřtirilen kinetik alıřmalardan elde edilen verilerin modelleme ařaması iin Yalancı 1. Derece Kinetik, Yalancı 2. Derece Kinetik ve Paracık İi Difüzyon Kinetik modelleri kullanılmıřtır. Limon kabuđu örnekleri ile farklı pH ve biosorbent miktarları kořullarında gerekleřtirilen deneylerin kinetik model verileri incelendiđinde (izelge 8.53),  $R^2$  katsayısının 1'e en yakın olduđu modelin Yalancı 1. Derece Kinetik modeli olduđu görülmüřtür. Yalancı 1. Derece kinetik ile elde edilen grafikler Őekil 8.41-8.43'de verilmiřtir.

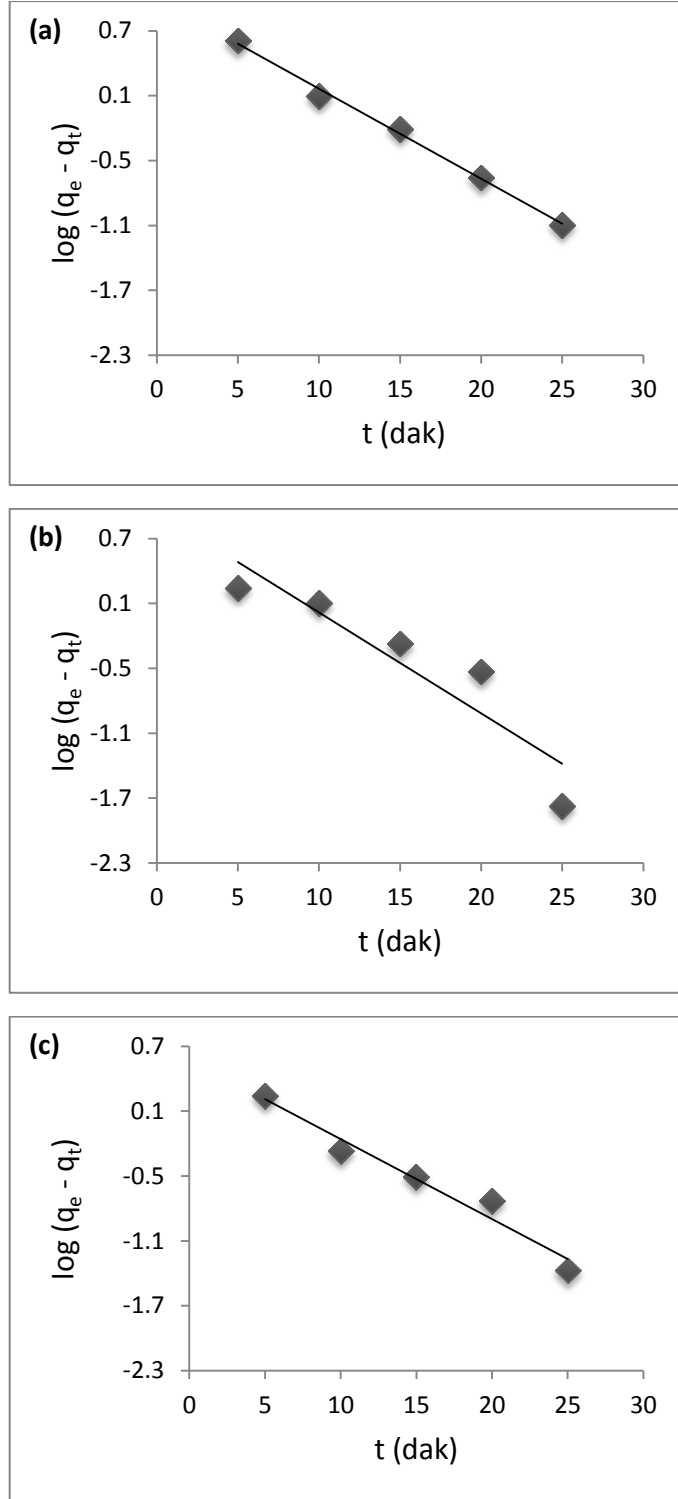
Uygulanan tüm modellere iliřkin veriler, izelge 8.53'de sunulmuřtur. Model verileri standart sapma deđerleri aısından incelendiđinde, Yalancı 2. Derece Kinetik modeli en düřük standart sapma ( $\sigma$ ) deđerlerine sahip olmasına rađmen, korelasyon ( $R^2$ ) deđerlerinin oldukça düřük olması sebebiyle bu adsorpsiyon prosesi iin uygun kinetik modeli olmadıđı görülmüřtür. Paracık İi Kinetik Difüzyon modeli, regresyon katsayısı bakımından 1'e yakın deđerlere sahip olsada,  $R^2$  katsayıları ve standart sapma deđerleri bakımından Yalancı 1. Derece Kinetik modeli ile karřılařtırıldıđında adsorpsiyon prosesi iin uygun model olmadıđı sonucuna ulařılmıřtır.



Şekil 8.41 Limon kabuğu numunesi için pH 2.0 ve 25°C’de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik) (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L



Şekil 8.42 Limon kabuğu numunesi için pH 4.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik) (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L



Şekil 8.43 Limon kabuğu numunesi için pH 6.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik) (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L

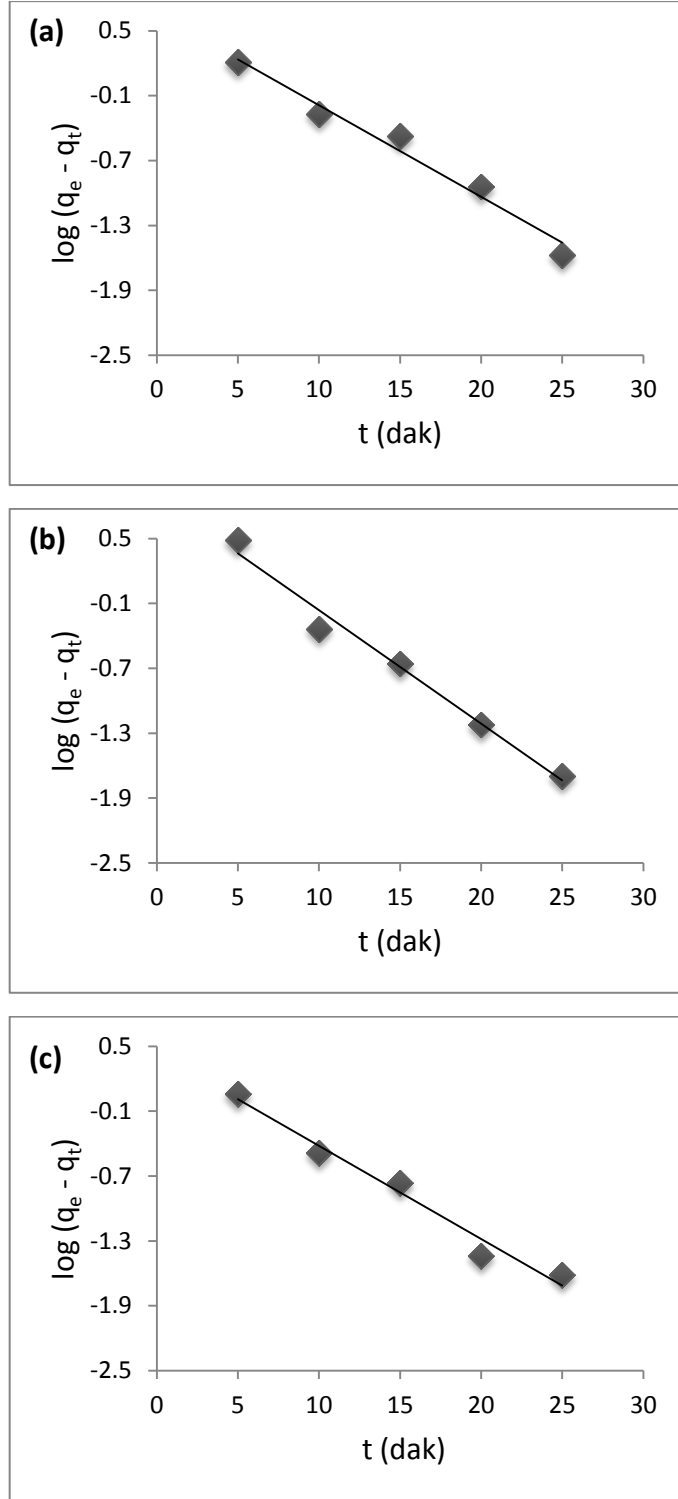
Çizelge 8.53 Limon kabuğu numunesi ile gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinin kinetik parametreleri

pH	Biosorbent Miktarı (g)	Yalancı 1. derece Kinetik			Yalancı 2. derece Kinetik			Parçacık İçi Difüzyon Kinetiği			
		$k_1$ (dak <sup>-1</sup> )	R <sup>2</sup>	$\sigma$	$k_2$ (g/mg.dak)	R <sup>2</sup>	$\sigma$	$k_i$ (mg g <sup>-1</sup> dak <sup>-2</sup> )	C <sub>i</sub> (mg g <sup>-1</sup> )	R <sup>2</sup>	$\sigma$
2	0.05	0.1416	0.9849	0.0986	0.003166	0.7095	0.8918	1.5552	1.0025	0.9744	0.3108
	0.15	0.2183	0.9815	0.1684	0.000334	0.8269	0.1234	0.4348	0.4308	0.9493	0.1518
	0.25	0.1782	0.9712	0.1732	0.000425	0.8030	0.1791	0.3696	0.3696	0.9347	0.1134
4	0.05	0.1916	0.9976	0.0519	0.000316	0.7259	0.1203	0.1341	0.1341	0.8933	0.7786
	0.15	2.1864	0.9189	0.3654	0.000367	0.8969	0.0856	0.0764	0.0764	0.9783	0.1636
	0.25	0.1524	0.9273	0.2438	0.000008	0.9583	0.0072	1.5507	1.5507	0.9883	0.0121
6	0.05	0.1699	0.9806	0.1345	0.000005	0.8232	0.0071	6.2176	6.2176	0.8999	0.3182
	0.15	0.1807	0.9747	0.1642	0.000012	0.8997	0.0115	2.3109	2.3109	0.9552	0.0619
	0.25	0.1298	0.9844	0.0920	0.000004	0.8427	0.0066	1.6325	1.6325	0.9815	0.0121

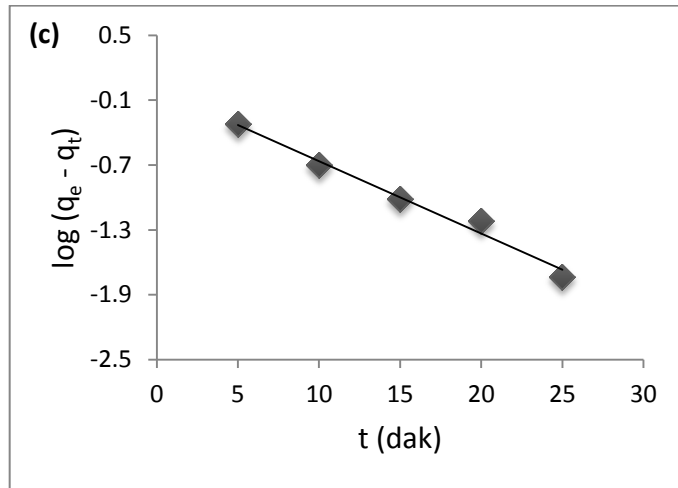
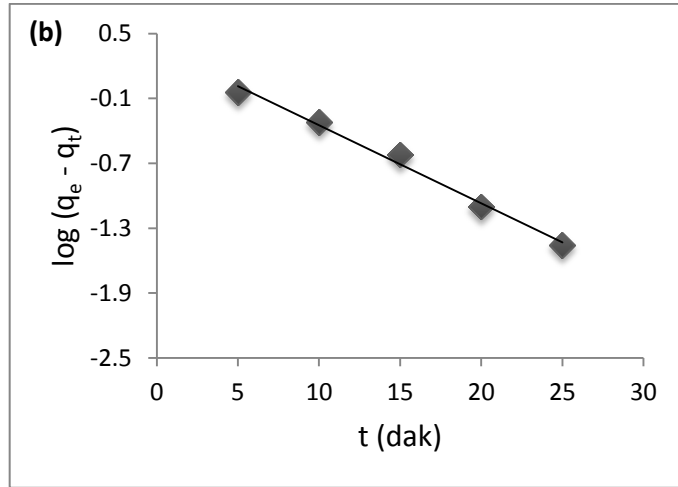
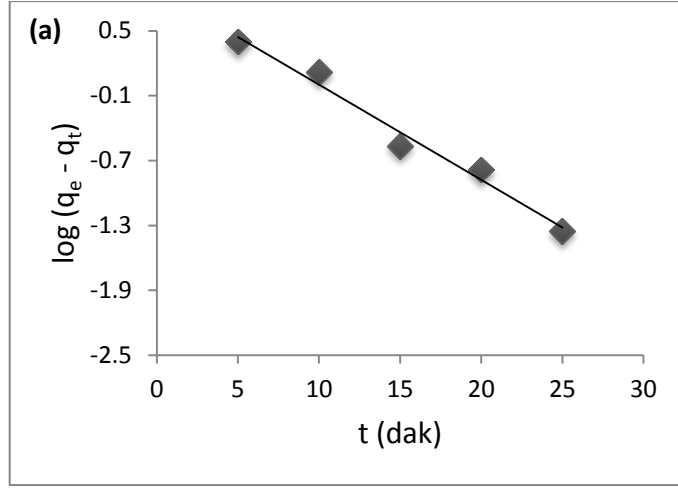
### 8.5.3 Susam küspesi numunesine ait adsorpsiyon kinetiği çalışmaları

Susam küspesi ile gerçekleştirilen kinetik çalışmalardan elde edilen verilerin modelleme aşaması için Yalancı 1. Derece Kinetik, Yalancı 2. Derece Kinetik ve Parçacık İçi Difüzyon Kinetik modelleri kullanılmıştır. Susam küspesi örnekleri ile farklı pH ve biosorbent miktarları koşullarında gerçekleştirilen deneylerin kinetik model verileri incelendiğinde (Çizelge 8.54),  $R^2$  katsayısının 1'e en yakın olduğu modelin Yalancı 1. Derece Kinetik modeli olduğu görülmüştür. Yalancı 1. Derece kinetik ile elde edilen grafikler Şekil 8.44-8.46'da verilmiştir.

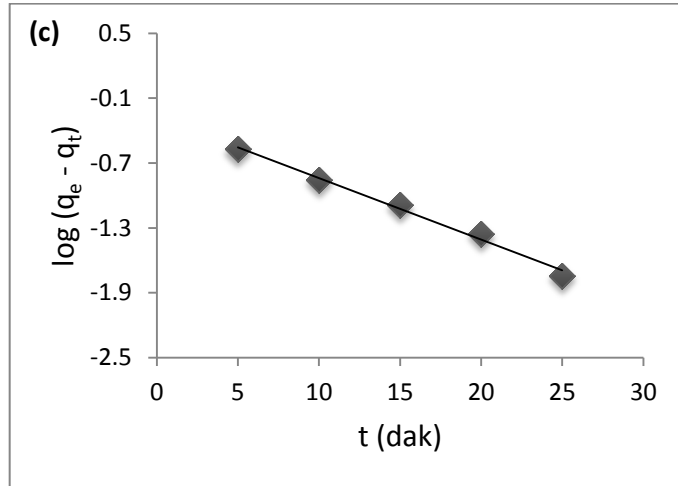
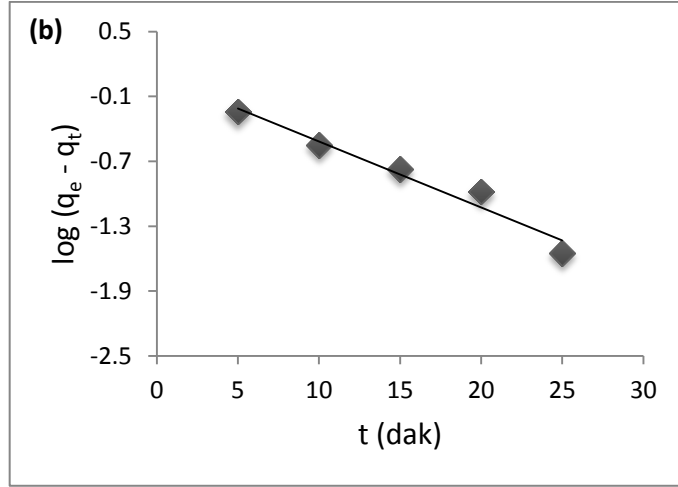
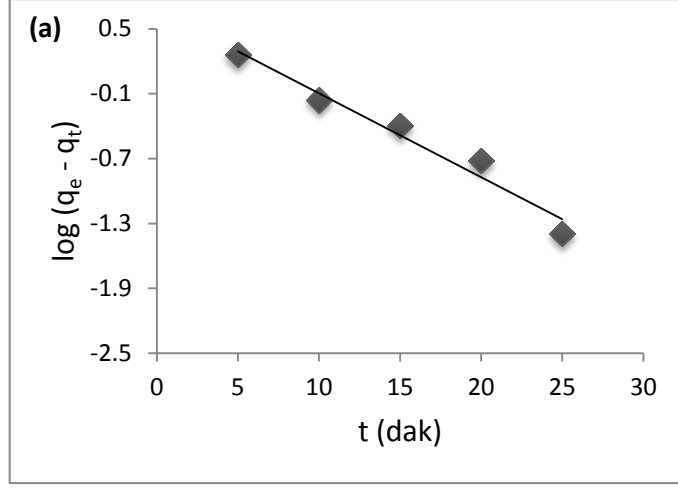
Uygulanan tüm modellere ilişkin veriler, Çizelge 8.54'de sunulmuştur. Model verileri standart sapma değerleri açısından incelendiğinde, Yalancı 2. Derece Kinetik modeli en düşük standart sapma ( $\sigma$ ) değerlerine sahip olmasına rağmen, korelasyon ( $R^2$ ) değerlerinin oldukça düşük olması sebebiyle bu adsorpsiyon prosesi için uygun kinetik modeli olmadığı görülmüştür. Parçacık İçi Kinetik Difüzyon modeli, regresyon katsayısı bakımından 1'e yakın değerlere sahip olsada,  $R^2$  katsayıları ve standart sapma değerleri bakımından Yalancı 1. Derece Kinetik modeli ile karşılaştırıldığında adsorpsiyon prosesi için uygun model olmadığı sonucuna ulaşılmıştır.



Şekil 8.44 Susam küspesi numunesi için pH 2.0 ve 25°C’de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik) (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L



Şekil 8.45 Susam küspesi numunesi için pH 4.0 ve 25°C’de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Birinci Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik) (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L



Şekil 8.46 Susam küspesi numunesi için pH 6.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik) (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L

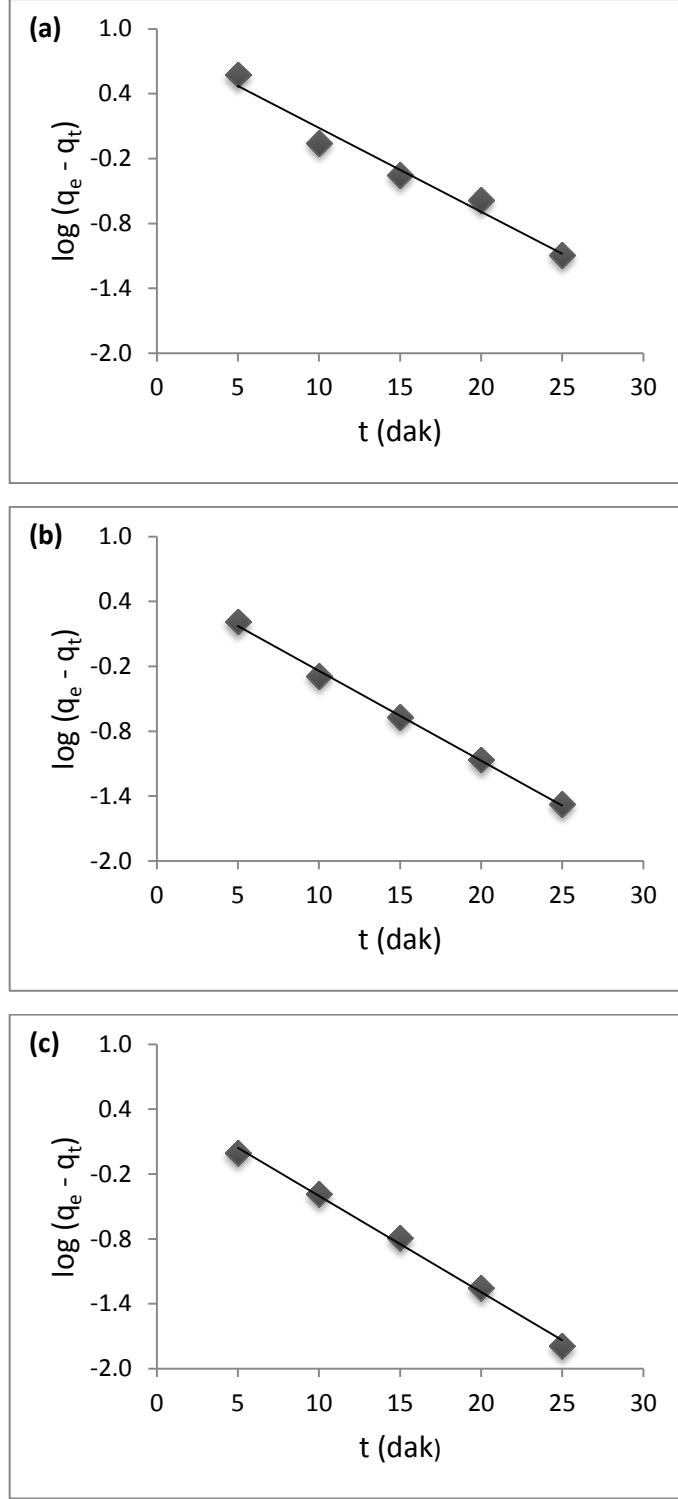
Çizelge 8.54 Susam küspesi numunesi ile gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinin kinetik parametreleri

pH	Biosorbent Miktarı (g)	Yalancı 1. Derece Kinetik			Yalancı 2. Derece Kinetik			Parçacık İçi Difüzyon Kinetiği			
		$k_1$ (dak <sup>-1</sup> )	R <sup>2</sup>	$\sigma$	$k_2$ (g/mg.dak)	R <sup>2</sup>	$\sigma$	$k_i$ (mg g <sup>-1</sup> dak <sup>-2</sup> )	C <sub>i</sub> (mg g <sup>-1</sup> )	R <sup>2</sup>	$\sigma$
2	0.05	0.2415	0.9915	0.1257	0.000653	0.6806	0.2545	0.1098	0.8117	0.8190	0.7642
	0.15	0.1948	0.9870	0.1258	0.001236	0.7262	0.4270	0.1605	0.4620	0.9124	0.2784
	0.25	0.1985	0.9869	0.1285	0.001509	0.7132	0.5554	0.0302	0.3227	0.8839	0.2294
4	0.05	0.2028	0.9893	0.1185	0.000036	0.8451	0.0186	3.1683	0.7685	0.9284	0.4132
	0.15	0.1662	0.9947	0.0679	0.000042	0.8909	0.0225	1.8605	0.2785	0.9626	0.1051
	0.25	0.1538	0.9917	0.0786	0.000046	0.8560	0.0348	1.2746	0.1379	0.9366	0.0693
6	0.05	0.1784	0.9823	0.1348	0.000006	0.8541	0.0058	6.5728	0.5300	0.9289	0.2839
	0.15	0.1402	0.9790	0.1157	0.000016	0.9058	0.0124	2.2649	0.1695	0.9664	0.0605
	0.25	0.1310	0.9956	0.0484	0.000014	0.9208	0.0130	1.5422	0.0805	0.9713	0.0264

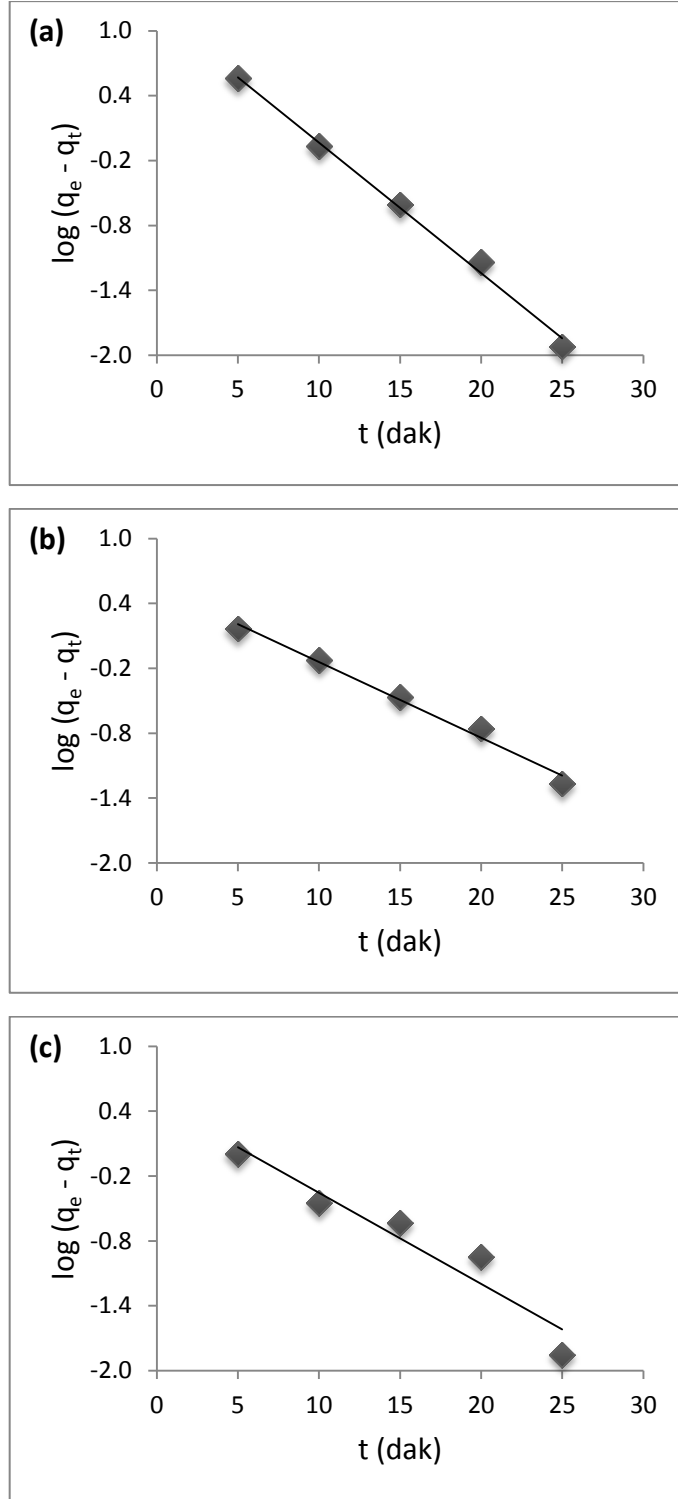
#### **8.5.4 Aspir küspesi numunesine ait adsorpsiyon kinetiği çalışmaları**

Aspir küspesi ile gerçekleştirilen kinetik çalışmalardan elde edilen verilerin modelleme aşaması için Yalancı 1. Derece Kinetik, Yalancı 2. Derece Kinetik ve Parçacık İçi Difüzyon Kinetik modelleri kullanılmıştır. Aspir küspesi örnekleri ile farklı pH ve biosorbent miktarları koşullarında gerçekleştirilen deneylerin kinetik model verileri incelendiğinde (Çizelge 8.55),  $R^2$  katsayısının 1'e en yakın olduğu modelin Yalancı 1. Derece Kinetik modeli olduğu görülmüştür. Yalancı 1. Derece kinetik ile elde edilen grafikler Şekil 8.47-8.49'da verilmiştir.

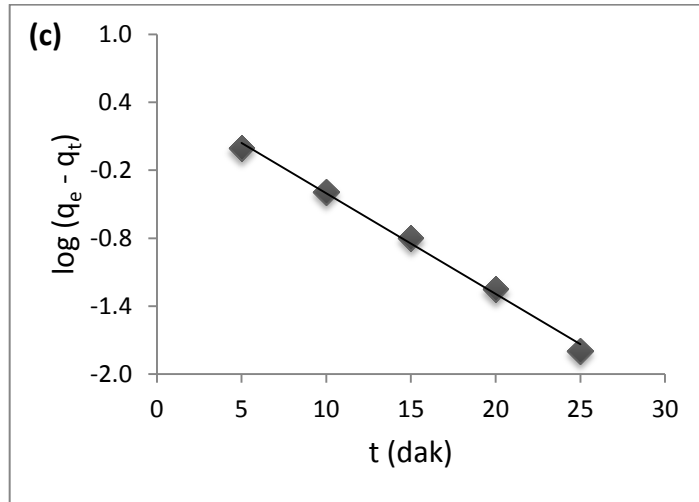
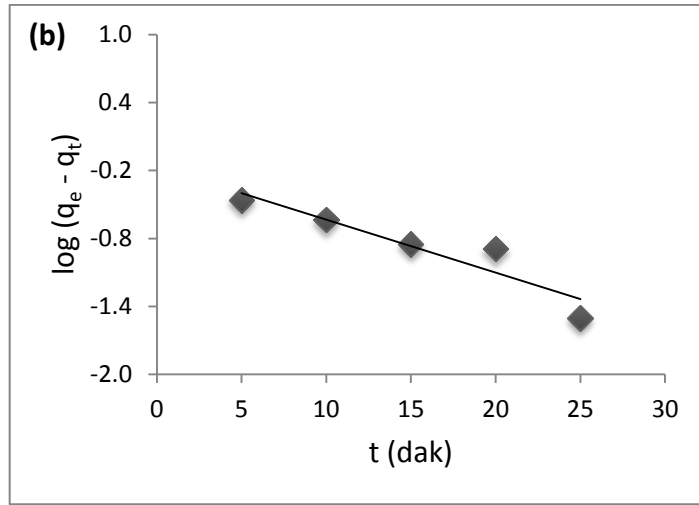
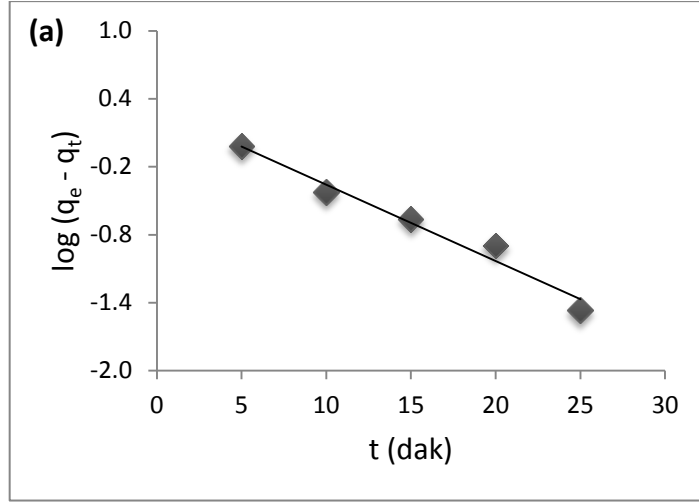
Uygulanan tüm modellere ilişkin veriler, Çizelge 8.55'de sunulmuştur. Model verileri standart sapma değerleri açısından incelendiğinde, Yalancı 2. Derece Kinetik modeli en düşük standart sapma ( $\sigma$ ) değerlerine sahip olmasına rağmen, korelasyon ( $R^2$ ) değerlerinin oldukça düşük olması sebebiyle bu adsorpsiyon prosesi için uygun kinetik modeli olmadığı görülmüştür. Parçacık İçi Kinetik Difüzyon modeli, regresyon katsayısı bakımından 1'e yakın değerlere sahip olsada,  $R^2$  katsayıları ve standart sapma değerleri bakımından Yalancı 1. Derece Kinetik modeli ile karşılaştırıldığında adsorpsiyon prosesi için uygun model olmadığı sonucuna ulaşılmıştır.



Şekil 8.47 Aspir küspesi numunesi için pH 2.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik)  
 (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L



Şekil 8.48 Aspir küspesi numunesi için pH 4.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik)  
 (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L



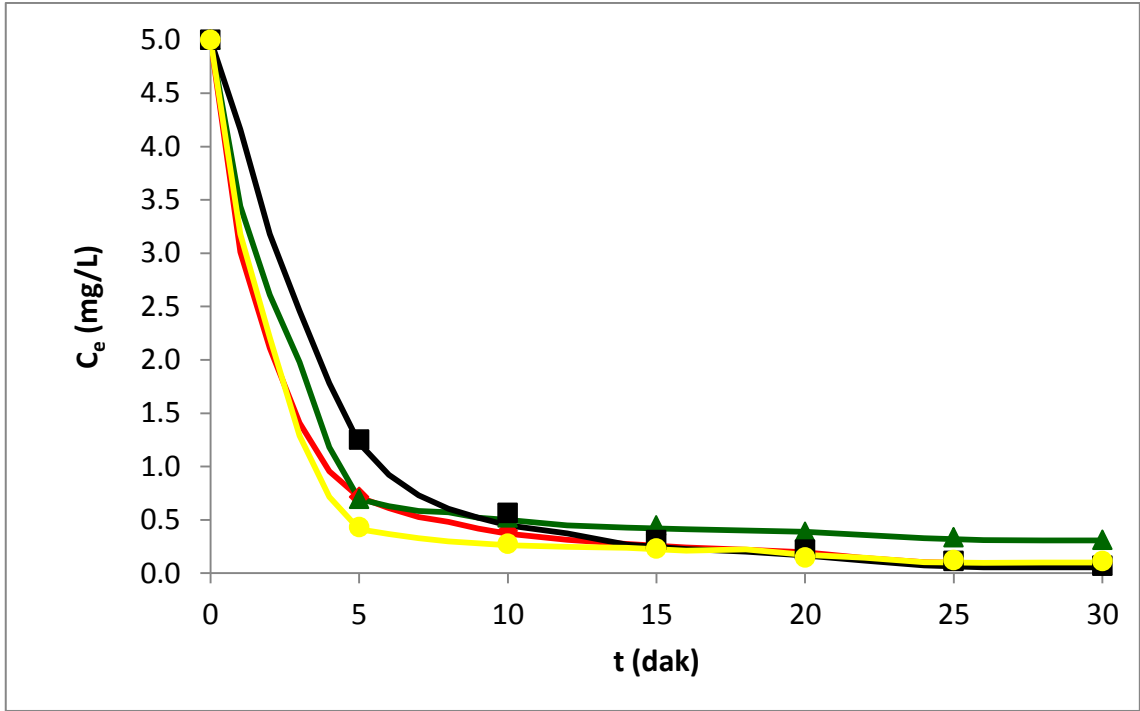
Şekil 8.49 Aspir küspesi numunesi için pH 6.0 ve 25°C'de farklı biosorbent miktarlarında gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinden elde edilen verilerin Yalancı 1. Derece Kinetik modellemesi (■ Deneysel; — Yalancı 1. Derece Kinetik)  
 (a) 0.5 g/L, (b) 1.5 g/L ve (c) 2.5 g/L

Çizelge 8.55 Aspir küspesi numunesi ile gerçekleştirilen alüminyum adsorpsiyonu deneylerinin kinetik parametreleri

pH	Biosorbent Miktarı (g)	Yalancı 1. Derece Kinetik			Yalancı 2. Derece Kinetik			Parçacık İçi Difüzyon Kinetiği			
		$k_1$ (dak <sup>-1</sup> )	R <sup>2</sup>	$\sigma$	$k_2$ (g/mg.dak)	R <sup>2</sup>	$\sigma$	$k_i$ (mg g <sup>-1</sup> dak <sup>-2</sup> )	$C_i$ (mg g <sup>-1</sup> )	R <sup>2</sup>	$\sigma$
2	0.05	0.1782	0.9854	0.1221	0.002930	0.6699	0.9061	0.9486	1.0269	0.8609	0.8157
	0.15	0.1911	0.9987	0.0378	0.002364	0.6980	0.7795	0.3137	0.4642	0.8912	0.3174
	0.25	0.2047	0.9974	0.0581	0.001852	0.7440	0.6169	0.1167	0.2936	0.9240	0.1632
4	0.05	0.2779	0.9975	0.0767	0.000227	0.7107	0.0998	0.7822	1.0076	0.8514	0.8340
	0.15	0.1612	0.9938	0.0711	0.000070	0.8305	0.1071	0.4232	0.4459	0.9570	0.1815
	0.25	0.1939	0.9598	0.2247	0.000381	0.7853	0.1625	0.2904	0.2904	0.9239	0.1616
6	0.05	0.1552	0.9858	0.1048	0.000001	0.8809	0.0025	7.8211	2.7602	0.9349	0.1407
	0.15	0.1075	0.9363	0.1600	0.000005	0.9713	0.0036	2.6369	0.1051	0.9895	0.0205
	0.25	0.1741	0.9738	0.1610	0.000003	0.9256	0.0056	1.7537	0.0391	0.9691	0.0133

### 8.5.5 Adsorpsiyon kinetik verilerinin değerlendirilmesi

Tarımsal atıklar ile 5 mg Al<sup>3+</sup>/L başlangıç konsantrasyonundaki sulu çözeltilerden alüminyumun adsorpsiyon kapasitesinin zamana bağlı olarak değişimini gösteren veriler Şekil 8.50'de verilmiştir. Çizelge 8.56'da; susam küspesi için, pH 4 ve 0.25 g koşullarında, muz kabuğu, limon kabuğu ve aspir küspesi için pH 6, 0.25 g koşullarında zamana karşı elde edilen alüminyum konsantrasyonuna ait deneysel veriler ve % adsorpsiyon verimleri sunulmuştur. Ayrıca, kinetik verilerin her bir biosorbent için Yalancı 1. Derece Kinetik modeline uygun olduğu tespit edilmiştir. Şekil 8.50'den de görüldüğü üzere; muz kabuğu, limon kabuğu, susam küspesi ve aspir küspesi için 30 dakikadan daha önce dengeye ulaştığı görülmektedir.



Şekil 8.50 Zamana karşı elde edilen alüminyum konsantrasyonuna ait deneysel veriler (◆ Muz kabuğu, ▲ Limon kabuğu, ■ Susam küspesi, ● Aspir küspesi, — 1. Derece Yalancı Kinetik model)

Çizelge 8.56 Zamana karşı elde edilen alüminyum konsantrasyonuna ait deneysel veriler

Zaman (dak)	Muz kabuğu		Limon kabuğu		Susam küspesi		Aspir küspesi	
	C <sub>e</sub> (mg/L)	% Ads. verimi	C <sub>e</sub> (mg/L)	% Ads. verimi	C <sub>e</sub> (mg/L)	% Ads. verimi	C <sub>e</sub> (mg/L)	% Ads. verimi
0	5.0	%0	5.0	%0	5.0	%0	5.0	%0
5	0.715	%85.70	0.695	%86.10	1.250	%75.00	0.432	%91.36
10	0.396	%92.08	0.522	%89.56	0.565	%88.70	0.276	%94.48
15	0.239	%95.22	0.448	%91.04	0.310	%93.80	0.230	%95.40
20	0.186	%96.28	0.386	%92.28	0.218	%95.64	0.148	%97.04
25	0.115	%97.70	0.337	%93.26	0.114	%97.72	0.124	%97.52
30	0.099	%98.02	0.312	%93.76	0.068	%98.64	0.115	%97.70

### SONUÇLAR VE ÖNERİLER

Adsorpsiyon yöntemiyle atık sulardan ağır metal giderimi, kullanılan diğer geleneksel yöntemlere göre daha etkili, çevre dostu ve ucuz maliyetli bir yöntemdir. Bu çalışmada; tarımsal atıklardan muz kabuğu, limon kabuğu, susam küspesi ve aspir küspesi kullanılarak sulu çözeltilerden alüminyum ( $Al^{+3}$ ) giderimi incelenmiştir.

#### ***Bu amaçla;***

- Deneysel tasarım yöntemi uygulanarak, farklı pH (2, 4 ve 6), biosorbent miktarı (0.05 g, 0.15 g ve 0.25 g) ve temas süresi (10 dak, 20 dak ve 30 dak) parametrelerinin alüminyum adsorpsiyonu prosesi üzerine etkileri incelenmiştir.
- En uygun deneysel tasarım metodunun belirlenmesi için  $2^k$  faktöriyel tasarım,  $3^k$  faktöriyel tasarım ve Box-Behnken tasarım metotları uygulanmıştır.

#### ***Yapılan çalışmada;***

- Her bir biosorbent için gerçekleştirilen FTIR analizinde adsorpsiyon öncesi ve sonrası elde edilen spektrum pikleri incelendiğinde alüminyumun adsorbe edildiği gözlemlenmiştir.
- Kullanılan biosorbentlerin SEM analizleri incelendiğinde, alüminyum adsorpsiyonu sonrasında numunelerin yüzey morfolojilerinde değişim olduğu gözlenmiştir.

- Uygulanan deneysel tasarım metotlarından elde edilen model denklemler, korelasyon ve standart sapma değerleri incelendiğinde, kullanılan her bir biosorbent ile yapılan adsorpsiyon çalışmaları için Box-Behnken tasarım yönteminin en uygun tasarım yöntemi olduğu tespit edilmiştir.
- Box-Behnken tasarım metodunun, incelenen proses hakkında %95'in üzerinde güvenilirlik seviyesi ile yüksek korelasyon değeri ve düşük standart sapma değeri vermesinin yanı sıra tasarımın oluşturulması için yapılması gerekli olan deney sayısının az olması ile zaman ve maliyet tasarrufu açısından da avantajlı bir yöntem olduğu görülmüştür. Box-Behnken tasarım metodunun uygulanması sonucunda elde edilen model denklemler; muz kabuğu, limon kabuğu, susam küspesi ve aspir küspesi numuneleri için sırası ile aşağıda verilmiştir.

$$Y_{muz\ kabuğu} = 12.70000 * X_1 + 534.17763 * X_2 + 3.38237 * X_3 - 30.87500 * X_1 * X_2 - 811.84211 * X_2^2 - 0.074434 * X_3^2 - 48.45625 \quad (8.2)$$

$$Y_{limon\ kabuğu} = 36.87961 * X_1 + 722.75658 * X_2 + 2.06375 * X_3 - 51.50000 * X_1 * X_2 - 0.31750 * X_1 * X_3 + 1.79901 * X_1^2 - 1132.10526 * X_2^2 - 103.61875 \quad (8.5)$$

$$Y_{susam\ küspesi} = 47.19000 * X_1 + 644.60000 * X_2 + 5.08425 * X_3 - 51.12500 * X_1 * X_2 - 0.15500 * X_1 * X_3 - 3.43000 * X_1^2 - 1044.50000 * X_2^2 - 0.091200 * X_3^2 - 132.05875 \quad (8.8)$$

$$Y_{aspir\ küspesi} = 14.18750 * X_1 + 221.17500 * X_2 + 0.60600 * X_3 - 24.62500 * X_1 * X_2 - 14.8606 \quad (8.11)$$

( $X_1$ : pH,  $X_2$ : biosorbent miktarı, g,  $X_3$ : temas süresi, dakika)

- Adsorpsiyon izotermelerini modelleme çalışması sonucunda, pH 2, 4 ve 6'da, 0.05 g, 0.15 g, 0.25 g biosorbent miktarında 10 dak, 20 dak ve 30 dak temas süreleri için oda sıcaklığında (25 °C), 175 rpm karıştırma hızında, adsorplanan alüminyum değerlerinin izoterm çalışmaları için Langmuir izoterm modeli, Freundlich izoterm modeli ve BET izoterm modeli olmak üzere 3 farklı model kullanılmış ve bu izoterm modelleri arasında her bir biosorbent için en yüksek korelasyon katsayısını ( $R^2$ ) ve

en düşük standart sapmayı ( $\sigma$ ) veren modelin Langmuir izoterm modeli olduğu görülmüştür.

- Adsorpsiyon prosesine ait yapılan kinetik çalışmalar sonucunda; Yalancı 1. Derece Kinetik, Yalancı 2. Derece Kinetik ve Partikül İçi Difüzyon Kinetiği modelleri olmak üzere 3 farklı adsorpsiyon kinetik modeli uygulanarak kinetik parametreler hesaplanmıştır. Uygulanan kinetik modeller arasında maksimum korelasyon katsayısını ( $R^2$ ) ve en düşük standart sapmayı ( $\sigma$ ) veren modelin Yalancı 1. Derece Kinetik modelin olduğu tespit edilmiştir.
- Kullanılan tarımsal atıklar içerisinde susam küspesi ile gerçekleştirilen adsorpsiyon işleminde pH 4, 25 °C sıcaklık, 0.25 g biosorbent miktarı ve 30 dak temas süresi koşullarında %98.64 verim ile alüminyum gideriminin en yüksek olduğu tespit edilmiştir. Susam küspesi için hesaplanan  $Q_{max}$  değeri 12.315 mg/g olarak bulunmuştur. Muz kabuğu, aspir küspesi ve limon kabuğu ile gerçekleştirilen adsorpsiyon işlemlerinde ise pH 6, 25 °C sıcaklık, 0.25 g biosorbent miktarı ve 30 dak temas süresi koşullarında sırası ile %98.02, %97.77 ve %93.76 alüminyum giderimi tespit edilmiştir. Muz kabuğu, aspir küspesi ve limon kabuğu için hesaplanan  $Q_{max}$  değerleri ise sırası ile 11.041, 9.0367 ve 7.8678 mg/g olarak bulunmuştur.

**Sonuç olarak;**  $Al^{+3}$  adsorpsiyonunda verim ve maksimum adsorpsiyon kapasite değerlerinin; susam küspesi > muz kabuğu > aspir küspesi > limon kabuğu şeklinde sıralandığı tespit edilmiştir. Yapılan çalışmada, adsorpsiyon prosesi için kullanılan tarımsal atıkların oldukça etkin oldukları görülmüş olup, ucuz maliyetli olmalarının yanısıra kolay bulunmaları açısından da avantaja sahip oldukları görülmüştür.

### **Öneriler;**

Bundan sonraki çalışmalarda;

- Muz kabuğu, limon kabuğu, susam küspesi ve aspir küspesi tarımsal atıkları ile insan sağlığı üzerinde olumsuz etkileri olan ve çevre kirliliğine sebebiyet veren diğer ağır metallerin sulu çözeltilerden giderim kapasiteleri araştırılabilir.

- Farklı tarımsal atıklar ile alüminyum ve diğer ağır metallerin sulu çözeltilerden giderim kapasiteleri araştırılabilir.
- Bunun dışında, numunelerin uygun koşullarda asit ile muamele veya ısı ile muameleleri sonucunda ön işlem görmüş tarımsal atıklar ile adsorpsiyon çalışmaları yapılarak kapasiteleri incelenebilir.

## KAYNAKLAR

---

- [1] Filiz, E., (2007). Doğal Kaynaklardan Elde Edilen Adsorbanlarla Sulardan Ağır Metal Giderimi, Yüksek Lisans Tezi, İstanbul Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul.
- [2] Ozbay, İ., Kavaklı, M., (2008). "Alüminyum Sektörü Endüstriyel Atıksu Arıtma Tesislerinin Kontrolü ve İşletme Sorunlarının Çözümlerine Yönelik Uygulanabilir Öneriler", Blacksea International Environmental Symposium, 25-29 Ağustos, Giresun.
- [3] Aly, Z., Ozbay, İ., Graulet, A., Scales, N., Hanley, T., (2014). "Removal of aluminium from aqueous solutions using PAN-based adsorbents: characterisation, kinetics, equilibrium and thermodynamic studies", Environ.
- [4] Hossain, M.A., Ngo, H.H., Guo, W.S., Nguyen, T.V., (2012). "Removal of Copper Water by Adsorption onto Banana Peel as Bioadsorbent", Geotec., Const. Mat. And Env., vol.2, pp.227-234.
- [5] Muz yapısı, <http://tr.wikipedia.org/wiki/Muz>, 10 Nisan 2014.
- [6] Topal, M., Arslan, E., Topal, I., Aslan, S., (2011). "Limon kabuğu kullanarak sulu çözeltilerden Cu(II) giderimi", Erciyes Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi, 27(3):265-270.
- [7] Demirhan, E., Özbek, B., Susam ve Susam Küspesi Substratlarının Hidroliz, Çözünürlük ve Enzim Aktivite Değerlerinin Karşılaştırılması
- [8] Aspir küspesi, [http://istanbul.tarim.gov.tr/Belgeler/KutuMenu/Brosurler/Endustri Bitkileri/aspir.pdf](http://istanbul.tarim.gov.tr/Belgeler/KutuMenu/Brosurler/Endustri%20Bitkileri/aspir.pdf), 25 Mart 2014.
- [9] Altın tarım, [http://www.altintarim.net/index.php?option=com\\_content&view=article&id=50&Itemid=62](http://www.altintarim.net/index.php?option=com_content&view=article&id=50&Itemid=62), 1 Mart 2014.
- [10] Su Kirliliği Kontrolü Yönetmeliği, Yayımlandığı Resmi Gazete Tarihi: 31 Aralık Cuma 2004. Sayı: 25687.
- [11] Appenroth, K.J., (2010). "Definition of "Heavy Metals" and Their Role in Biological Systems", <http://www.springer.com>, 978-3-642-02435-1, 12 Şubat 2014.

- [12] Siegel, F.R., (2002). "Environmental Geochemistry of Potential Toxic Metals, Verlag Berlin Heidelberg", New York.
- [13] Metallerin Çevresel Etkileri, İTÜ Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Bölümü, [http://www.metalurji.org.tr/dergi/dergi136/d136\\_4753.pdf](http://www.metalurji.org.tr/dergi/dergi136/d136_4753.pdf), 7 Mart 2014.
- [14] Bakar, C., Baba, A., (2009). "Metaller ve İnsan Sağlığı : Yirminci Yüzyıldan Bugüne ve Geleceğe Miras Kalan Çevre Sağlığı Sorunu", 1.Tıbbi Jeoloji Çalıştayı, 30 Ekim–1 Kasım 2009, Ürgüp Bld., Kültür Merkezi, Ürgüp/ NEVŞEHİR.
- [15] Singh, T.S., Parikh, B., Pant, K., (2006). "Investigation on the sorption of aluminium in drinking water by low-cost adsorbents", Water SA, Vol.32.
- [16] Lodeiro, P., Gudiña, Á., Herrero, L., Herrero, R., Vicent, M.E.S., (2010). "Aluminium removal from wastewater by refused beach cast seaweed. Equilibrium and dynamic studies", Journal of Hazardous Materials, 78 : 861–866.
- [17] Bicer, A., Yalcın, H., (2007). Inorganik Kimyasal Teknoloji, Yüksek Lisans Tezi, Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Gazi Üniversitesi, Ankara.
- [18] Şahin, Ü., (2007). Çeşitli örnek ve Matrislerde, Alüminyumun Spektrofotometrik Tayinleri, Yüksek Lisans Tezi, Erciyes Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Kayseri.
- [19] WHO, Aluminium in Drinking Water, Background document for development of WHO Guidelines for Drinking-water Quality, Originally published in Guidelines for drinking-water quality, 2nd ed. Addendum to Vol. 2. Health criteria and other supporting information. World Health Organization, Geneva, 1998.
- [20] Othman, M.N., Abdullah, P., Aziz, Y.F., (2010). "Removal of Aluminium from Drinking Water", Sains Malaysiana, 39(1): 51–55.
- [21] Evangelou, V. P., (1998). "Environmental Soil and Water Chemistry, Principles and Applications", John Wiley&Sons, Inc.
- [22] Çetiner, E. G., Ünver, B. Ve Hindistan, M.A., (2006). "Maden Atıkları ile ilgili Mevzuat", Avrupa Birliği ve Türkiye, Madencilik, 45,23-34.
- [23] Allen, S.J., Gan, Q., Matthews, R. ve Johnson, P.A., (2003). "Comparison of optimised isotherm models for basic dye adsorption by kudzu, Bioresource Technology", 88: 143-152. 64.
- [24] Alkan, M., Çelikçapa, S., Demirbaş, Ö. ve Doğan, M., (2005). "Removal of reactive blue 221 and acid blue 62 anionic dyes from aqueous solutions by sepiolite", Dyes and Pigments, 65: 251-259.
- [25] Kocaer, F. O., Ve Alkan, U., (2002). "Boyar Madde İçeren Tekstil Atık Sularının Arıtım Alternatifleri", Uludağ Üniversitesi Mühendislik-Mimarlık Fakültesi Dergisi, 7, 47-55.
- [26] Uğurlu, M., (2004). "The Removal of Some Inorganic Compounds From Paper Mill Effluents by the Electrocoagulation Model", 17: 85-99.
- [27] Armağan, B., Turan, M. Ve Çelik, M.S., (2003). "Modifiye Sepiyolit ve Zeolitin Tekstil Endüstrisi Atık sularında Adsorbant olarak Kullanılması: Karşılaştırılması"

Değerlendirme, 5. Ulusal Çevre Mühendisliği Kongresi, 1-4 Ekim, Ankara Milli Kütüphane, s. 187-195.

- [28] Atık sular, [http://www.mmo.org.tr/resimler/dosyaekler/7d16d00201083a2\\_ek.pdf?dergi=142](http://www.mmo.org.tr/resimler/dosyaekler/7d16d00201083a2_ek.pdf?dergi=142) T.C. millî eğitim bakanlığı , (2011), 11 Nisan 2014.
- [29] Özkırım, İ., (2002), Doğal Zeolitlerde Azot Adsorpsiyonu, Yüksek Lisans Tezi Anadolu Üniv., Fen Bilimleri Enstitüsü, 72, Eskişehir.
- [30] Smith, J. M. (1981). Chemical Engineering Kinetics, third edition, McGraw-Hill International, New York.
- [31] Gülbayır, D. D., (2008). Şeftali Çekirdeği ve Polimer Esaslı Aktif Karbon ile Sulu Çözeltilerden Krom(IV) Giderim, Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı, Yıldız Teknik Üniversitesi, İstanbul.
- [32] Yılmaz, H., Yıldız, S., Kılıç, E., (2005). Fizikokimya, Bilim Yayıncılık, 2.baskı, Ankara.
- [33] Aytaş, B. (2008). Farklı Adsorbanlar ile Sulu Çözeltilerden Klorofenol Giderim, Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı, Yıldız Teknik Üniversitesi, İstanbul.
- [34] Hamutoğlu, R., Yılmaz, Dinçsoy , A. B., Cansaran Duman, D., Aras, S., (2012). "Biosorption, adsorption, phytoremediation methods and applications", Türk Hijyen ve Deneysel Biyoloji Dergisi, Cilt 64, sayı: 12.
- [35] Dinçyürek, Ö. P., (2006). Termik Santral Uçucu Tiplerinin Atıksulardaki Fenolün Adsorpsiyon Yöntemi ile Giderim Etkinliklerinin Karşılaştırılması, Yüksek Lisans Tezi, Çukurova Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Adana.
- [36] Alyüz, B. And Veli, S., (2005). "Low-Cost Adsorbents Used in Heavy Metal Contaminated Waste Water treatment, Journal of Engineering and Natural Sciences, 3, 94-105.
- [37] Türkyılmaz, A., (2011). Bazı Bitkisel Atıklardan Aktif Karbon Eldesi ve Yüzey Özellikleri, Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Ana Bilim Dalı, Balıkesir Üniversitesi, Balıkesir.
- [38] Yang, R. T., (2003). "Adsorbents: Fundamentals and applications, John Wiley&Sons, Inc., Hoboken, New Jersey.
- [39] Akıncı, Ö., "Seramik Killeri ve Jeolojisi", Maden Tetkik ve Arama Enstitüsü, Ankara.
- [40] Özcan, A.S., Erdem, B. ve Özcan, A., (2005), "Adsorption of Acid Blue 193 from aqueous solutions onto BTMA-bentonite", Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects, 266: 73-81.
- [41] Özcan, A.S., Erdem, B. ve İmamoğlu, İ., (2005), "Klinoptilolit Kullanarak Atık sulardan Ağır Metal (Çinko,Kurşun) Gideriminin İncelenmesi, 6. Ulusal Çevre Mühendisliği Kongresi, 24-26 Kasım, İTÜ, s. 292-300.

- [42] Morali , N., Çağın, V. ve Özcan, A., (2005). "Adsorption of Acid Blue 193 from aqueous solutions onto BTMA-bentonite", *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects*, 266: 73-81.
- [43] Alyüz, B., Veli S., (2005). "Low-cost Adsorbents Used in Heavy Metal Contaminated Waste Water Treatment", *Journal of Engineering and Natural Sciences*, 3, 94-105.
- [44] Sharma D. C., Forster, C. F., (1993). "Hexavalent Chromium Using Sphagnum Mass Peat", *Water Research*, 24, 1463-1471.
- [45] Panday, K. K., Prasad, G. and Singh, V. N., (1985). "Copper (II) Removal from Aqueous Solutions by Fly Ash", *Water Research*, 19, 869-873.
- [46] Srivastava, S. K., Singh, A.K. and Sharma A., (1994). "Studies on the Uptake of Lead and Zinc by Lignin Obtained from Liquor", *Waste Material, Environmental Techonology*, 15,353-361.
- [47] Srivastava, S. K., Tyagi, R., Pant, N., (1989). "Adsorption of heavy metal ions on Carbonaceous Material Developed from the Waste Slurry Generated in Local Fertilizer Plants", *Water Research*, 23, 1161-1165.
- [48] Dimitrova, S.V., (1996). "Metal Sorption on Blast-Furnace Slag", *Water Research*, 30, 228-232.
- [49] Ajmal, M., Khan A.H., Ahmad S. and Aghmad A, (1998)." Role of Sawdust in the Removal of Copper (II) from Industrial Wastes", *Water Research*, 32, 3085-3091.
- [50] Banat, F., Al-Asheh, S. and Mohai, F., (2000)." Batch zinc removal from aqueous solutions using dried animal bones, *Separation and Purification Technology*, 21, 155-164.
- [51] Annadurai, G., Juang, R. S., Lee, D.J., (2002). "Adsorption of heavy metals from water using banana and orange peels" *Water Science and Technology Vol 47 No 1 pp.*, 185–190.
- [52] Bhatnagar, A.K. and Minocha, M.S., (2010). "Adsorptive removal of cobalt from aqueous solution by utilizing lemon peel as biosorbent", *Biochemical Engineering Journal*, 48: 181–186, 2010.
- [53] Hung, W., Lu, C., Liao, C. and Hwang, L. S., (2012). "Safety evaluation of nano/sub-microsized lignan glycosides from sesame meal", *Food Control* 30., 129-136, Taiwan.
- [54] Angin, D., Köseb. T. E., Selengil, U., (2013). "Production and characterization of activated carbon prepared from safflower seed cake biochar and its ability to absorb reactive dyestuff", *Elsevier*, Vol 280, 705–71.
- [55] Kabak, H., (2008). Kullanılan Bazı Tıbbi İlaçların Canlı Aktif Çamur Kütlesi Tarafından Adsorpsiyonunun İncelenmesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı, Çukurova Üniversitesi, Adana.
- [56] Mortimer, R.G., (2004). (Çeviri ed. Oya Fanlı, Halil İbrahim Ünal) *Fizikokimya*, Palme Yayıncılık, Ankara.

- [57] Ömeroğlu, Ç., (2007). "The Investigation Of Adsorption Of Reactive Blue Dye Onto Organo- lay", 40-41.
- [58] Savcı, S., (2010). Veteriner ve Beşeri Amaçlı Kullanılan Bazı Farmasötiklerin Canlı Aktif Çamur Tarafından Adsorpsiyonunun İncelenmesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı, Çukurova Üniversitesi, Adana.
- [59] Gao, Y., Chen, N., Hu, W., Feng, C., Zhang, B., Ning, Q., Xu, B., (2013). "Phosphate Removal from Aqueous Solution by an Effective Clay Composite Material", J Solution Chem, 42:691–704.
- [60] Balcı, B., (2007). Atıksulardan Tekstil Boyarmaddelerinin Sürekli ve Kesikli Sistemlerde Ağaç Kabuğu (eucalyptus camaldulensis) Kullanılarak Adsorpsiyon ile Giderilmesi, Çukurova Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Çevre Mühendisliği Anabilim dali, Yüksek lisans tezi, Adana.
- [61] Bozgeyik, K. (2006). "Titanyum Dioksit Üzerine Bovine Serum Albumin Adsorpsiyonu", Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Anabilim Dalı, Zonguldak Karaelmas Üniversitesi, Zonguldak.
- [62] Kannan N. ve Sundaram, M.M., (2001), "Kinetics and mechanism of removal of methylene blue by adsorption on various carbons", A comparative study, Dyes Pigments, 51, 1, 25-40.
- [63] Ho, Y. S., Wase, D. A. J. ve Forster, C. F., (1996), "Kinetic studies of competitive heavy metal adsorption by sphagnum moss peat", Environmental Technology, 17, 1, 71-77.
- [64] Ramachandran, P., Vairamuthu, R., & Ponnusamy, S. (2011). Adsorption Isotherms, Kinetics, Thermodynamics and Desorption Studies of Orange16 on Activated Carbon Derived from Ananas Comosus(L.) Carbon, Journal of Engineering and Applied Sciences , 6, 15-26.
- [65] Bilir, M. H. (2009). Yer Fıstığı Kabuğundan Üretilen Poliüretan Tipi Köpük ile Safranin ve Remazol Brilliant Blue R'nin Adsorpsiyonunun İncelenmesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Anabilim Dalı, Kilis 7 Aralık Üniversitesi, Kilis.
- [66] Akpınar, E., K., (2005). "Deneysel Çalışmalarda Hata Analizine Bir Örnek: Kurutma Deneylerindeki Hata Analizi", Mühendis ve Makine, 46(540): 41-48.
- [67] Özbek, B., Yüceer S., (2001). "α-Amylase inactivation during wheat starch hydrolysis process", Process Biochemistry, 37:87-95.
- [68] Karakoç, Ö., (2006). Deneylerin Faktöriyel Tasarımı, Yüksek Lisans Tezi, Marmara Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul.
- [69] Gökçe, B., Taşgetiren, S., (2009). "Kalite için Deneysel tasarım", Electronic Journal of Machine Technologies, 6(1):71-83.
- [70] Kasapoğlu, Ö., (2007). Talaşlı İmalatta Bir Kalite Karakteristiğinin Modellenmesi, Doktora Tezi, İstanbul Üniversitesi, Sosyal Bilimler Enstitüsü, İstanbul.

- [71] Rodr guez-Nogales, J., M., Ortega, N., Perez-Mateos, M., Busto, M., D., (2007). "Deneyal design and response surface modeling applied for the optimisation of pectin hydrolysis by enzymes from *A. niger* CECT 2088", 101:634-642.
- [72] G ven, A., (2004). "Oleyil Oleatın S perkritik CO<sub>2</sub> Ortamında Enzimatik  retimi", Ankara  niversitesi Bilimsel Arařtırma Projesi Kesin Raporu, Ankara.
- [73] Bevilacqua, A., Corbo, M., R., Sinigaglia M., (2010). "Design of Deneys: A Powerful Tool in Food Microbiology", Technology and Education Topics in Applied Microbiology and Microbial Biotechnology, 1419- 1429.
- [74] Bakkal, C., (2012). Gıda End strisi Atıđından  retilen Aktif Karbon ile Arsenik Adsorpsiyonunun Denge ve Kinetik Aıdan İncelenmesi, Y ksek Lisans Tezi, Yıldız Teknik  niversitesi, Fen Bilimleri Enstit s , İstanbul.
- [75] Nash R. A., Wachter A. H., (2003). "Pharmaceutical Process Validation", Drugs and Pharmaceutical Sciences, Volume 129.
- [76] Deneysel tasarım, <http://www.itl.nist.gov/div898/handbook/pri/section1/pri11.htm>, 16 Nisan 2014.
- [77] Kul, S., (2004). Cevap Y zeyi Y ntemleri, Y ksek Lisans Tezi, Mersin  niversitesi, Sađlık Bilimleri Enstit s , Mersin.
- [78] Eren, İ., (2004). Patateslerin Osmotik Dehidrasyonunun Response Surface Metodu Kullanılarak Optimizasyonu, Y ksek Lisans Tezi, Ege  niversitesi, Fen Bilimleri Enstit s , İzmir.
- [79] Aslan, N., Cebeci, Y., (2007). "Application of Box–Behnken design and response surface methodology for modeling of some Turkish coals", Fuel, 86:90-97.
- [80] Turan, M., D., Altundođan, H., S., (2011). Hidrometalurjik Arařtırmalarda Yanıt Y zey Y ntemlerinin (YYY) Kullanımı, Madencilik, 50(3):11-23.
- [81] Eldelekliođlu, B., (2009). Peyniraltı Suyundan Laktik Asit  retimi, Y ksek Lisans Tezi, Ankara  niversitesi, Fen Bilimleri Enstit s , Ankara.
- [82] Khajeh, M., (2011). "Response surface modelling of lead pre-concentration from food samples by miniaturised homogenous liquid–liquid solvent extraction: Box–Behnken design", Food Chemistry, 129:1832-38.
- [83] Singh, B., Panesar, P., S., Nanda, V., Gupta, A., K., Kennedy, J., F., (2006). "Application Of Response Surface Methodology For The Osmotic Dehydration Of Carrots", Journal of Food Process Engineering, 29:592-614.
- [84] Singh, B., Panesar, P., S., Nanda, V., Gupta, A., K., Kennedy, J., F., (2006). ". Ko, B., Kaymak-Ertekin, F., (2009). Yanıt Y zey Y ntemi ve Gıda İřleme Uygulamaları, Ege  niversitesi, M hendislik Fak ltesi, Gıda M hendisliđi B l m , Bornova, İzmir.
- [85] Montgomery, D. C., (2001). Design and Analysis of Experiments, 5<sup>th</sup> ed., United of America.

- [86] Abo-Amer, A. E., Ramadan, A. B., Abo-State, M., Abu-Gharbia, M. A., Ahmed, H. E., (2013). "Biosorption of aluminum, cobalt, and copper ions by *Providencia rettgeri* isolated from wastewater", *J. Basic Microbiol.*, 53, 477–488
- [87] Abdel-Ghani, N. T., El-Chaghaby G. A., Helal, F. S., (2013). "Simultaneous removal of aluminum, iron, copper, zinc, and lead from aqueous solution using raw and chemically treated African beech wood sawdust", *Desalination and Water Treatment*, 51, 3558–3575.
- [88] Qian, L., Chen, B., (2013). "Dual Role of Biochars as Adsorbents for Aluminum: The Effects of Oxygen-Containing Organic Components and the Scattering of Silicate Particles, *Environ. Sci. Technol.*, 47, 8759–8768.
- [89] Somasani S. L., (2012). "Removal of Heavy Metals from Drinking Water by Adsorption onto Limestone with a Focus on Copper and Aluminum Applications", Western Kentucky University, Masters Theses and Specialist Projects. Paper 1204.
- [90] Al-Muhtaseb, S. A., El-Naas M. H., Abdallah S., (2008). "Removal of aluminum from aqueous solutions by adsorption on date-pit and BDH activated carbons", *Journal of Hazardous Materials* 158, 300–307.
- [91] Choksi, M. P., Joshi, Y. V., (2007). "Adsorption kinetic study for the removal of nickel (II) and aluminum (III) from an aqueous solution by natural adsorbents", *Desalination*, 208 216–231.
- [92] Singh S. T., Parikh B. & Pant KK., (2005)." Investigation on the sorption of aluminium in drinking water by low-cost adsorbents", *Water SA.*, 32:1.
- [93] Ozdemir, G., Baysal, S. H., (2004). "Chromium and aluminum biosorption on *Chryseomonas luteola* TEM05", *Appl Microbiol Biotechnol*, 64: 599–603.
- [94] Özveren, U., Bozdağ, N. D., Şahin, S., Ozdoğan, S., (2012). "TG-MS ve FTIR Kullanılarak Fındık Kabuğunun Gazlaştırılmasının İncelenmesi", Onuncu Ulusal Kimya Mühendisliği Kongresi, Koç Üniversitesi, İstanbul.
- [95] Thirumavalavan, M., Lai, Y., Lee, J., "Fourier transform infrared spectroscopic analysis of fruit peels before and after the adsorption of heavy metal ions from aqueous solution", (2011). *J. Chem. Eng. Data*, 56, 2249–2255.
- [96] Kamsonlian, S., Balomajumder, C., Chand, S., "A potential of biosorbent derived from banana peel for removal of as (III) from contaminated water", (2012). *Int. J. of Chemical Sciences and Applications*, vol.3, pp 269-275.
- [97] El-Helow, E.R and El-Ahawany, M.A., (1999). "Lichenase production by catabolite repression-resistant *Bacillus subtilis* mutants: Optimization and formulation of an agro-industrial by-product medium", *Enzyme and Microbial Technology*, 24:325–331.
- [98] Bhatnagar, A.K. and Minocha, M.S., (2010). "Adsorptive removal of cobalt from aqueous solution by utilizing lemon peel as biosorbent", *Biochemical Engineering Journal* 48, 181–186.

### **ALUMİNYUM ADSORPSİYONUNA AİT İZOTERM VERİLERİ**

Çizelge EK-A.1, Çizelge EK-A.2, Çizelge EK-A.3 ve Çizelge EK-A.4'de sırasıyla muz kabuğu, limon kabuğu, susam küspesi ve aspir küspesi numuneleri ile gerçekleştirilen adsorpsiyon deneylerine ait veriler sunulmuştur.

Çizelge EK-A.1 Muz kabuğu numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen adsorpsiyon deney verileri

<b>Deney Koşulları</b>	<b>Biosorbent Miktarı (g)</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>	<b>C<sub>e</sub> (mg/mL)</b>
pH 2-30 dak	0.05	4.08	2.95
	0.01	2.52	2.65
	0.15	1.91	2.12
	0.20	1.83	1.20
	0.25	1.66	0.83
pH 4-30 dak	0.05	5.68	2.15
	0.01	3.48	1.51
	0.15	2.71	0.92
	0.20	2.16	0.67
	0.25	1.80	0.47
pH 6-30 dak	0.05	5.68	0.95
	0.01	3.48	0.550
	0.15	2.71	0.20
	0.20	2.16	0.12
	0.25	1.80	0.09

Çizelge EK-A.2 Limon kabuğu numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen adsorpsiyon deney verileri

<b>Deney Koşulları</b>	<b>Biosorbent Miktarı (g)</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>	<b>C<sub>e</sub> (mg/mL)</b>
pH 2-30 dak	0.05	3.63	3.18
	0.01	2.52	2.47
	0.15	2.12	1.82
	0.20	1.77	1.44
	0.25	1.51	1.12
pH 4-30 dak	0.05	1.76	2.15
	0.01	3.96	1.51
	0.15	2.98	0.92
	0.20	2.30	0.67
	0.25	1.85	0.47
pH 6-30 dak	0.05	8.66	0.67
	0.01	4.38	0.61
	0.15	3.07	0.39
	0.20	2.35	0.33
	0.25	1.87	0.31

Çizelge EK-A.3 Susam küspesi numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen adsorpsiyon deney verileri

<b>Deney Koşulları</b>	<b>Biosorbent Miktarı (g)</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>	<b>C<sub>e</sub> (mg/mL)</b>
pH 2-30 dak	0.05	4.02	2.99
	0.01	2.67	2.13
	0.15	2.14	1.79
	0.20	1.82	1.35
	0.25	1.55	1.11
pH 4-30 dak	0.05	6.98	1.50
	0.01	3.89	1.10
	0.15	3.27	0.09
	0.20	2.41	0.07
	0.25	1.97	0.06
pH 6-30 dak	0.05	8.83	0.58
	0.01	4.53	0.40
	0.15	3.14	0.28
	0.20	2.41	0.16
	0.25	1.95	0.10

Çizelge EK-A.4 Aspir küspesi numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen adsorpsiyon deney verileri

<b>Deney Koşulları</b>	<b>Biosorbent Miktarı (g)</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>	<b>C<sub>e</sub> (mg/mL)</b>
pH 2-30 dak	0.05	4.1	2.95
	0.01	2.44	2.66
	0.15	2.01	1.98
	0.20	1.67	1.64
	0.25	1.36	1.57
pH 4-30 dak	0.05	5.40	2.30
	0.01	3.00	1.24
	0.15	2.68	0.96
	0.20	2.20	0.59
	0.25	1.84	0.37
pH 6-30 dak	0.05	8.54	0.72
	0.01	4.70	0.29
	0.15	3.20	0.18
	0.20	2.43	0.12
	0.25	1.96	0.11

### **ALUMİNYUM ADSORPSİYON KİNETİĞİNE AİT VERİLER**

Çizelge EK-B.1, Çizelge EK-B.2, Çizelge EK-B.3 ve Çizelge EK-B.4’de sırasıyla muz kabuğu, limon kabuğu, susam küspesi ve aspir küspesi numuneleri ile gerçekleştirilen adsorpsiyon kinetiği deneylerine ait veriler sunulmuştur.

Çizelge EK-B.1 Muz kabuğu numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen kinetik deney verileri

<b>Deney Koşulları</b>	<b>Biosorbent Miktarı (g)</b>	<b>t (dak)</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>
pH 2-25°C	0.05	0	0.00
	0.05	5	0.76
	0.05	10	2.44
	0.05	15	3.14
	0.05	20	3.46
	0.05	25	3.74
	0.05	30	3.78
pH 2-25°C	0.15	0	0.00
	0.15	5	0.90
	0.15	10	1.80
	0.15	15	1.87
	0.15	20	1.89
	0.15	25	1.90
	0.15	30	1.91
pH 2-25°C	0.25	0	0.00
	0.25	5	0.81
	0.25	10	1.36
	0.25	15	1.54
	0.25	20	1.64
	0.25	25	1.65
	0.25	30	1.66

Çizelge EK-B.1 Muz kabuğu numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen kinetik deney verileri (devamı)

<b>Deney Koşulları</b>	<b>Biosorbent Miktarı (g)</b>	<b>t (dak)</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>
pH 4-25°C	0.05	0	0.00
	0.05	5	3.42
	0.05	10	4.88
	0.05	15	5.24
	0.05	20	5.48
	0.05	25	5.66
	0.05	30	5.68
pH 4-25°C	0.15	0	0.00
	0.15	5	1.28
	0.15	10	1.89
	0.15	15	2.12
	0.15	20	2.45
	0.15	25	2.63
	0.15	30	2.71
pH 4-25°C	0.25	0	0.00
	0.25	5	0.88
	0.25	10	1.63
	0.25	15	1.71
	0.25	20	1.76
	0.25	25	1.80
	0.25	30	1.80

Çizelge EK-B.1 Muz kabuğu numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen kinetik deney verileri (devamı)

<b>Deney Koşulları</b>	<b>Biosorbent Miktarı (g)</b>	<b>t (dak)</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>
pH 6-25°C	0.05	0	0.00
	0.05	5	6.27
	0.05	10	7.59
	0.05	15	7.78
	0.05	20	7.84
	0.05	25	7.98
	0.05	30	8.01
pH 6-25°C	0.15	0.00	0.00
	0.15	2.68	1.28
	0.15	3.07	1.89
	0.15	3.12	2.12
	0.15	3.17	2.45
	0.15	3.21	2.63
	0.15	3.25	2.71
pH 6-25°C	0.25	0.00	0.00
	0.25	1.71	0.88
	0.25	1.84	1.63
	0.25	1.90	1.71
	0.25	1.92	1.76
	0.25	1.95	1.80
	0.25	1.96	1.80

Çizelge EK-B.2 Limon kabuğu numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen kinetik deney verileri

<b>Deney Koşulları</b>	<b>Biosorbent Miktarı (g)</b>	<b>t (dak)</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>
pH 2-25°C	0.05	0	0.00
	0.05	5	0.32
	0.05	10	1.91
	0.05	15	2.56
	0.05	20	3.08
	0.05	25	3.56
	0.05	30	3.61
pH 2-25°C	0.15	0.00	0.00
	0.15	2.68	1.02
	0.15	3.07	1.61
	0.15	3.12	1.88
	0.15	3.17	2.07
	0.15	3.21	2.12
	0.15	3.25	2.14
pH 2-25°C	0.25	0.00	0.00
	0.25	1.71	0.73
	0.25	1.84	1.21
	0.25	1.90	1.29
	0.25	1.92	1.41
	0.25	1.95	1.47
	0.25	1.96	1.49

Çizelge EK-B.2 Limon kabuğu numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen kinetik deney verileri (devamı)

<b>Deney Koşulları</b>	<b>Biosorbent Miktarı (g)</b>	<b>t (dak)</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>
pH 4-25°C	0.05	0	0.00
	0.05	5	1.76
	0.05	10	4.58
	0.05	15	5.20
	0.05	20	5.60
	0.05	25	5.78
	0.05	30	5.78
pH 4-25°C	0.15	0.00	0.00
	0.15	2.68	1.30
	0.15	3.07	1.78
	0.15	3.12	2.50
	0.15	3.17	2.74
	0.15	3.21	3.02
	0.15	3.25	3.03
pH 4-25°C	0.25	0.00	0.00
	0.25	1.71	1.67
	0.25	1.84	1.74
	0.25	1.90	1.79
	0.25	1.92	1.81
	0.25	1.95	1.84
	0.25	1.96	1.85

Çizelge EK-B.2 Limon kabuğu numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen kinetik verilerinin (devamı)

<b>Deney Koşulları</b>	<b>Biosorbent Miktarı (g)</b>	<b>t (dak)</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>
pH 6-25°C	0.05	0	0.00
	0.05	5	6.91
	0.05	10	8.12
	0.05	15	8.35
	0.05	20	8.47
	0.05	25	8.61
	0.05	30	8.66
pH 6-25°C	0.15	0.00	0.00
	0.15	2.57	1.30
	0.15	2.84	1.78
	0.15	2.89	2.50
	0.15	3.03	2.74
	0.15	3.05	3.02
	0.15	3.06	3.03
pH 6-25°C	0.25	0.00	0.00
	0.25	1.72	1.67
	0.25	1.79	1.74
	0.25	1.82	1.79
	0.25	1.84	1.81
	0.25	1.86	1.84
	0.25	1.86	1.85

Çizelge EK-B.3 Susam küspesi numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen kinetik deney verileri

<b>Deney Koşulları</b>	<b>Biosorbent Miktarı (g)</b>	<b>t (dak)</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>
pH 2-25°C	0.05	0	0.00
	0.05	5	0.98
	0.05	10	3.56
	0.05	15	3.87
	0.05	20	3.98
	0.05	25	4.01
	0.05	30	4.02
pH 2-25°C	0.15	0.00	0.00
	0.15	2.57	0.53
	0.15	2.84	1.60
	0.15	2.89	1.81
	0.15	3.03	2.02
	0.15	3.05	2.11
	0.15	3.06	2.13
pH 2-25°C	0.25	0.00	0.00
	0.25	1.72	0.41
	0.25	1.79	1.23
	0.25	1.82	1.38
	0.25	1.84	1.52
	0.25	1.86	1.53
	0.25	1.86	1.55

Çizelge EK-B.3 Susam küspesine numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen kinetik deney verileri (devamı)

<b>Deney Koşulları</b>	<b>Biosorbent Miktarı (g)</b>	<b>t (dak)</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>
pH 4-25°C	0.05	0	0.00
	0.05	5	4.50
	0.05	10	5.66
	0.05	15	6.71
	0.05	20	6.82
	0.05	25	6.94
	0.05	30	6.98
pH 4-25°C	0.15	0.00	0.00
	0.15	2.57	2.37
	0.15	2.84	2.79
	0.15	2.89	3.03
	0.15	3.03	3.19
	0.15	3.05	3.23
	0.15	3.06	3.27
pH 4-25°C	0.25	0.00	0.00
	0.25	1.72	1.50
	0.25	1.79	1.77
	0.25	1.82	1.87
	0.25	1.84	1.91
	0.25	1.86	1.95
	0.25	1.86	1.97

Çizelge EK-B.3 Susam küspesi numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen kinetik deney verileri (devamı)

<b>Deney Koşulları</b>	<b>Biosorbent Miktarı (g)</b>	<b>t (dak)</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>
pH 6-25°C	0.05	0	0.00
	0.05	5	7.41
	0.05	10	8.54
	0.05	15	8.83
	0.05	20	9.14
	0.05	25	9.19
	0.05	30	9.20
pH 6-25°C	0.15	0.00	0.00
	0.15	2.57	2.59
	0.15	2.84	2.86
	0.15	2.89	2.97
	0.15	3.03	3.11
	0.15	3.05	3.13
	0.15	3.06	3.14
pH 6-25°C	0.25	0.00	0.00
	0.25	1.72	1.69
	0.25	1.79	1.81
	0.25	1.82	1.87
	0.25	1.84	1.91
	0.25	1.86	1.94
	0.25	1.86	1.94

Çizelge EK-B.4 Aspir küspesi numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen kinetik deney verileri

<b>Deney Koşulları</b>	<b>Biosorbent Miktarı (g)</b>	<b>t (dak)</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>
pH 2-25°C	0.05	0	0.00
	0.05	5	0.34
	0.05	10	3.22
	0.05	15	3.76
	0.05	20	3.84
	0.05	25	4.08
	0.05	30	4.10
pH 2-25°C	0.15	0.00	0.00
	0.15	2.57	0.46
	0.15	2.84	1.47
	0.15	2.89	1.78
	0.15	3.03	1.89
	0.15	3.05	1.94
	0.15	3.06	1.97
pH 2-25°C	0.25	0.00	0.00
	0.25	1.72	0.38
	0.25	1.79	1.18
	0.25	1.82	1.28
	0.25	1.84	1.32
	0.25	1.86	1.34
	0.25	1.86	1.34

Çizelge EK-B.4 Aspir küspesi numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen kinetik deney verileri (devamı)

<b>Deney Koşulları</b>	<b>Biosorbent Miktarı (g)</b>	<b>t (dak)</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>
pH 4-25°C	0.05	0	0.00
	0.05	5	2.02
	0.05	10	4.80
	0.05	15	5.40
	0.05	20	5.58
	0.05	25	5.64
	0.05	30	5.65
pH 4-25°C	0.15	0.00	0.00
	0.15	2.57	1.22
	0.15	2.84	1.94
	0.15	2.89	2.34
	0.15	3.03	2.59
	0.15	3.05	2.63
	0.15	3.06	2.63
pH 4-25°C	0.25	0.00	0.00
	0.25	1.72	0.87
	0.25	1.79	1.53
	0.25	1.82	1.65
	0.25	1.84	1.77
	0.25	1.86	1.87
	0.25	1.86	1.88

Çizelge EK-B.4 Aspir küspesi numunelerine ait farklı pH ve biosorbent miktarlarında elde edilen kinetik deney verileri (devamı)

<b>Deney Koşulları</b>	<b>Biosorbent Miktarı (g)</b>	<b>t (dak)</b>	<b>q<sub>e</sub> (mg/g)</b>
pH 6-25°C	0.05	0	0.00
	0.05	5	8.26
	0.05	10	8.84
	0.05	15	9.00
	0.05	20	9.09
	0.05	25	9.18
	0.05	30	9.19
pH 6-25°C	0.15	0.00	0.00
	0.15	2.57	2.86
	0.15	2.84	2.97
	0.15	2.89	3.06
	0.15	3.03	3.07
	0.15	3.05	3.18
	0.15	3.06	3.20
pH 6-25°C	0.25	0.00	0.00
	0.25	1.72	1.82
	0.25	1.79	1.89
	0.25	1.82	1.90
	0.25	1.84	1.94
	0.25	1.86	1.95
	0.25	1.86	1.95

**DESIGN EXPERT**

Çizelge EK-C.1, Çizelge EK-C.2, Çizelge EK-C.3 ve Çizelge EK-C.4’de sırasıyla muz kabuğu, limon kabuğu, susam küspesi ve aspir küspesi numuneleri için Design Expert tarafından önerilen diğer optimum proses koşullarına ait veriler sunulmuştur.

Çizelge EK-C.1 Design Expert programı tarafından önerilen muz kabuğu numunesine ait diğer optimum proses koşulları

**Solutions**

Number	pH	Biosorbent Miktar (g)	t (dak)	% Adsorpsiyon	Desirability	
1	5.859	0.186	15.222	97.814	1.000	Selected
2	6.000	0.250	20.000	99.109	1.000	
3	5.430	0.183	20.778	98.504	1.000	
4	5.829	0.170	19.932	97.197	1.000	
5	5.761	0.223	19.605	98.498	1.000	
6	5.474	0.196	22.630	99.852	1.000	
7	5.789	0.209	18.317	99.869	1.000	
8	5.166	0.232	19.075	97.818	1.000	
9	5.361	0.216	27.912	97.796	1.000	
10	5.151	0.209	19.927	97.745	1.000	
11	5.506	0.242	28.247	98.199	1.000	
12	5.933	0.167	28.333	98.923	1.000	
13	5.192	0.216	23.186	98.765	1.000	
14	5.598	0.229	19.227	97.326	1.000	
15	5.893	0.199	18.822	98.618	1.000	
16	5.834	0.222	29.838	98.880	1.000	
17	5.908	0.198	14.478	97.769	1.000	
18	5.631	0.243	28.815	98.324	1.000	
19	5.036	0.240	20.378	97.642	1.000	
20	5.807	0.210	15.440	98.493	1.000	
21	5.939	0.169	26.327	97.485	1.000	
22	5.691	0.244	15.671	97.666	1.000	
23	5.989	0.237	23.415	99.860	1.000	
24	5.776	0.225	26.817	98.041	1.000	
25	5.908	0.215	27.237	98.583	1.000	
26	5.835	0.145	22.572	98.373	1.000	
27	5.610	0.162	24.767	98.107	1.000	
28	5.175	0.205	26.073	97.501	1.000	
29	5.147	0.246	20.802	98.254	1.000	
30	5.876	0.194	20.689	99.173	1.000	
31	5.635	0.237	24.381	98.102	1.000	
32	5.797	0.205	22.464	99.291	1.000	
33	5.487	0.201	23.886	97.060	1.000	
34	5.892	0.245	18.693	98.182	1.000	
35	5.683	0.241	26.818	97.202	1.000	
36	5.363	0.242	20.451	99.338	1.000	
37	5.067	0.240	23.040	98.207	1.000	
38	5.907	0.204	29.572	99.473	1.000	
39	5.608	0.245	25.977	97.124	1.000	
40	5.840	0.206	17.959	97.898	0.994	
41	5.888	0.213	16.532	97.120	0.994	
42	5.969	0.210	15.468	99.031	0.999	
43	5.317	0.201	20.436	98.664	0.997	

43 Solutions found

Çizelge EK-C.2 Design Expert programı tarafından önerilen limon kabuğu numunesine ait diğer optimum proses koşulları

**Solutions**

Number	pH	Biosorbent miktar (g)	t (dak)	% Adsorpsiyon	Desirability	
1	6.000	0.150	30.000	94.248	1.000	Selected
2	6.000	0.178	26.208	94.832	1.000	
3	6.000	0.196	16.450	93.116	1.000	
4	6.000	0.165	25.726	94.407	1.000	
5	6.000	0.191	24.304	94.472	1.000	
6	6.000	0.173	15.726	93.088	1.000	
7	6.000	0.162	18.843	93.186	1.000	
8	6.000	0.152	22.783	93.253	1.000	
9	6.000	0.178	25.172	94.673	1.000	
10	6.000	0.190	14.674	92.965	1.000	
11	6.000	0.162	22.100	93.728	1.000	
12	6.000	0.223	27.196	93.218	1.000	
13	6.000	0.186	15.878	93.209	1.000	
14	6.000	0.159	21.255	93.423	1.000	
15	6.000	0.207	27.481	94.413	1.000	
16	6.000	0.188	15.534	93.135	1.000	
17	6.000	0.199	27.941	94.831	1.000	
18	6.000	0.207	25.072	94.014	1.000	
19	6.000	0.194	26.840	94.812	1.000	
20	6.000	0.195	16.343	93.117	1.000	
21	6.000	0.158	26.747	94.272	1.000	
22	6.000	0.169	15.563	92.963	1.000	
23	6.000	0.160	17.742	92.949	1.000	
24	6.000	0.191	20.330	93.849	1.000	
25	6.000	0.220	25.848	93.189	1.000	
26	6.000	0.190	17.618	93.431	1.000	
27	6.000	0.168	19.412	93.545	1.000	
28	6.000	0.138	29.320	93.112	1.000	
29	6.000	0.197	20.761	93.764	1.000	
30	6.000	0.186	16.189	93.255	1.000	
31	6.000	0.210	27.177	94.175	1.000	
32	6.000	0.202	22.784	93.894	1.000	
33	6.000	0.217	24.121	93.188	1.000	
34	6.000	0.147	28.532	93.805	1.000	
35	6.000	0.175	14.468	92.921	1.000	
36	6.000	0.140	27.846	93.025	1.000	
37	6.000	0.177	27.689	95.058	1.000	
38	6.000	0.188	11.712	92.522	0.997	
39	6.000	0.186	10.938	92.423	0.997	
40	6.000	0.183	10.825	92.417	0.997	
41	6.000	0.246	14.799	88.508	0.970	
42	6.000	0.101	30.000	87.974	0.966	
43	6.000	0.100	10.000	84.511	0.942	

43 Solutions found

Çizelge EK-C.3 Design Expert programı tarafından önerilen susam küspesi numunesine ait diğer optimum proses koşulları

**Solutions**

<b>Number</b>	<b>pH</b>	<b>Biosorbent miktarı (g) t (dak)</b>	<b>% Adsorpsiyon</b>	<b>Desirability</b>		
1	4.267	0.163	21.333	96.485	1.000	Selected
2	4.705	0.206	20.823	99.102	1.000	
3	4.637	0.171	23.852	99.384	1.000	
4	4.415	0.182	23.852	99.121	1.000	
5	4.267	0.237	28.667	96.115	1.000	
6	5.733	0.163	28.667	95.621	1.000	
7	5.289	0.114	26.222	99.839	1.000	
8	5.402	0.169	21.605	99.381	1.000	
9	5.600	0.230	22.000	95.412	1.000	
10	4.400	0.194	19.111	97.102	1.000	
11	4.778	0.213	17.889	96.495	1.000	
12	5.839	0.123	21.342	95.946	1.000	
13	5.827	0.169	16.881	99.806	1.000	
14	4.562	0.212	17.497	95.779	1.000	
15	5.509	0.217	26.865	96.174	1.000	
16	5.446	0.142	19.062	96.818	1.000	
17	5.623	0.197	19.859	97.339	1.000	
18	4.393	0.243	19.961	95.993	1.000	
19	4.225	0.186	25.340	97.344	1.000	
20	5.515	0.144	19.768	96.391	1.000	
21	4.431	0.239	21.810	96.457	1.000	
22	4.726	0.159	27.981	96.391	1.000	
23	5.396	0.204	23.325	97.940	1.000	
24	3.574	0.210	22.523	99.476	1.000	
25	4.259	0.241	24.746	97.540	1.000	
26	5.230	0.195	22.468	99.741	1.000	
27	5.872	0.202	18.599	99.838	1.000	
28	5.468	0.160	17.625	95.417	1.000	
29	5.494	0.236	19.816	99.339	1.000	
30	5.064	0.178	17.503	96.830	1.000	
31	5.400	0.145	19.275	97.220	1.000	
32	5.310	0.126	23.269	96.992	1.000	
33	3.746	0.222	23.168	96.079	1.000	
34	4.074	0.167	26.024	96.071	1.000	
35	4.793	0.216	29.503	96.606	1.000	
36	4.882	0.174	18.959	97.948	1.000	
37	5.619	0.106	21.507	99.414	1.000	
38	5.128	0.174	20.586	99.316	1.000	
39	3.714	0.219	26.278	95.882	0.992	
40	4.619	0.177	18.093	96.501	0.993	
41	4.172	0.161	29.048	99.423	0.994	
42	5.682	0.114	23.017	95.543	0.996	
43	4.187	0.249	19.416	99.571	0.996	

43 Solutions found

Çizelge EK-C.4 Design Expert programı tarafından önerilen aspir küspesi numunesine ait diğer optimum proses koşulları

### Solutions

Number	pH	Biosorbent Miktar (g)	t (dak)	% Adsorpsiyon	Desirability	
1	5.783	0.215	23.194	98.202	1.000	Selected
2	5.901	0.195	24.074	98.221	1.000	
3	5.656	0.171	29.781	97.468	1.000	
4	5.953	0.199	21.014	97.140	1.000	
5	5.978	0.179	23.447	97.369	1.000	
6	6.000	0.150	30.000	99.458	1.000	
7	5.043	0.246	29.617	98.452	1.000	
8	5.684	0.247	21.424	98.841	1.000	
9	5.824	0.184	26.863	98.388	1.000	
10	5.971	0.247	21.016	98.880	1.000	
11	5.880	0.243	17.130	97.482	1.000	
12	6.000	0.250	20.000	100.741	1.000	
13	5.911	0.222	23.538	100.023	1.000	
14	5.941	0.249	16.865	98.297	1.000	
15	6.000	0.216	19.392	97.874	1.000	
16	5.987	0.246	15.086	97.362	1.000	
17	5.954	0.233	16.988	97.311	1.000	
18	5.986	0.190	22.158	97.481	1.000	
19	5.923	0.224	26.839	99.288	1.000	
20	5.989	0.230	16.912	97.279	1.000	
21	5.854	0.155	29.021	97.703	1.000	
22	5.259	0.238	28.486	98.857	1.000	
23	5.998	0.247	14.774	97.368	1.000	
24	5.350	0.217	28.758	97.888	1.000	
25	5.958	0.145	29.542	98.380	1.000	
26	4.917	0.246	29.747	97.529	1.000	
27	5.946	0.240	17.369	97.990	1.000	
28	5.999	0.248	14.927	97.526	1.000	
29	5.164	0.234	29.026	97.952	1.000	
30	5.922	0.163	27.644	98.203	1.000	
31	5.924	0.238	25.425	99.536	1.000	
32	5.927	0.238	18.832	98.561	1.000	
33	5.991	0.227	24.623	98.991	1.000	
34	5.996	0.244	18.186	99.190	1.000	
35	4.891	0.249	29.517	97.497	1.000	
36	5.657	0.209	24.467	97.322	1.000	
37	5.936	0.238	16.845	97.386	1.000	
38	5.798	0.180	28.847	98.980	1.000	
39	5.933	0.202	29.601	99.806	1.000	
40	5.435	0.244	22.302	97.107	1.000	
41	5.997	0.245	14.706	97.114	1.000	
42	6.000	0.100	30.000	95.772	0.978	
43	4.425	0.250	29.999	94.154	0.951	

43 Solutions found

## ÖZGEÇMİŞ

---

### KİŞİSEL BİLGİLER

**Adı Soyadı** : Merve METE  
**Doğum Tarihi ve Yeri** : 25.03.1989 İstanbul  
**Yabancı Dili** : İngilizce  
**E-posta** : engineer\_mete@outlook.com

### ÖĞRENİM DURUMU

Derece	Alan	Okul/Üniversite	Mezuniyet Yılı
Y. Lisans	Kimya Mühendisliği	Yıldız Teknik Üniversitesi	-
Lisans	Kimya Mühendisliği	Beykent Üniversitesi	2012
Lise	Fen	Yedikule Anadolu Lisesi	2007

## **İŞ TECRÜBESİ**

<b>Yıl</b>	<b>Firma/Kurum</b>	<b>Görevi</b>
2014	Kimya ve Sanayi Dergisi	Editör Yardımcısı
2012	Akçansa Çimento Sanayi ve Ticaret. A.Ş.	Stajyer Mühendis
2010	Akçansa Çimento Sanayi ve Ticaret. A.Ş.	Laboratuvar Stajyeri

## **BİLDİRİLER:**

- 1. Özbek B. and Mete M., 2014,** "Removal of Aluminium from Aqueous Solutions using Sesame Seed and Safflower Seed Cakes as Bioadsorbent", *2nd International Conference on Environmental Science and Technology – 2014 (ICOEST'2014 - SIDE)*, Antalya, Turkey, 14-17 May 2014, Abstract Book, pp. 16-17.
- 2. Özbek B. and Mete M., 2014,** "A Study on Aluminium Removal from Aqueous Solutions using Banana and Lemon Peels as Bioadsorbent", *21st International Congress of Chemical and Process Engineering (CHISA 2014)*, 23-27 August 2014, Prague, Czech Technical University, Czech Republic, accepted for presentation.