

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

**MODİFİYE EDİLMİŞ PERLİT VE ZEOLİT İLE AĞIR  
METAL GİDERİM ÇALIŞMALARI**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ**

**Müge YILMAZ**

**Enstitü Anabilim Dalı : ÇEVRE MÜHENDİSLİĞİ**

**Tez Danışmanı : Yrd. Doç. Dr. Asude ATEŞ**

**Ekim 2013**

T.C.  
SAKARYA ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

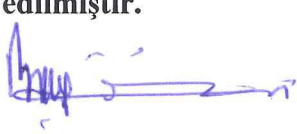
**MODİFİYE EDİLMİŞ PERLİT VE ZEOLİT İLE AĞIR  
METAL GİDERİM ÇALIŞMALARI**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ**

**Müge YILMAZ**

Enstitü Anabilim Dalı : ÇEVRE MÜHENDİSLİĞİ

Bu tez 04 / 10 / 2013 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından Oybirliği ile kabul edilmiştir.



**Prof. Dr.  
Bülent ŞENGÖRÜR  
Jüri Başkanı**



**Yrd. Doç. Dr.  
Asude ATEŞ  
Üye**



**Yrd. Doç. Dr.  
Esra ALTINTIĞ  
Üye**

## TEŞEKKÜR

Benim için oldukça uzun ve zorlu geçen tez çalışmalarımızın her anında yanımda olan, desteğini ve tecrübelerini benden esirgemeyen kıymetli hocam Yrd. Doç. Dr. Asude ATEŞ 'e en derin saygılarımı sunarım.

Yine çalışmalarımız esnasında benimle yakından ilgilenen ve tecrübeleri ile yönlendiren değerli hocam Yrd. Doç. Dr. Esra ALTINTIĞ 'a teşekkür ederim.

Laboratuvar çalışmalarım boyunca yanımda olan, benimle birlikte emek harcayan Öğr. Gör. Hülya SEMERCİOĞLU'na, çalışmalarımın değerlendirme ve yazım aşamasında sükûnetle ve büyük bir özveriyle yardımlarını esirgemeyen arkadaşlarım Çevre Yük. Mühendisi Şevhan SAYAR ve Makina Mühendisi Sefer Volkan KUBİLAY 'a teşekkür ederim.

Bu yola çıkmamın en büyük nedeni olan ve her aşamada benimle birlikte yol alan kıymetli aileme desteklerinden ötürü teşekkür ederim. Yüksek lisans tezim hayatımda benim için en önemli rol model olan annem Havva YILMAZ'a atfedilmiştir.

## İÇİNDEKİLER

|   |      |
|---|------|
| TEŞEKKÜR .....  | ii   |
| İÇİNDEKİLER .....                                     | iii  |
| SİMGELER LİSTESİ .....                                | v    |
| KISALTMALAR LİSTESİ .....                             | vi   |
| ŞEKİLLER LİSTESİ .....                                | vii  |
| TABLolar LİSTESİ .....                                | x    |
| ÖZET .....  | xii  |
| SUMMARY .....   | xiii |
| BÖLÜM 1.  |      |
| GİRİŞ .....   | 1    |
| BÖLÜM 2.  |      |
| MATERYAL METOT .....                                  | 4    |
| 2.1. Kullanılan Materyaller Ve Maddeler .....         | 4    |
| BÖLÜM 3.  |      |
| DENEYSEL ÇALIŞMALAR .....                             | 7    |
| 3.1. Doz değişimi etkisinin incelenmesi .....         | 8    |
| 3.1.1. Bakır doz değişim sonuçları .....              | 8    |
| 3.1.2. Kurşun doz değişim sonuçları .....             | 10   |
| 3.1.3. Çinko doz değişim sonuçları .....              | 11   |
| 3.2. Karıştırma Süresinin Etkisinin İncelenmesi ..... | 13   |
| 3.2.1. Bakır için karıştırma süresinin etkisi .....   | 13   |
| 3.2.2. Kurşun için karıştırma süresinin etkisi .....  | 15   |
| 3.2.3. Çinko için karıştırma süresinin etkisi .....   | 17   |
| 3.3. pH Etkisinin İncelenmesi .....                   | 19   |

|   |    |
|---|----|
| 3.3.1. Bakır çözeltilisinde pH etkisi .....   | 20 |
| 3.3.2. Kurşun çözeltilisinde pH etkisi .....  | 21 |
| 3.3.3. Çinko çözeltilisinde pH etkisi .....   | 23 |
| 3.4. Deneysel Verilerin Denge İzotermine Uygulanması .....  | 25 |
| 3.4.1. Langmuir İzotermi .....  | 25 |
| 3.4.2. Freundlich İzotermi .....  | 26 |
| 3.4.3. Lineer İzoterm .....   | 26 |
| 3.4.4. Branauer- Emet- Teller (BET) İzotermi .....  | 26 |
| 3.4.5. Temkin İzotermi .....  | 27 |
| 3.4.6. Dubinin-Radushkevich İzotermi .....  | 27 |
| 3.5. Deneysel Verilerin Denge İzotermine (Langmuir ve Freundlich)<br>Uygulanması .....                      | 28 |
| 3.5.1. Bakır iyonu adsorpsiyonunda Derişim sonuçlarının Langmuir İzoterm<br>Eşitliğine uygulanması .....    | 28 |
| 3.5.2. Bakır iyonu adsorpsiyonunda Derişim sonuçlarının Freundlich İzoterm<br>eşitliğine uygulanması .....  | 30 |
| 3.5.3. Kurşun iyonu adsorpsiyonunda Derişim sonuçlarının Langmuir İzoterm<br>eşitliğine uygulanması .....   | 33 |
| 3.5.4. Kurşun iyonu adsorpsiyonunda Derişim sonuçlarının Freundlich<br>İzoterm eşitliğine uygulanması ..... | 35 |
| 3.5.5. Çinko iyonu adsorpsiyonunda Derişim sonuçlarının Langmuir İzoterm<br>eşitliğine uygulanması .....    | 37 |
| 3.5.6. Çinko iyonu adsorpsiyonunda Derişim sonuçlarının Freundlich İzoterm<br>eşitliğine uygulanması .....  | 40 |
| 3.6. Freundlich Katsayılarının Hesaplanması .....   | 42 |
| <br>  |    |
| BÖLÜM 4.  |    |
| SONUÇ VE DEĞERLENDİRMELER .....   | 44 |
| <br>  |    |
| KAYNAKLAR .....   | 46 |
| ÖZGEÇMİŞ .....  | 49 |

## SİMGELER LİSTESİ

|               |  |
|---------------|--|
| $C_0$         | : Başlangıçtaki metal iyon konsantrasyonu                        |
| $C_E$         | : Adsorpsiyon sonunda çözültide kalan metal iyon konsantrasyonu  |
| dk            | : Dakika   |
| g             | : Gram   |
| K             | : Denge Sabiti   |
| Kkal          | : Kilo Kalori  |
| $K_L$         | : Langmuir Adsorpsiyon izoterm sabiti                            |
| $K_F$         | : Freundlich Adsorpsiyon izoterm sabiti                          |
| k             | : Freundlich izoterm inde konsantrasyona bağı sabit              |
| K             | : Kelvin   |
| L             | : Litre  |
| Mg            | : Miligram   |
| $\mu\text{m}$ | : Mikrometre   |
| m             | : Metre  |
| $\text{m}^3$  | : Metreküp   |
| n             | : Freundlich izoterm inde konsantrasyona bağı sabit              |
| r             | : Regresyon Katsayısı  |
| ppm           | : miligram/litre   |
| rpm           | : Devir/dakika   |
| %             | : Yüzde  |
| x             | : Langmuir ve Freundlich denklemlerinde adsorplanan iyon miktarı |
| $X_m$         | : Adsorbe olan maddenin maksimum miktarıyla olan sabit           |

## **KISALTMALAR LİSTESİ**

AAS : Atomik Adsorpsiyon Spektro Fotometresi

## ŞEKİLLER LİSTESİ

- Şekil 3.1. Bakır sentetik numunelerinin perlit deneyleri için yedi farklı aktive edilen adsorbent dozuna göre verim grafiği ..... 8
- Şekil 3.2. Bakır sentetik numunelerinin zeolit deneyleri için yedi farklı aktive edilen adsorbent dozuna göre verim grafiği ..... 9
- Şekil 3.3. Bakır sentetik numunelerinin kitosan deneyleri için adsorbent dozuna göre verim grafiği ..... 9
- Şekil 3.4. Kurşun sentetik numunelerinin perlit deneyleri için yedi farklı aktive edilen adsorbent dozuna göre verim grafiği ..... 10
- Şekil 3.5. Kurşun sentetik numunelerinin zeolit deneyleri için yedi farklı aktive edilen adsorbent dozuna göre verim grafiği ..... 10
- Şekil 3.6. Kurşun sentetik numunelerinin kitosan deneyleri için adsorbent dozuna göre verim grafiği ..... 11
- Şekil 3.7. Çinko sentetik numunelerinin perlit deneyleri için yedi farklı aktive edilen adsorbent dozuna göre verim grafiği ..... 12
- Şekil 3.8. Çinko sentetik numunelerinin zeolit deneyleri için yedi farklı aktive edilen adsorbent dozuna göre verim grafiği ..... 12
- Şekil 3.9. Çinko sentetik numunelerinin kitosan deneyleri için adsorbent dozuna göre verim grafiği ..... 13
- Şekil 3.10. Bakır sentetik numunelerinin perlit deneyleri için üç farklı aktive edilen adsorbanda göre karıştırma süresine bağlı olarak verim grafiği ..... 14
- Şekil 3.11. Bakır sentetik numunelerinin zeolit deneyleri için üç farklı aktive edilen adsorbanda göre karıştırma süresine bağlı olarak verim grafiği ..... 14
- Şekil 3.12. Bakır sentetik numunelerinin kitosan deneyleri için karıştırma süresine bağlı olarak verim grafiği ..... 15



|             |  |    |
|-------------|--|----|
| Şekil 3.13. | Kurşun sentetik numunelerinin perlit deneyleri için üç farklı aktive edilen adsorbanda göre karıştırma süresine bağlı olarak verim grafiği ..... | 16 |
| Şekil 3.14. | Kurşun sentetik numunelerinin zeolit deneyleri için üç farklı aktive edilen adsorbanda göre karıştırma süresine bağlı olarak verim grafiği ..... | 16 |
| Şekil 3.15. | Kurşun sentetik numunelerinin kitosan deneyleri için karıştırma süresine bağlı olarak verim grafiği .....  | 17 |
| Şekil 3.16. | Çinko sentetik numunelerinin perlit deneyleri için üç farklı aktive edilen adsorbanda göre karıştırma süresine bağlı olarak verim grafiği .....  | 18 |
| Şekil 3.17. | Çinko sentetik numunelerinin zeolit deneyleri için üç farklı aktive edilen adsorbanda göre karıştırma süresine bağlı olarak verim grafiği .....  | 18 |
| Şekil 3.18. | Çinko sentetik numunelerinin kitosan deneyleri için karıştırma süresine bağlı olarak verim grafiği .....   | 19 |
| Şekil 3.19. | Bakır sentetik numunelerinin perlit ile birlikte üç farklı aktive edilen adsorbanda göre pH değerlerine bağlı olarak verim grafiği .....         | 20 |
| Şekil 3.20. | Bakır sentetik numunelerinin zeolit ile birlikte üç farklı aktive edilen adsorbanda göre pH değerlerine bağlı olarak verim grafiği .....         | 20 |
| Şekil 3.21. | Bakır sentetik numunelerinin kitosan ile aktive edilen adsorbanda göre pH değerlerine bağlı olarak verim grafiği .....                           | 21 |
| Şekil 3.22. | Kurşun sentetik numunelerinin perlit ile üç farklı aktive edilen adsorbente göre pH değerlerine bağlı olarak verim grafiği .....                 | 22 |
| Şekil 3.23. | Kurşun sentetik numunelerinin zeolit ile üç farklı aktive edilen adsorbente göre pH değerlerine bağlı olarak verim grafiği .....                 | 22 |
| Şekil 3.24. | Kurşun sentetik numunelerinin kitosan ile aktive edilen adsorbente göre pH değerlerine bağlı olarak verim grafiği .....                          | 23 |
| Şekil 3.25. | Çinko sentetik numunelerinin perlit ile üç farklı aktive edilen adsorbente göre pH değerlerine bağlı olarak verim grafiği .....                  | 23 |
| Şekil 3.26. | Çinko sentetik numunelerinin zeolit ile üç farklı aktive edilen adsorbente göre pH değerlerine bağlı olarak verim grafiği .....                  | 24 |

|             |  |    |
|-------------|--|----|
| Şekil 3.27. | Çinko sentetik numunelerinin kitosan ile aktive edilen adsorbente göre pH değerlerine bağlı olarak verim grafiği ..... | 24 |
| Şekil 3.28. | Bakır iyonu Perlit deneyleri için Langmuir izotermi grafiği .....  | 28 |
| Şekil 3.29. | Bakır iyonu Zeolit deneyleri için Langmuir izotermi grafiği .....  | 29 |
| Şekil 3.30. | Bakır iyonu için kitosan deneylerinin Langmuir izotermi grafiği .....  | 30 |
| Şekil 3.31. | Bakır iyonu Perlit deneyleri için Freundlich izotermi grafiği.....   | 31 |
| Şekil 3.32. | Bakır iyonu için Freundlich izotermi grafiği .....   | 31 |
| Şekil 3.33. | Bakır iyonu için Kitosan deneylerinin Freundlich izotermi grafiği....  | 32 |
| Şekil 3.34. | Perlit ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Langmuir izotermi grafiği.....  | 33 |
| Şekil 3.35. | Zeolit ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Langmuir izotermi grafiği .....   | 34 |
| Şekil 3.36. | Kitosan ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Langmuir izotermi grafiği .....  | 34 |
| Şekil 3.37. | Perlit ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Freundlich izotermi grafiği .....                                       | 35 |
| Şekil 3.38. | Zeolit ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Freundlich izotermi grafiği .....                                       | 36 |
| Şekil 3.39. | Kitosan ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Freundlich izotermi grafiği .....                                      | 37 |
| Şekil 3.40. | Perlit ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Langmuir izotermi grafiği .....  | 38 |
| Şekil 3.41. | Zeolit ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Langmuir izotermi grafiği.....   | 39 |
| Şekil 3.42. | Kitosan ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Langmuir izotermi grafiği .....   | 39 |
| Şekil 3.43. | Perlit ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Freundlich izotermi grafiği.....   | 40 |
| Şekil 3.44. | Zeolit ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Freundlich izotermi grafiği.....   | 41 |
| Şekil 3.45. | Kitosan ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Freundlich izotermi grafiği .....                                       | 42 |

## TABLULAR LİSTESİ

|             |   |    |
|-------------|---|----|
| Tablo 3.1.  | Perlit ile yapılan bakır iyonu deneyleri için Langmuir eşitliği değerleri .....     | 28 |
| Tablo 3.2.  | Zeolit ile yapılan bakır iyonu deneyleri için Langmuir eşitliği değerleri .....     | 29 |
| Tablo 3.3.  | Kitosan ile yapılan bakır iyonu deneyleri için Langmuir eşitliği değerleri .....    | 29 |
| Tablo 3.4.  | Perlit ile yapılan bakır iyonu deneyleri için Freundlich eşitliği değerleri .....   | 30 |
| Tablo 3.5.  | Zeolit ile yapılan bakır iyonu deneyleri için Freundlich eşitliği değerleri .....   | 31 |
| Tablo 3.6.  | Kitosan ile yapılan bakır iyonu deneyleri için Freundlich eşitliği değerleri .....  | 32 |
| Tablo 3.7.  | Perlit ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Langmuir eşitliği değerleri .....    | 33 |
| Tablo 3.8.  | Zeolit ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Langmuir eşitliği değerleri .....    | 33 |
| Tablo 3.9.  | Kitosan ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Langmuir eşitliği değerleri .....   | 34 |
| Tablo 3.10. | Perlit ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Freundlich eşitliği değerleri .....  | 35 |
| Tablo 3.11. | Zeolit ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Freundlich eşitliği değerleri .....  | 36 |
| Tablo 3.12. | Kitosan ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Freundlich eşitliği değerleri ..... | 36 |
| Tablo 3.13. | Perlit ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Langmuir eşitliği değerleri .....     | 38 |

|             |  |    |
|-------------|--|----|
| Tablo 3.14. | Zeolit ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Langmuir eşitliği değerleri .....    | 38 |
| Tablo 3.15. | Kitosan ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Langmuir eşitliği değerleri .....   | 39 |
| Tablo 3.16. | Perlit ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Freundlich eşitliği değerleri .....  | 40 |
| Tablo 3.17. | Zeolit ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Freundlich eşitliği değerleri .....  | 41 |
| Tablo 3.18. | Kitosan ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Freundlich eşitliği değerleri ..... | 41 |
| Tablo 3.19. | Freundlich sabitleri ve regresyon katsayıları .....                                | 42 |

## ÖZET

Anahtar kelimeler: Atıksu, Adsorpsiyon, Ağır Metal, Perlit, Zeolit, Kitosan

Bu çalışmada, atık sularda sıkça rastlanan ağır metallerin doğal maddeler ile adsorpsiyonları incelenmiştir. Otomotiv sanayii atık sularında sıkça rastlanan ağır metaller arasında  $Cd^{+2}$ ,  $Pb^{+2}$ ,  $Zn^{+2}$  bileşikleri başta gelmektedir. Atık sulardan ağır metallerin giderilmesinde adsorpsiyon ile çeşitli giderim yöntemleri dünyada yaygın olarak kullanılmaktadır. Adsorpsiyon ile giderim metodu en ekonomik giderim yöntemlerinden biridir ve giderim yüzdesi olarak yüksek başarı oranları sağlamaktadır. Laboratuvar ortamında gerçekleştirilen deneysel çalışmaların, otomotiv sanayisine ait atık sular üzerinde yapılacak modelleme çalışmalarına ışık tutması beklenmektedir. Sonuç olarak tavsiye edilen atık sulardan ağır metal giderimi için doğal maddeler ile adsorpsiyon yönteminin diğer yöntemlere göre daha ekonomik ve daha başarılı olduğudur.

# **REMOVAL STUDIES OF HEAVY METAL WITH MODIFIED PERLITE AND ZEOLITE**

## **SUMMARY**

Key Words: Wastewater, Adsorption, Heavy Metals, Perlite, Zeolite, Chitosan

In this study, adsorption of the common heavy metals in the waste water with natural substances.  $Cd^{+2}$ ,  $Pb^{+2}$ ,  $Zn^{+2}$  heavy metals are foremost which are common in waste waters of automotive industry. Several adsorption methods commonly used in the world for removing of heavy metals in waste waters. Adsorption method is one of the economic removing methods and has a great success rate. In the laboratory of the performed experimental studies, the automotive industry to belong to the waste waters will be held on the modeling light is expected. As a result, the recommended waste water of heavy metal removal with natural ingredients adsorption method compared to other methods, more economical and more successful it is.

## BÖLÜM 1. GİRİŞ

Tarih öncesi zamanlara kadar dayanan ağır metal kullanımı, günümüzde kültür sanattan endüstriyel kuruluşlara kadar pek çok alanda kullanılmaya yaygın olarak devam etmektedir. Gelişmiş ve gelişmekte olan ülkelerin endüstrilerinde pek çok alanda kullanılan ağır metaller önemli çevresel sorunlara neden olmaktadır. Ağır metallerin doğada uzun yıllar bozunmadan kalabilmeleri ve biyolojik olarak birikme özellikleri canlılar üzerinde ciddi oranda toksisite yaratmaktadır. Ağır metal giderimi bu nedenle büyük önem taşımaktadır.

Ağır metal kirliliği yüzey suları ve yer altı suları için en büyük kirleticilerdir. Atık sularda kirlilik oluşturan ağır metaller arasında sıkça rastlananlar  $Cd^{+2}$ ,  $Pb^{+2}$ ,  $Zn^{+2}$  ağır metalleridir [1-5]. Ağır metal giderimi için kullanılan pek çok yöntem bulunmaktadır. Bu tip kirletici parametrelerin giderilmesinde kullanılan en önemli metot adsorpsiyon ile giderim yöntemidir. Adsorpsiyon yönteminin tercih edilmesindeki sebep ekonomik olarak uygunluğu ve yüksek giderim verimidir [6-7].

Adsorpsiyon bir maddenin başka maddeleri yüzeyine bağlayarak tutması olayıdır. Fiziksel adsorpsiyon, kimyasal adsorpsiyon, değişim adsorpsiyonu olmak üzere üç çeşidi vardır. Fiziksel adsorpsiyonda taneciğin üzerine adsorbe olan moleküller fiziksel kuvvetlerle yüzeye bağlı olup birden fazla tabaka oluşturabilirler. Kimyasal adsorpsiyonda ise tanecik ile adsorbe olan molekül arasında kimyasal bağlar olmuştur. Kimyasal adsorpsiyon tek tabakadır. Atık suda ki maddelerin adsorpsiyonu maddelerin adsorpsiyonu aşağıdaki reaksiyona göre olur;

Atık su+ Adsorban Madde → Arıtılmış Su + Kirlenen Adsorban Madde [8]

Adsorpsiyon yönteminde çeşitli kimyasallar kullanılmaktadır. Bunlara örnek olarak alümina, silika jel, aktif karbon sayılabilir. Bununla birlikte son yıllarda adsorbent madde olarak doğal maddelerin kullanımı yaygın hale gelmiştir [9].

Ağır metallerin insan sağlığı üzerinde yararlı ya da zararlı olmasını vücuda alınan miktar belirlemektedir. Bazı ağır metallerin vücutta bulunması yaşamsal faaliyetlerin sürdürülmesi için gerekli iken bazılarının az miktarda dahi alınması toksik etki yaratmaktadır. Örneğin bakır elementinin insan bedeninde saç, kemik, deri gibi dokularda, insanlarda ve hayvanlarda kan hücreleri reaksiyonları için yapı taşı niteliğinde olduğu bilinmektedir [10-11]. Bakır elementinin insan bedenine giriş şekli çoğunlukla oral yolla olmaktadır ince ve kalınbağırsaktan emilimi gerçekleşmektedir [12-13]. Günlük olarak vücuda giren bakırın %50-80'i emilirken, emilen miktarın %15'i dokulara gönderilir, %85'i safra ve ter ile vücuttan atılmaktadır. Kurşun elementinin insanlar tarafından kullanım tarihi çok eski yıllara dayanmaktadır [14]. Bakırın insan bedenindeki dengesinin bozulması veya aşırı miktarda alınması zehirlenme ve buna balı olarak çeşitli hastalıklara neden olmaktadır [12]. Kurşun bileşikleri kozmetik, gıda, boya sektörleri ve süs eşyalarının üretiminde oldukça yaygın olarak kullanılmıştır [15-17]. Kurşun element olarak; levha, tel imalatı ve kablo imalatı ile yapı kaplama malzemelerinden, bileşik halde ise boya imalatında, patlayıcı fitili üretiminde, kauçuk sanayinde kullanılmasından ötürü yaygın olarak doğaya zararlı halde salınmaktadır [18-19].

Kurşun oldukça küçük yapıda bir materyal olması sebebiyle solunum yolu ile çok rahat bir şekilde solunum sistemine geçer ve yerleşir [20]. Eser miktarda vücuda alınan kurşun ve bileşiklerinin zararsız olduğu kanısı, yapılan çalışmalar ile terk edilmiştir. Anemi, snaptik performans sonucu metabolizmanın bozulması ve neticesinde zekâda ve hafızada meydana gelen olumsuzluklar, kalp, böbrek ve karaciğer rahatsızlıkları kurşunun başlıca etkileridir [21-22].

Çinko ağır metaller içerisinde toksisitesi en düşük olan elementtir. Tüketim açısından ise demir ve alüminyumun ardından gelmektedir. Metal sanayinde korozyona karşı koruyucu madde olarak, otomotiv sektöründe, ilaç sanayinde kullanılmaktadır.



Bununla birlikte günlük kullanım için üretilen vitamin ve ilaçların ana maddelerindedir [23]. Çinko bakır gibi en yoğun olarak karaciğerde birikir.

Son zamanlarda adsorpsiyon ile giderim çalışmalarında artan bir oranla doğal maddelere yer verilmektedir. Doğal maddeler düşük maliyetler ve kolaylıkla modifiye edilebildikleri için tercih edilmektedirler. Bunun yanı sıra pek çok bölgede kolaylıkla bulunabilirler [24-28].

Bu çalışmada endüstriyel kaynaklı atık sulara sık rastlanan  $Cu^{+2}$ ,  $Zn^{+2}$  ve  $Pb^{+2}$  ağır metallerinin doğal malzemeler ile giderilmesi üzerine çalışma yapılmıştır.

M. KARABOYACI kobalt ve kurşun metallerinin modifiye edilmiş doğal madde ile giderimi üzerine deneysel çalışmalar gerçekleştirmiştir [29-30].

Laura M. PLUM ve arkadaşları çinko metalinin insan vücudundaki etkileri üzerine çalışmalar yapmışlar ve çinkonun yaralı ve zararlı etkilerinden bahsetmişlerdir [31]. A. S. PRASAD ve arkadaşları çinkonun antioksidan özellikleri üzerine yaptıkları çalışmada insan vücudunda meydana getirdiği zararlardan bahsetmişlerdir. Bunlar başlıca; büyüme bozukluğu, bağışıklık sisteminde gerileme ve bilişsel bozukluklar, kronik karaciğer ve böbrek hastalıklarıdır [32].

Hatice KARAER bazik boyar maddelerin adsorpsiyonu üzerine yaptığı çalışmada modifiye edilmiş kitosan ile sulu çözeltiler üzerinde giderim çalışmaları gerçekleştirmiştir [33].

B. Cansever ERDOĞAN doğal ve çeşitli şekillerde modifiye edilmiş zeolitler ile Cr ağır metallerinin giderimi üzerine çalışma yapmıştır [34]. Okan DUMAN çinko ve kurşun ağır metallerinin adsorpsiyonu için doğal nano killerden faydalanmıştır. Giderim verimlerini incelemiştir [35].

Sinan M. TURP çinko ve kurşun giderim çalışmaları için modifiye edilmiş perlit ve zeolit ile adsorpsiyon çalışmaları gerçekleştirmiştir [23].

## **BÖLÜM 2. MATERYAL METOT**

### **2.1. Kullanılan Materyaller Ve Maddeler**

Deney sonuçlarını ölçmek için atomik adsorpsiyon spektrofotometresi kullanılmıştır. Atomik absorpsiyon spektrometri (AAS), elementlerin derişimlerini ölçen bir tekli element tekniğidir. Temel durum atomları hava/asetilen veya azot-oksit/asetilen alevi ile üretilmektedir. Ölçülen elemente özel kullanılan oyuklu katot lambasından yayılan ışınım mevcut alevden geçirilerek parçalı katı hal detektör tarafından ölçülür. Analizi yapılacak örnek aleve gönderilir, örneğin içinde ilgili element mevcutsa, lambadan gelen ışınımın absorplar ve böylece ışınımın şiddeti azalır. Absorplanan ışınım miktarı örneğin içinde bulunan elementin derişimiyle doğrudan bağlantılıdır.

Deney çalışmaları sırasında pH ölçü kağıtları, Wisester MSH-20A marka magnetik karıştırıcılar, Presica XB 220A marka hassas terazi ve Nüve NS112 marka saf su cihazı kullanılmıştır.

Bu çalışmada adsorbant olarak doğal yapıdaki perlit ile zeolit adsorbantları kullanılmıştır. Perlit volkanik bir kayaç türüdür ve yapısı erimiş sodyum, potasyum, alüminyum silikat ve %3-5 oranında su olarak tanımlanabilir. Perlit genellikle kimyasal olarak inerttir ve pH'ı yaklaşık olarak 7 civarındadır [36].Perlit yapısında sülfat, ağır metal, organik madde ve radyoaktif elementler bulundurmadığı için oldukça saf yapılıdır. İnşaat sektöründe yalıtım malzemesi, tarım sektöründe toprağın nem ve besi maddesi oranını artırıcı malzeme, gıda ve ilaç sanayinde filtrasyon malzemesi olarak yüksek oranlarda kullanılmaktadır. Perlit, dünya üzerinde ABD, Türkiye, Yunanistan, Japonya ve Güney Afrika bölgelerinde zengin rezervlere sahiptir. Ülkemizde ise en yoğun olarak Kars, Bitlis ve Çankırı yörelerinde perlit rezervlerine rastlanmaktadır [23]. Bu çalışmada ülkemizde de bol miktarda mevcut olan perlit kullanılmıştır.

Zeolit doğal ve kolay uyarlanabilir yapısı nedeniyle son zamanlarda bilim adamlarının sıkça tercih ettiği adsorpsiyon materyallerinden olmuştur. Zeolitlerin lamel yapılı sınıfına ve yüksek slika oranına sahip olan türü klinoptilolit olarak adlandırılmaktadır [36]. Klinoptilolit, modernit, şabazit gibi türleri ticari olarak yaygın bir şekilde kullanılmaktadır [37]. Yapılan bilimsel çalışmalar ağır metal gideriminde zeolitin kullanımının başarısını göstermiştir [9]. Detaylı çalışmalar neticesinde ülkemizde oldukça zengin zeolit rezervleri olduğu tespit edilmiştir. Rezervler yoğun olarak Gördes, Bigadiç, Emet, Kırka ve Karamürsel yörelerinde bulunmaktadır [38]. Bu çalışmada zeolit adsorban olarak kullanılmıştır.

Deney çalışmalarında aktifleştirici madde olarak kitosan kullanılmıştır.

Kitosan; Kitinin deasetilasyonu ile elde edilen kitosan organik asit çözeltilerinde kolayca çözünebilir ve jel, boncuk ve film formlarında kolayca üretilebilir. Bilindiği gibi kitin doğada selülozdan sonra gelen en verimli polimerdir. Kitin kabuklu midyelerden, yengeçlerden, böceklerden çıkarılabilmektedir [39]. Kitosanın moleküler ağırlığı ve asetilasyon derecesi fiziksel ve kimyasal özelliklerini etkileyen ana parametrelerdir [40]. Kitosan tıpta, ilaç sanayi, tekstil sanayi, tarım ve arıtma sektöründe yaygın olarak kullanılmaktadır. Yapılan çalışmalar ile kullanım alanı genişletilmeye çalışılmaktadır [33]. Kitin ve kitosan üretimi günümüzde özellikle Oregon, Washington, Virginia, Japonya ve Antarktika'daki kabuklu deniz hayvanlarından üretilen konserve endüstrisine bağımlı olarak gerçekleştirilmektedir. Bu konuda özellikle Norveç, Meksika ve Şili gibi ülkeler de çalışmalar gerçekleştirmektedir.

Perlit ile zeolitin kitosan kaplı formları ile sadece yüzey alanlarının genişletilmiş formlarının adsorpsiyon başarılarını görmek adına oksalik asit ile işlem görmüş perlit ve zeolit deneyleri de yapılmıştır.

Deneysel çalışmanın amacı perlitin ve zeolitin modifiye edilmiş şekillerinin ağır metal giderimi üzerine etkisini tespit etmektir. Bu çalışmada gram değişimini görmek

adına beş farklı gramajda çalışma yapılmıştır. Konsantrasyonun giderimdeki etkisini anlamak adına 20-200 ppm aralığında ve bununla birlikte karıştırma süresinin giderim verimi üzerindeki etkisini anlamak için 15-120 dakika aralığında deneyler tekrarlanmıştır.

Ağır metal giderimin de en önemli etken pH miktarıdır. Bu yüzden yapılan çalışmaların farklı pH 'lar da ki verimini bulmak adına pH3-9 aralığında çalışılmıştır.

### **BÖLÜM 3. DENEYSEL ÇALIŞMALAR**

Deneysel çalışmalarda kullanılmak üzere hazırlanan standart çözeltilerde; klinoptilolitin ağır metal iyonlarının adsorpsiyonuna nasıl etki ettiğini görmek üzere doz değişimleri, pH değişimleri, karıştırma süreleri, gibi faktörler incelenmiş ve en iyi verim sağlayan deneyler adsorpsiyon parametrelerinin belirlenmesinde yararlanmak üzere çalışılmıştır.

Standart çözeltiler hazırlanırken ilk aşamada perlit ve zeolit ön işlem olarak distile su ile bolca yıkanarak pH5'ı olacak şekilde işlenmiştir ve daha sonra etüvde kurutulmuştur. Kurutulan malzemeler oksalik asit çözeltisinde yaklaşık 4 saat kadar karıştırılmıştır. Karışma işleminin ardından tekrar etüvde kurutma işlemi uygulanmıştır.

Kitosanın deneylerde kullanılmak üzere jel kıvamına getirilmesi için oksalik asit çözeltisinde manyetik karıştırıcılar ile yine 4 saatlik bir karıştırma işlemi uygulanmıştır. Bu işlemin ardından jel kıvamındaki kitosan çözeltisi Na(OH) çözeltisi üzerine damlatma yöntemi ile yavaş yavaş eklenerek ipliksi yapıda bir madde elde edilmiştir. Uygulanan işlemler sonunda etüvde kurutma işlemi gerçekleştirilmiştir.

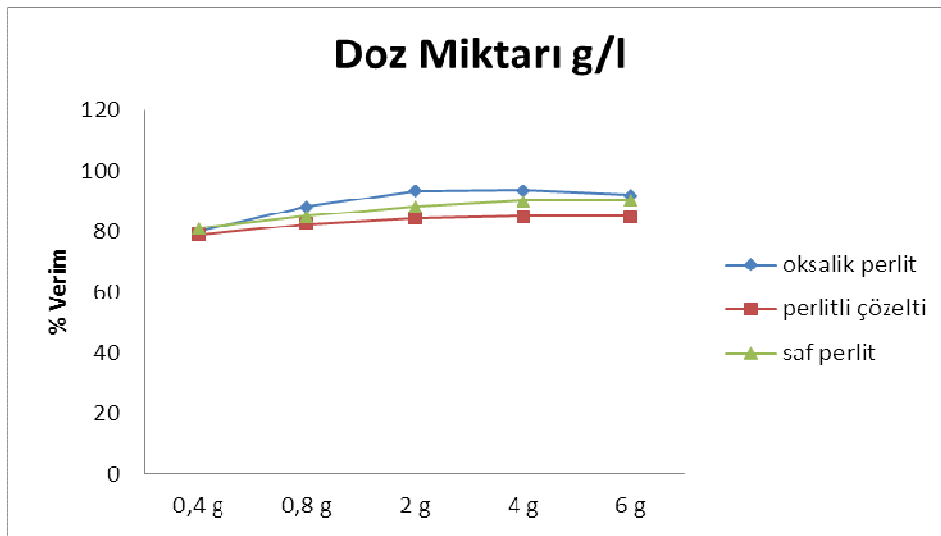
$Cu^{+2}$ ,  $Pb^{+2}$  ve  $Zn^{+2}$  ağır metalleri ile laboratuvar ortamında hazırlanan çözeltiler için beş farklı gramajda, dört farklı sürede oda sıcaklığında adsorpsiyon yöntemi ile giderim çalışmaları yapılmıştır. Deney sonuçları ICP ile incelenerek çıkan sonuçlar neticesinde adsorpsiyon giderim verimleri gözlemlenmeye çalışılmıştır.

### 3.1. Doz Değişimi Etkisinin İncelenmesi

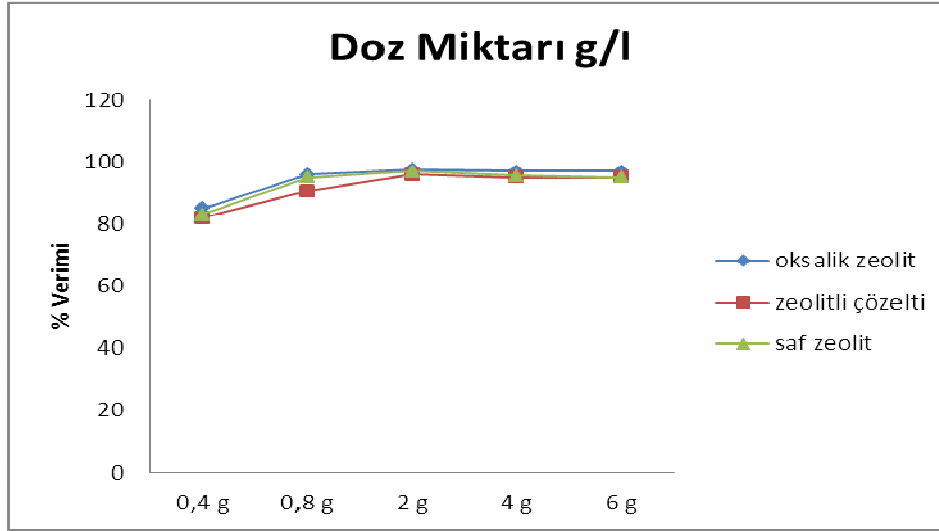
Seçilen ve otomotiv endüstrisi atık sularında problem oluşturan üç farklı ağır metalin farklı dozlarda kesikli deneyleri yapılmış, doz deneylerinde otomotiv atık suyunda genelde bulunma miktarı olarak derişim 100 mg/L olacak şekilde belirlenmiştir.

#### 3.1.1. Bakır doz deęişim sonuçları

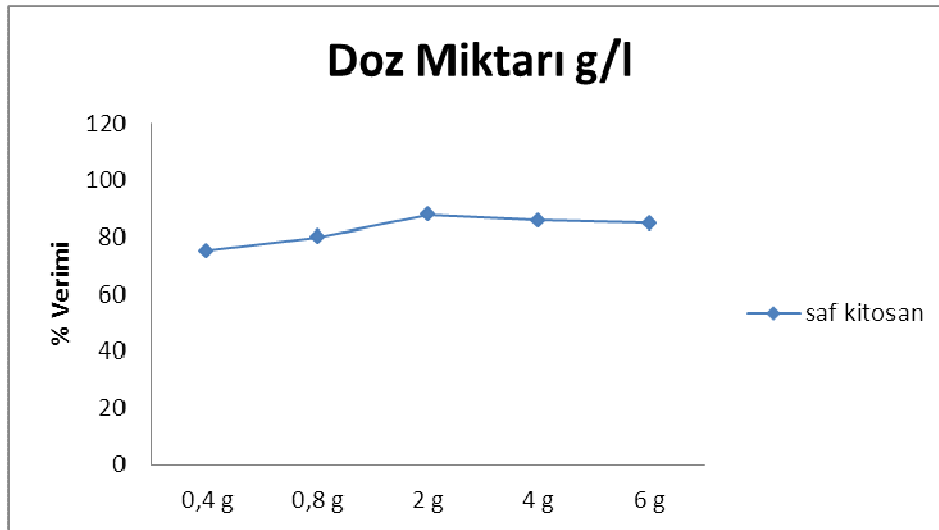
Bakır(II) iyonunun adsorpsiyonuna doz deęişiminin etkisini incelemek üzere derişim 100 mg/L, pH 7, klinoptilolit, perlit ve kitosan dozu 250 mL için 0,1-0,2-0,5-1-1,5 g olarak belirlenmiştir. 293 K sıcaklıkta ve 200 rpm hızda 60 dakika karıştırma yapılarak deney sonuçları elde edilmiştir. Deney sonunda AAS cihazı ile analiz edilmiştir.



Şekil 3.1. Bakır sentetik numunelerinin perlit deneyleri için beş farklı aktive edilen adsorbent dozuna göre verim grafięi



Şekil 3.2. Bakır sentetik numunelerinin zeolit deneyleri için beş farklı aktive edilen adsorbent dozuna göre verim grafiği

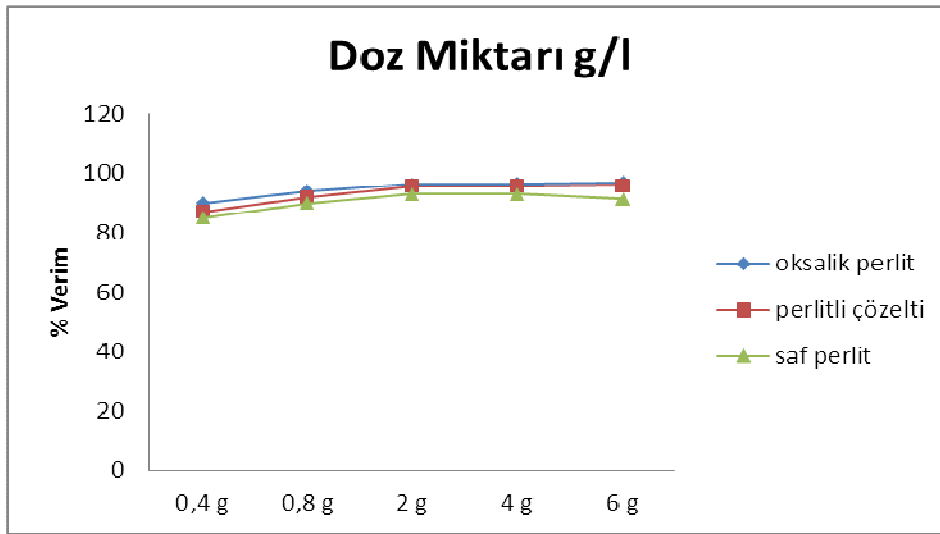


Şekil 3.3. Bakır sentetik numunelerinin kitosan deneyleri için adsorbent dozuna göre verim grafiği

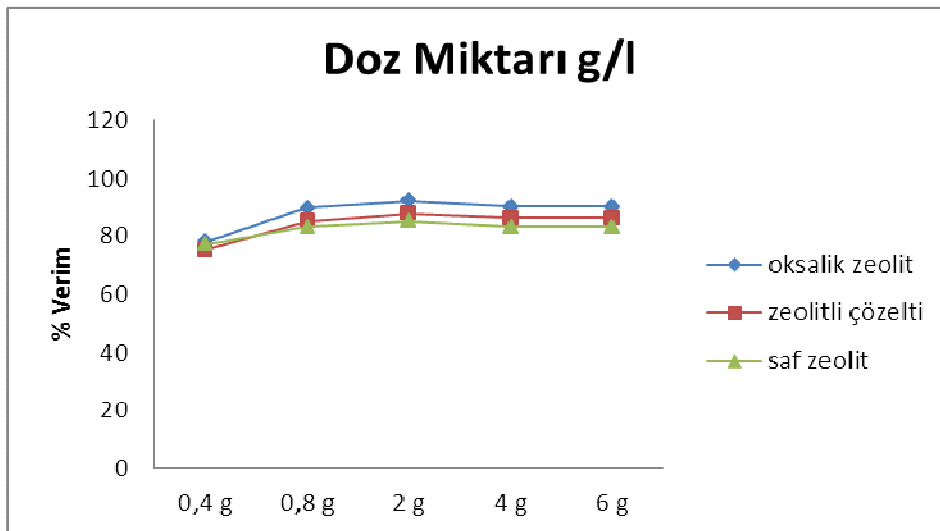
Grafiklerden de görüldüğü üzere en uygun doz oranının 2 g/L olduğu sonucuna varılmış ve diğer analizlerde doz miktarı olarak bu değere karar verilmiştir. Verim olarak A tipi aktive edilmiş perlitin (oksalik perlit) ve klinoptilolit (oksalik zeolit) en uygun seçim olduğuna karar verilmiştir.

### 3.1.2. Kurşun doz deęişim sonuçları

Kurşun (II) iyonunun adsorpsiyonuna doz deęişiminin etkisini incelemek üzere derişim 100 mg/L, pH: 7, perlit, klinoptilolit ve kitosan dozu 250 mL için 0,1-0,2-0,5-1-1,5 g olmak üzere belirlenmiş, 293 K sıcaklıkta ve 200 rpm hızda 60 dakika karıştırma yapılarak deney sonuçları elde edilmiştir.

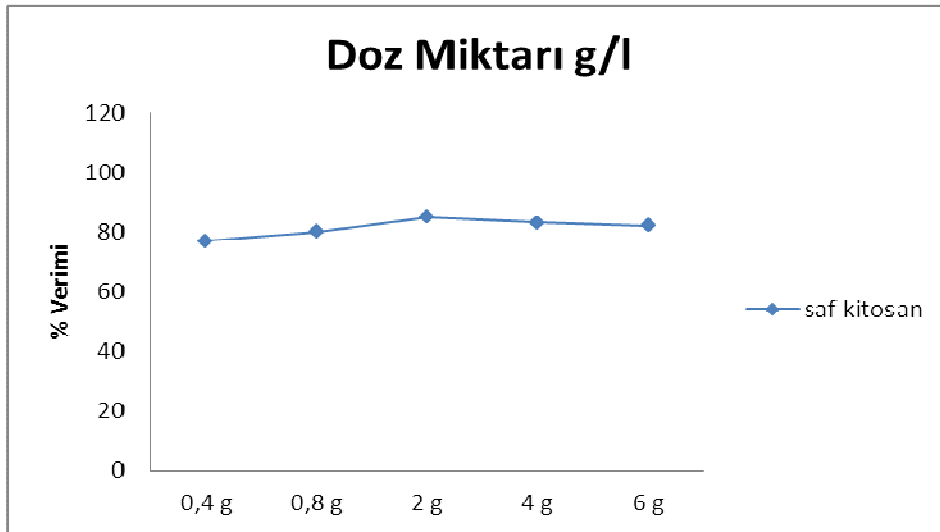


Şekil 3.4. Kurşun sentetik numunelerinin perlit deneyleri için beş farklı aktive edilen adsorbent dozuna göre verim grafięi



Şekil 3.5. Kurşun sentetik numunelerinin zeolit deneyleri için beş farklı aktive edilen adsorbent dozuna göre verim grafięi



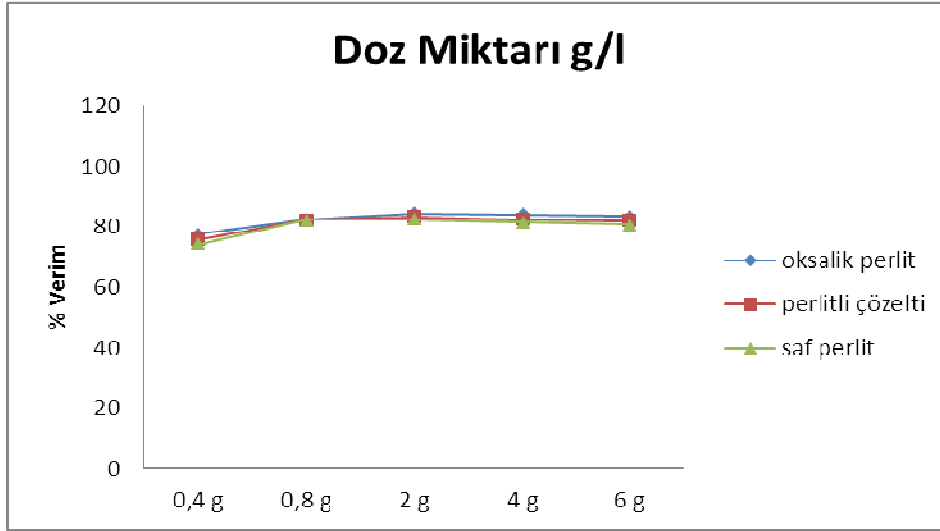


Şekil 3.6. Kurşun sentetik numunelerinin kitosan deneyleri için adsorbent dozuna göre verim grafiği

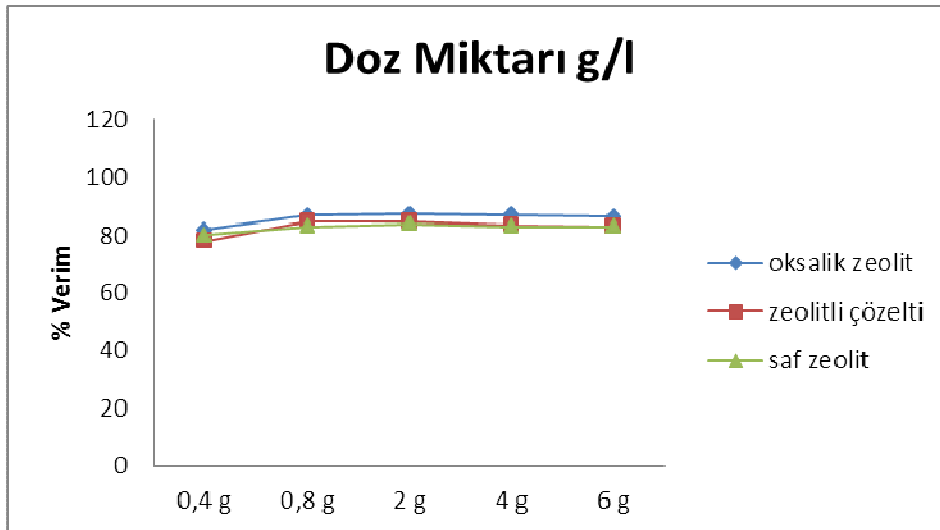
Grafiklerden de görüldüğü üzere en uygun doz oranının her üç madde türü için 2 g/L olduğu sonucuna varılmış ve diğer analizlerde doz miktarı olarak bu değere karar verilmiştir. Verim olarak A tipi aktive edilmiş perlitin (oksalik perlit) ve klinoptilolitin (oksalik zeolit) en uygun seçim olduğuna karar verilmiştir.

### 3.1.3. Çinko doz değişim sonuçları

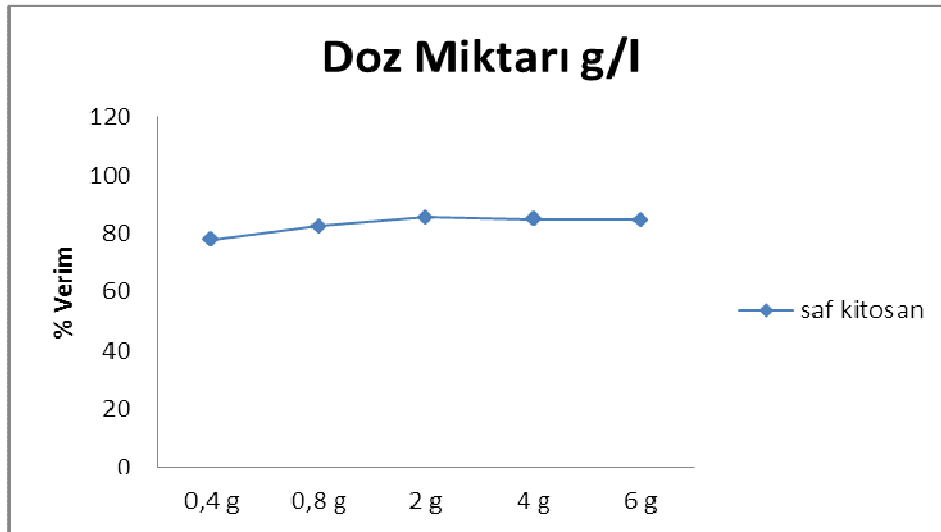
Çinko (II) iyonunun adsorpsiyonuna doz değişiminin etkisini incelemek üzere derişim 100 mg / L, pH : 7, perlit, klinoptilolit ve kitosan dozu 250 mL için 0,1-0,2-0,5-1-1,5 g olmak üzere belirlenmiş, 293 K sıcaklıkta ve 100 rpm hızda 60 dakika karıştırma yapılarak deney sonuçları elde edilmiştir.



Şekil 3.7. Çinko sentetik numunelerinin perlit deneyleri için beş farklı aktive edilen adsorbent dozuna göre verim grafiği



Şekil 3.8. Çinko sentetik numunelerinin zeolit deneyleri için beş farklı aktive edilen adsorbent dozuna göre verim grafiği



Şekil 3.9. Çinko sentetik numunelerinin kitosan deneyleri için adsorbent dozuna göre verim grafiği

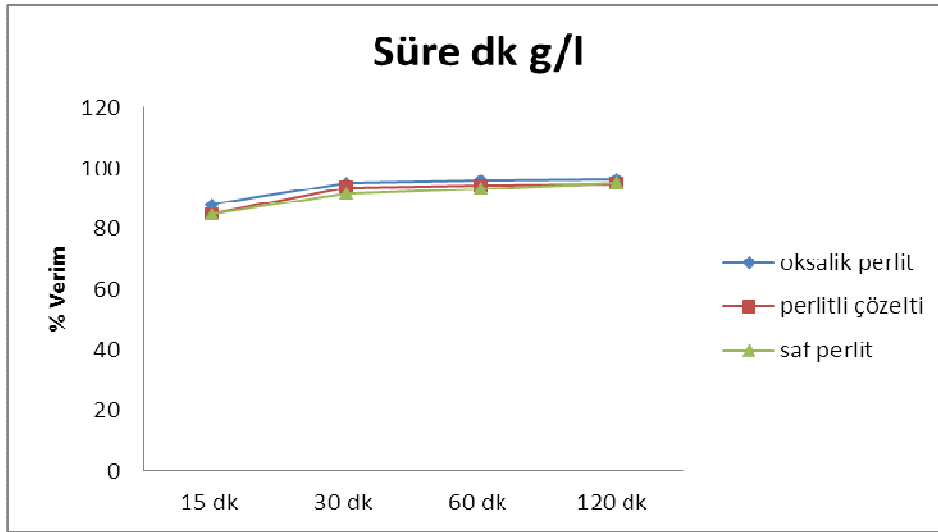
Grafiklerden de görüldüğü üzere en uygun doz oranının 2 g/L olduğu sonucuna varılmış ve diğer analizlerde doz miktarı olarak bu değere karar verilmiştir. Verim olarak A tipi aktive edilmiş perlitin (oksalik perlit) ve klinoptilolit (oksalik zeolit) en uygun seçim olduğuna karar verilmiştir.

### 3.2. Karıştırma Süresinin Etkisinin İncelenmesi

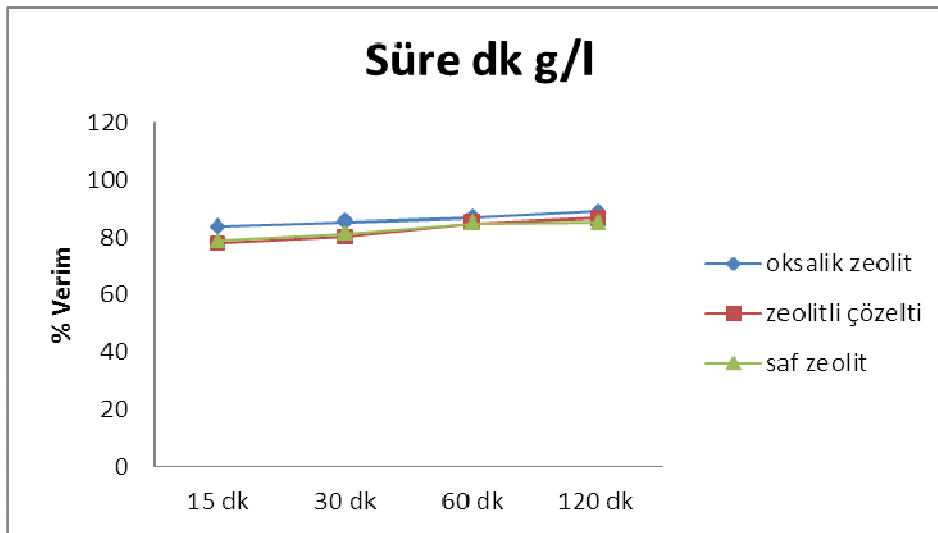
Karıştırma süresinin etkisinin incelenmesi için 15 dakikadan başlamak üzere 15- 120 dakika arasında farklı karıştırma süreleri göz önüne alınmış ve verimi nasıl etkilediği incelenmiştir.

#### 3.2.1. Bakır için karıştırma süresinin etkisi

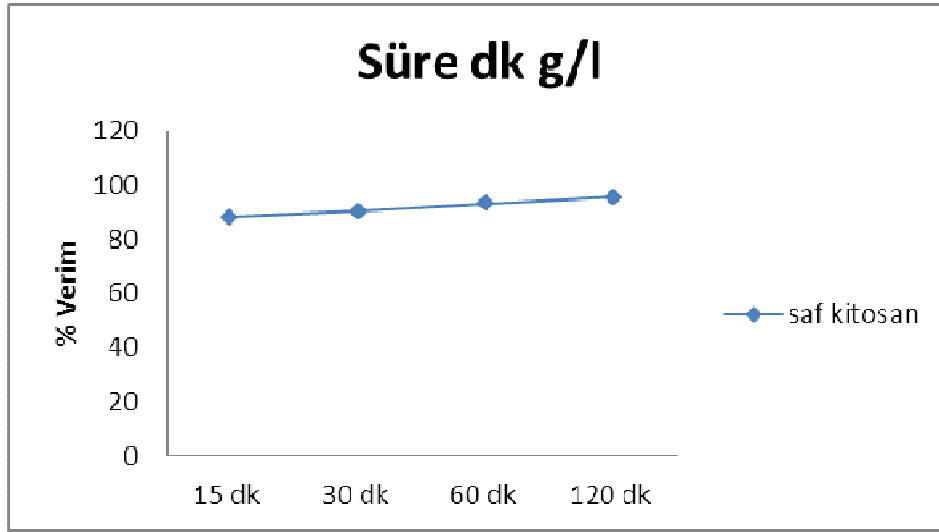
Bakır(II) iyonunun adsorpsiyonuna karıştırma süresinin etkisini incelemek üzere derişim 100 mg / L, pH : 7, perlit, klinoptilolit ve kitosan doz sonuçlarına göre tespit edilen en olumlu doz olarak seçilmiş 2 g/L için üç farklı aktivasyon türünde , 293 K sıcaklıkta ve 200 rpm hızda 15-120 dakika karıştırma yapılarak deney sonuçları elde edilmiştir.



Şekil 3.10. Bakır sentetik numunelerinin perlit deneyleri için üç farklı aktive edilen absorbanda göre karıştırma süresine bağlı olarak verim grafiği



Şekil 3.11. Bakır sentetik numunelerinin zeolit deneyleri için üç farklı aktive edilen absorbanda göre karıştırma süresine bağlı olarak verim grafiği

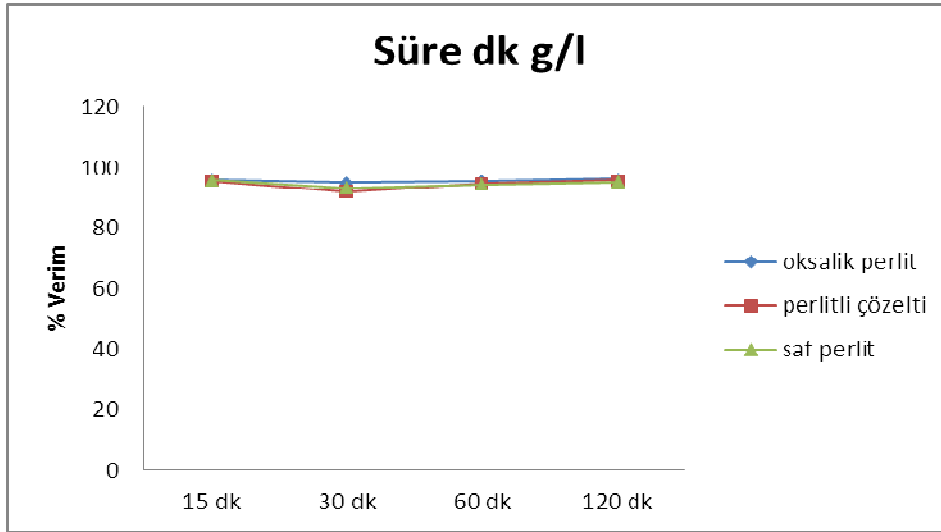


Şekil 3.12. Bakır sentetik numunelerinin kitosan deneyleri için karıştırma süresine bağlı olarak verim grafiği

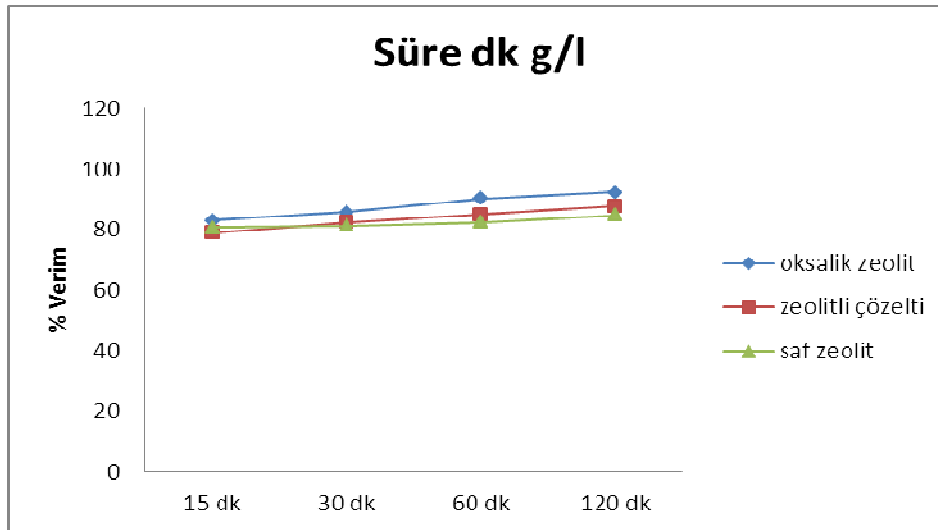
Grafiklere bağlı olarak karıştırma süresi açısından verimler incelendiğinde bakır numuneleri 30 dakikadan sonra bir yükselişe geçmekte ve genellikle 60. dakikalarda maksimum seviyelere ulaşmakta ve yaklaşık bu seviyeleri küçük azalmalarla 120 dakikaya taşımaktadır. Oksalik asit ile aktive edilmiş klinoptilolit ve perlitin diğer aktivasyon tiplerindeki verime yakın olmasına rağmen en iyi performansı gösterdiği söylenebilir.

### 3.2.2. Kurşun için karıştırma süresinin etkisi

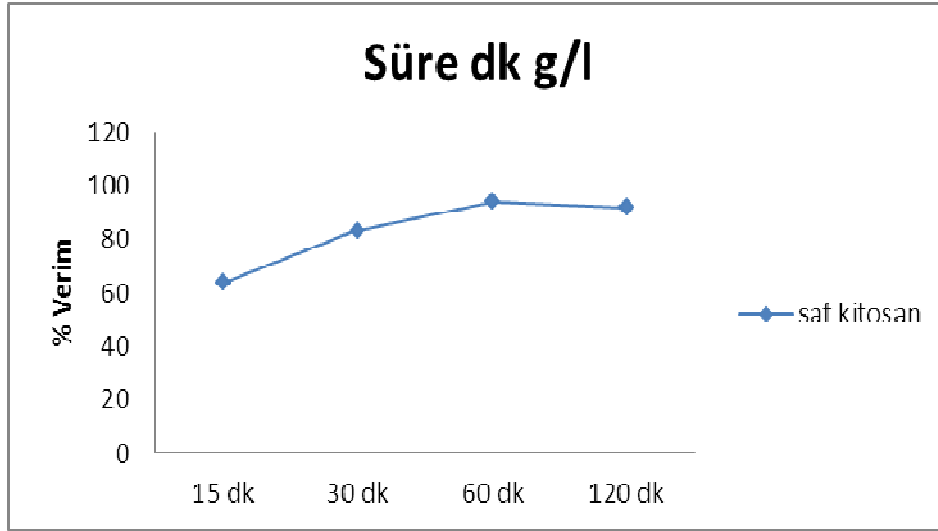
Kurşun(II) iyonunun adsorpsiyonuna karıştırma süresinin etkisini incelemek üzere derişim 100 mg / L, pH : 7, perlit, klinoptilolit ve kitosan dozu doz sonuçlarına göre tespit edilen en olumlu doz olarak seçilmiş 2 g/L için üç farklı aktivasyon türünde , 293 K sıcaklıkta ve 200 rpm hızda 15-120 dakika karıştırma yapılarak deney sonuçları elde edilmiştir.



Şekil 3.13. Kurşun sentetik numunelerinin perlit deneyleri için üç farklı aktive edilen adsorbente göre karıştırma süresine bağlı olarak verim grafiği



Şekil 3.14. Kurşun sentetik numunelerinin Zeolit deneyleri için üç farklı aktive edilen adsorbente göre karıştırma süresine bağlı olarak verim grafiği

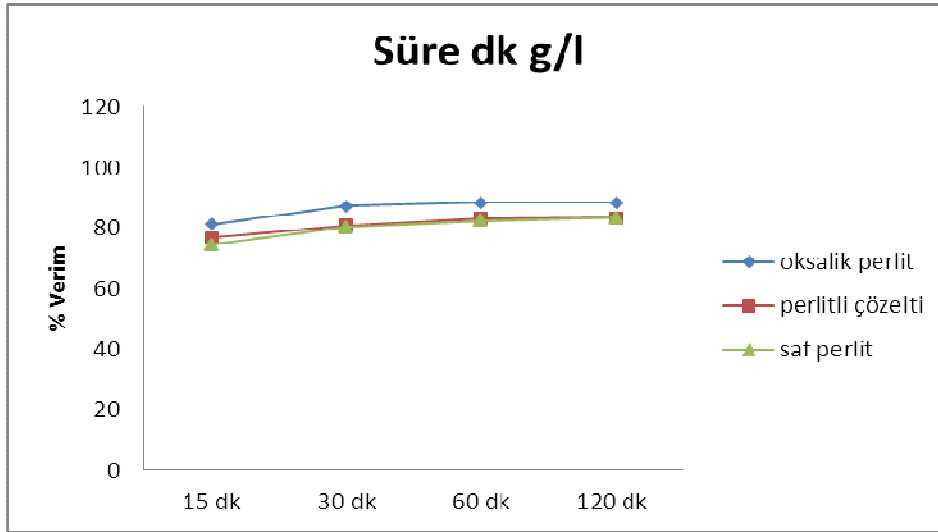


Şekil 3.15. Kurşun sentetik numunelerinin kitosan deneyleri için karıştırma süresine bağlı olarak verim grafiği

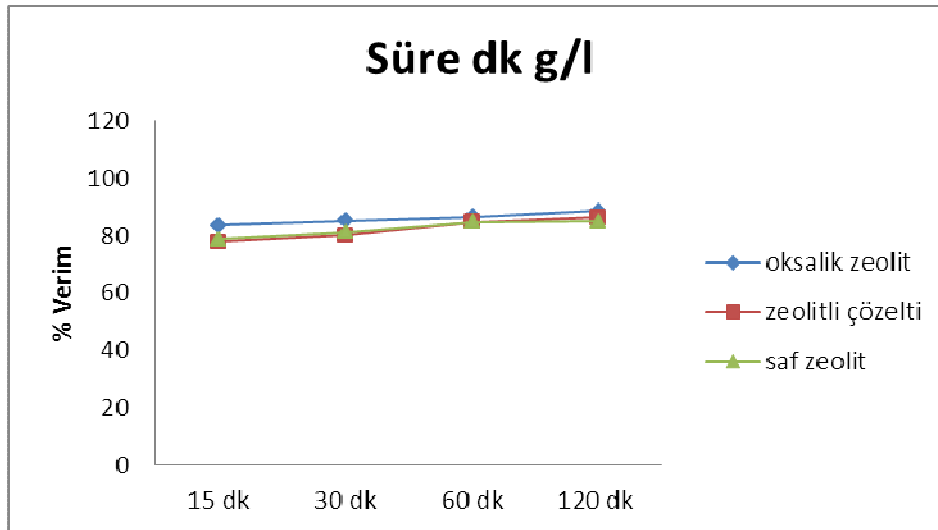
Grafiklere bağlı olarak karıştırma süresi açısından verimler incelendiğinde kurşun numuneleri 30 dakikadan sonra bir yükselişe geçmekte ve genellikle 60 . dakikalarda maksimum seviyelere ulaşmakta ve yaklaşık bu seviyeleri küçük yükselmelerle 120 dakikaya taşımaktadır. Oksalik asit ile aktive edilmiş klinoptilolit ve perlitin diğer aktivasyon tiplerindeki verime yakın olmasına rağmen en iyi performansı gösterdiği söylenebilir.

### 3.2.3. Çinko için karıştırma süresinin etkisi

Çinko iyonunun adsorpsiyonuna karıştırma süresinin etkisini incelemek üzere derişim 100 mg / L , pH : 7, klinoptilolit, perlit ve kitosan doz sonuçlarına göre tespit edilen en olumlu doz olarak seçilmiş 2 g/L için üç farklı aktivasyon türünde , 293 K sıcaklıkta ve 200 rpm hızda 15-30-60-120 dakika karıştırma yapılarak deney sonuçları elde edilmiştir.

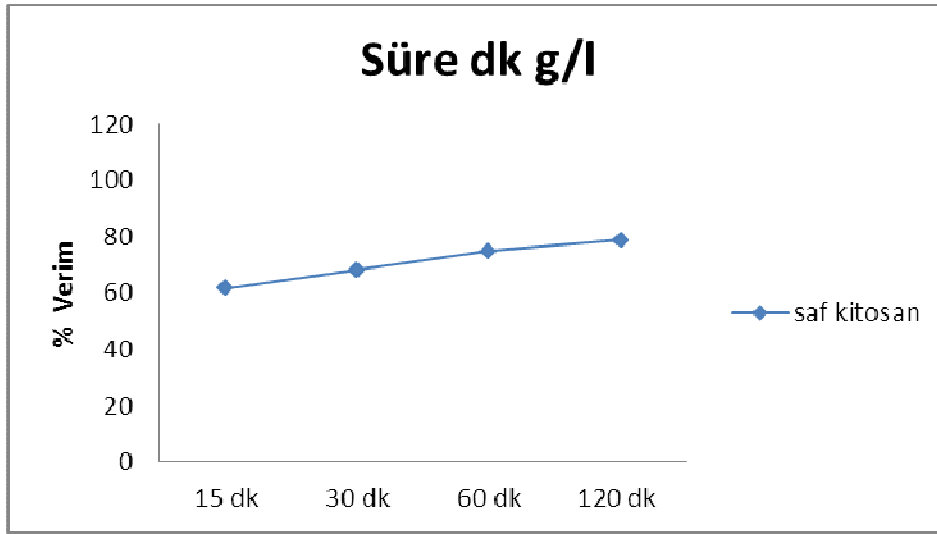


Şekil 3.16. Çinko sentetik numunelerinin perlit deneyleri için üç farklı aktive edilen adsorbanda göre karıştırma süresine bağlı olarak verim grafiği



Şekil 3.17. Çinko sentetik numunelerinin zeolit deneyleri için üç farklı aktive edilen adsorbanda göre karıştırma süresine bağlı olarak verim grafiği





Şekil 3.18. Çinko sentetik numunelerinin kitosan deneyleri için karıştırma süresine bağlı olarak verim grafiği

Grafiklere bağlı olarak karıştırma süresi açısından verimler incelendiğinde çinko numuneleri ilk 30 dakikadan sonra minimum % 79 lik verimle başlayıp ortalama bir yükselme hızıyla 60. dakikalarda maksimum( % 80-84 ) seviyelerine ulaşmakta ve yaklaşık bu seviyeleri küçük yükselmelerle 120 dakikaya taşımaktadır. Oksalik asit ile aktive edilmiş klinoptilolitin ve perlitin diğer aktivasyon tiplerindeki verime göre en iyi performansı gösterdiği belirlenmiştir.

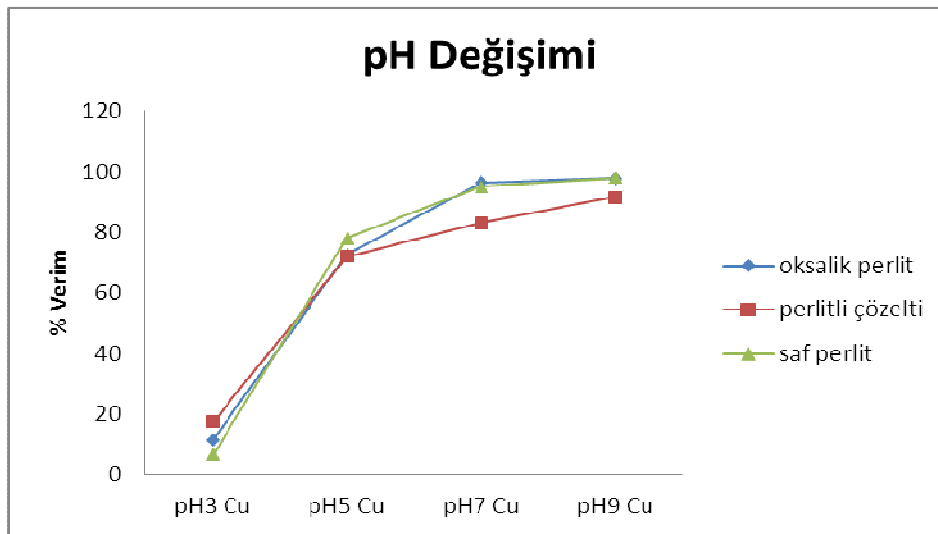
Grafiklere bağlı olarak karıştırma süresi açısından verimler incelendiğinde çinko numunelerinin karıştırma süreleri değişse de yine de üç farklı ağır metal arasında en düşük performansı gösteren ağır metal olduğu görülmektedir. Buna rağmen 60. dakikadan sonra olabilecek en iyi performansın yakalandığı uygulamanın en fazla süresi olan 120 dakikada ise verim ancak % 85'leri bulmaktadır. Tüm aktivasyon tipleri incelendiğinde en uygun aktivasyon tipinin A tipi (oksalik asit) olduğu söylenebilir.

### 3.3. pH Etkisinin İncelenmesi

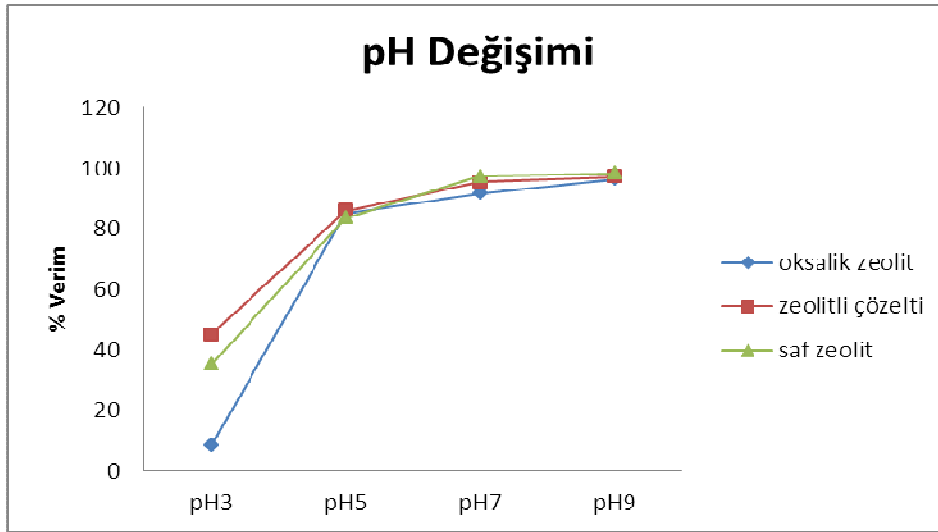
pH farkının etkisinin incelenmesi için pH değerleri 3-9 arasında çalışılmış ve verimi nasıl etkilediği incelenmiştir.

### 3.3.1. Bakır çözeltilinde pH etkisi

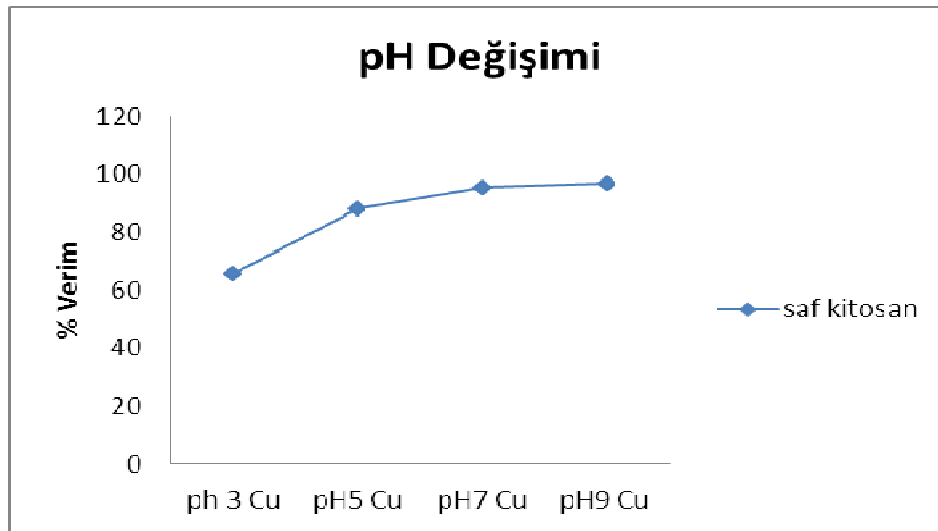
Bakır iyonunun adsorpsiyonuna pH değişiminin etkisini incelemek üzere derişim 100 mg / L, klinoptilolit dozu doz sonuçlarına göre tespit edilen en olumlu doz olarak seçilmiş 2 g/L için üç farklı aktivasyon türünde , 293 K sıcaklıkta ve 200 rpm hızda , 60 dakika karıştırma süresinde, pH değerleri 3-9 olmak üzere deneyler yapılarak sonuçları AAS ölçüm ve deney sonuçlarına göre oluşturulan grafik Şekil 3.3.1.1'de gösterilmiştir.



Şekil 3.19. Bakır sentetik numunelerinin perlit ile birlikte üç farklı aktive edilen adsorbanda göre pH değerlerine bağlı olarak verim grafiği



Şekil 3.20. Bakır sentetik numunelerinin zeolit ile birlikte üç farklı aktive edilen adsorbanda göre pH değerlerine bağlı olarak verim grafiği

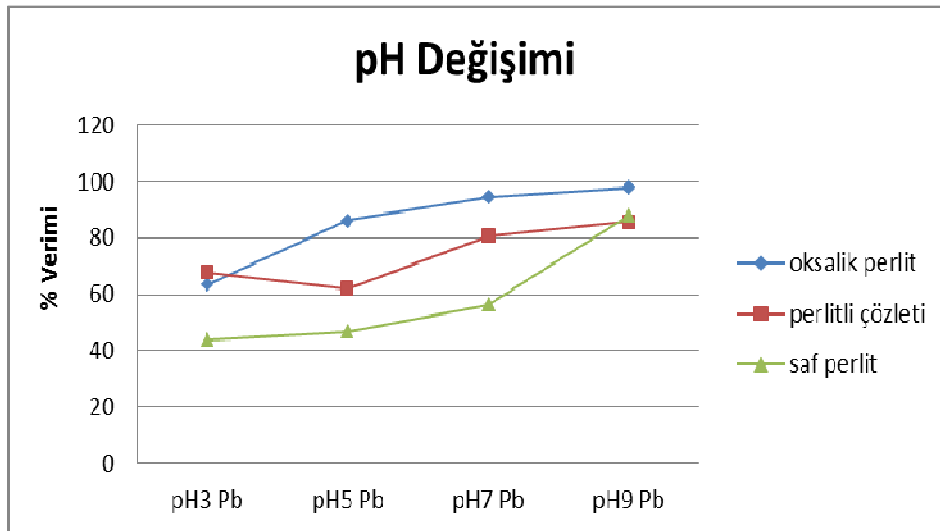


Şekil 3.21. Bakır sentetik numunelerinin kitosan ile aktive edilen adsorbanda göre pH değerlerine bağlı olarak verim grafiği

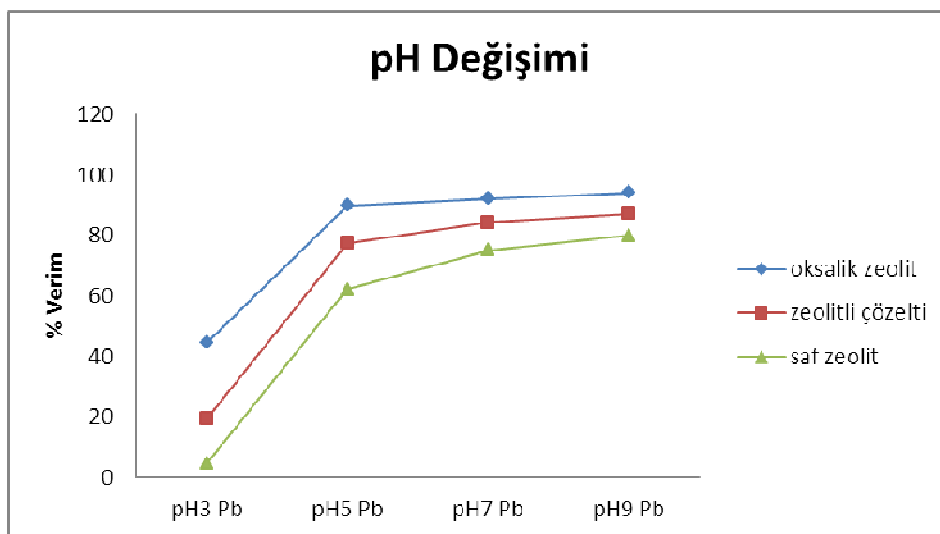
Grafiklerden görüldüğü gibi verim açısından en iyi performans pH 7-9 aralığında ve genellikle oksalik perlit ve oksalik zeolit formunda elde edilmiştir.

### 3.3.2. Kurşun çözeltilisinde pH etkisi

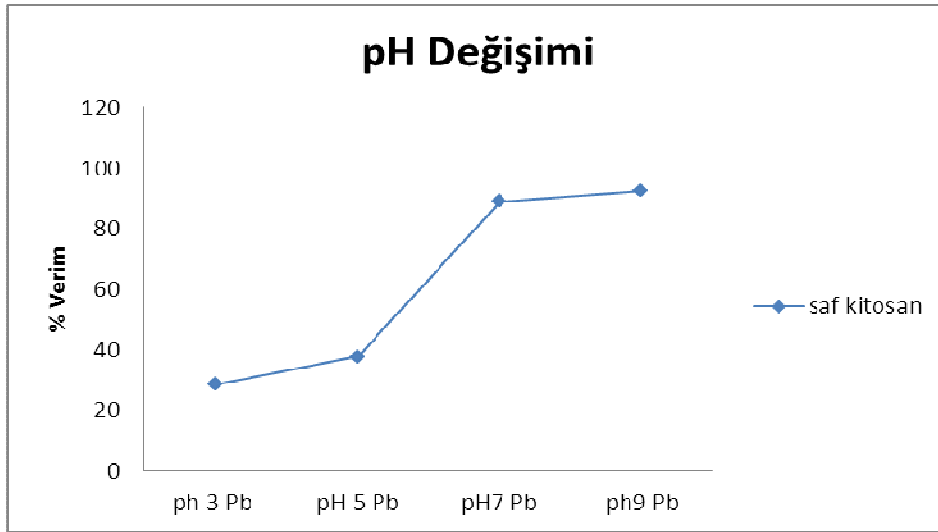
Kurşun iyonunun adsorpsiyonuna pH değişiminin etkisini incelemek üzere derişim 100 mg / L , klinoptilolit dozu doz sonuçlarına göre tespit edilen en olumlu doz olarak seçilmiş 2 g/L için üç farklı aktivasyon türünde , 293 K sıcaklıkta ve 100 rpm hızda , 60 dakika karıştırma süresinde, pH değerleri 3-5-7-9 olmak üzere deneyler yapılarak sonuçları AAS ve deney sonuçları Şekil 3.3.2' de verilmiştir.



Şekil 3.22. Kurşun sentetik numunelerinin perlit ile üç farklı aktive edilen adsorbente göre pH değerlerine bağlı olarak verim grafiği



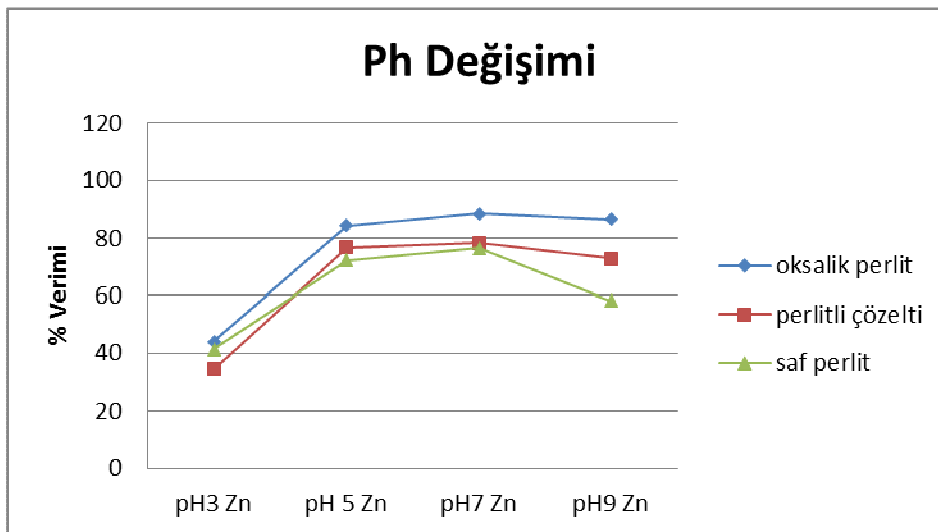
Şekil 3.23. Kurşun sentetik numunelerinin zeolit ile üç farklı aktive edilen adsorbente göre pH değerlerine bağlı olarak verim grafiği



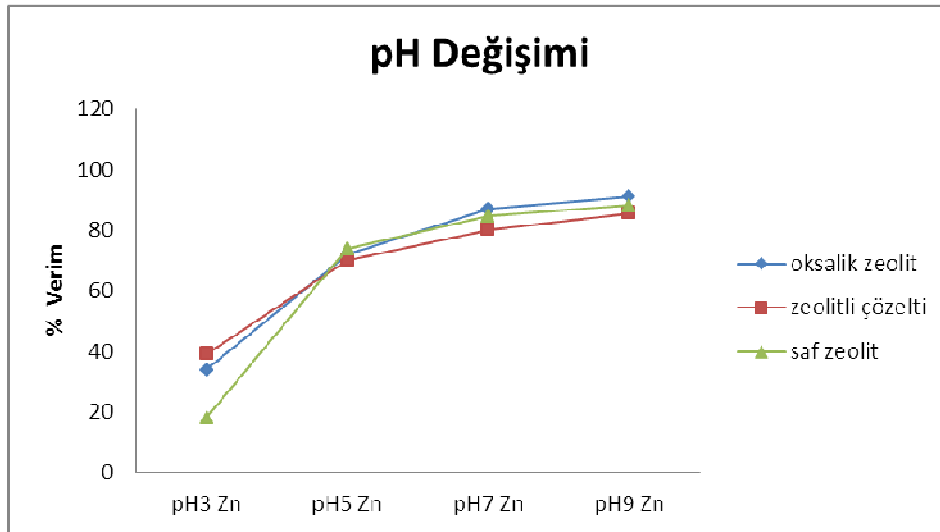
Şekil 3.24. Kurşun sentetik numunelerinin kitosan ile aktive edilen adsorbente göre pH değerlerine bağlı olarak verim grafiği

### 3.3.3. Çinko çözeltisinde pH etkisi

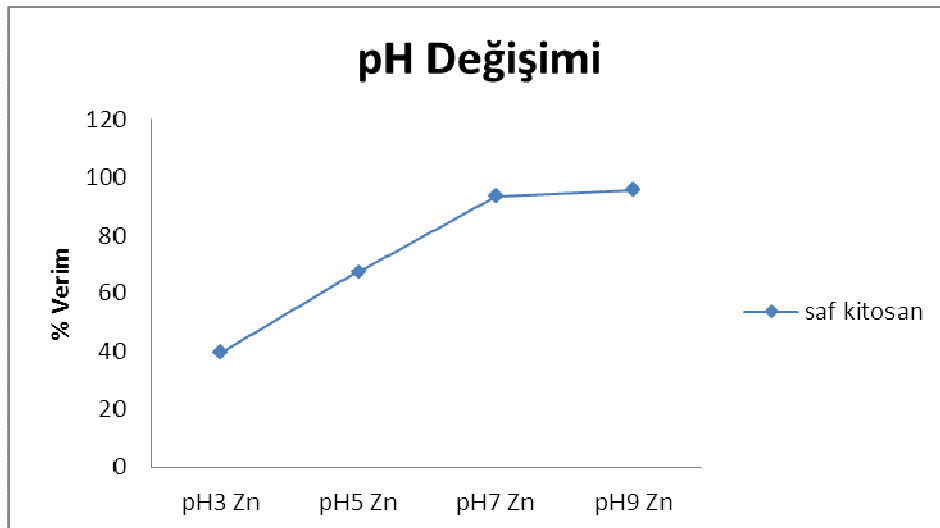
Çinko iyonunun adsorpsiyonuna pH değişiminin etkisini incelemek üzere derişim 100 mg / L, klinoptilolit dozu doz sonuçlarına göre tespit edilen en olumlu doz olarak seçilmiş 2 g/L için üç farklı aktivasyon türünde , 293 K sıcaklıkta ve 100 rpm hızda , 60 dakika karıştırma süresinde , pH değerleri 3-5-7-9 olmak üzere deneyler yapılarak sonuçları AAS ve deney sonuçları Şekil 3.3.3.' de verilmiştir.



Şekil 3.25. Çinko sentetik numunelerinin üç farklı aktive edilen adsorbente göre pH değerlerine bağlı olarak verim grafiği



Şekil 3.26. Çinko sentetik numunelerinin üç farklı aktive edilen adsorbente göre pH değerlerine bağlı olarak verim grafiği



Şekil 3.27. Çinko sentetik numunelerinin kitosan ile aktive edilen adsorbente göre pH değerlerine bağlı olarak verim grafiği

Çinko numunelerinde en yüksek verimi veren pH değerinin 7-9 olduğu, en uygun aktivasyon formunun ise A tipi aktivasyon formları yani oksalik perlit ve oksalik zeolit olduğu görülmektedir.

Grafiklere bağlı olarak en yüksek verim veren pH aralığı 7-9 olduğu görülmektedir. En uygun aktivasyon tipine bakıldığında her üç formunda yakın verimler verdiği görülmektedir; fakat bir seçim yapıldığında en uygun seçeneğin A tipi aktivasyon olduğuna karar verilmiştir.

### 3.4. Deneysel Verilerin Denge İzotermine Uygulanması

Adsorpsiyon işlemi adsorplanan maddenin adsorbent yüzeyinde ki madde miktarı  $q_e$  (mg/g) ile çözelti içerisinde kalan madde miktarının  $C_e$  (mg/l) dengeye ulaştığı ana kadar devam eder. İzoterm ise denge halinin sabit sıcaklıkta grafiğe yansıtılmasıdır [41]. İzoterm eğrileri için farklı matematiksel izoterm formülleri geliştirilmiştir. Lineer izoterm biyolojik ayırmada öne çıkarken Langmuir ve Freunlich ve izotermi hem biyolojik ayırma hem de fiziksel ve kimyasal adsorpsiyonlarda dengeyi belirlemede öne çıkan izotermilerdir. Brunauer – Emmett – Teller (BET) izotermi yine fiziksel ve kimyasal adsorpsiyon denge hesabı için kullanılmaktadır. Bunların yanı sıra Temkin, Dubinin – Radushkevich izotermi de bulunmaktadır.

İzoterm ile adsorplanan madde ile adsorbent arasındaki bağıntı, adsorbent maddenin kapasitesi, adsorpsiyonun sıcaklığı gibi etkenlerde bilgi edinilebilir [41]. İzoterm kullanılarak; en uygun adsorban seçimi, filtre içerisindeki adsorban ömrünün belirlenmesi, adsorbanın geriye kalan adsorpsiyon kapasitesinin belirlenmesi sağlanabilir.

#### 3.4.1. Langmuir izotermi

Langmuir izoterminde adsorbent üzerinde adsorpsiyon için aktif merkezlerin olduğu ve bu yüzeylerde bir adet adsorban maddenin adsorpsiyonunun gerçekleşebileceği kabul edilir. Dolayısıyla adsorbent yüzeyinde belli sayıda aktif alan olduğu ve bu nedenle adsorbent yüzeyinde ki adsorban tabakasının bir molekül kalınlığında olduğu kabul edilir. Adsorpsiyon derecesi adsorbent yüzeyindeki mono tabakadan büyük olamaz bu nedenle Langmuir izotermi tek tabaka adsorpsiyonunu tanımlar. Adsorbent üzerindeki aktif noktalar adsorban moleküllerine karşı eşit ilgiye sahiptir [41].

$$(C_e/Q_e = 1 / K_L \cdot X_m + C_e / X_m) \quad (1.1)$$

$C_e$ : Adsorpsiyon sonunda çözeltide kalan metal iyon konsantrasyonu

$Q_e$  : Denge anında adsorblanan miktar

$K_L$ : Langmuir Adsorpsiyon izoterm sabiti

$X_m$  : Adsorbe olan maddenin maksimum miktarıyla olan sabit

### 3.4.2. Freundlich izotermi

Freundlich izoterminde adsorbant yüzeyi, adsorplama enerjisi ve adsorpsiyon alanı açısından heterojen olduğu için tek tabaka kaplamasından bahsedilemez. Adsorban madde derişimi arttığı sürece adsorplanan madde miktarı artar.

$$(\log Q_e = \log k + n \log C_e) \quad (1.2)$$

$\log Q_e$  :

$\log C_e$  :

$k$  : Freundlich izotermine konsantrasyona bağı sabit

$n$  : Freundlich izotermine konsantrasyona bağı sabit

### 3.4.3. Lineer izoterm

Çözünen madde konsantrasyonu çok düşük ise adsorpsiyon izotermi genellikle doğrusal (lineer) olarak artış gösterir. Kullanılan izoterm eşitliği aşağıdaki gibidir;

$$C_U = K \times C_B \quad (1.3)$$

$C_U$ : Birim adsorban üzerine adsorplanan madde miktarı (g/l)

$K$ : Lineer denge sabiti

$C_B$ : Denge, çözeltide adsorplanmadan kalan madde miktarı (g/l)

### 3.4.4. Branauer- Emet- Teller (BET) izotermi

BET izotermi çok tabakalı adsorpsiyonun açıklanmasında kullanılan izoterm çeşitlerinden bir tanesidir. Bununla birlikte Langmuir izotermine göre daha kullanışlı bir denklem olarak anılmaktadır. Çünkü adsorbentin yüzeyde birden fazla tabaka oluşturduğunu kabul etmektedir. Böylelikle Langmuir izotermi tüm tabakaya uygulamaktadır.

$$q_e = (Q_0 \times B \times C_e) / ((C_s - C_e) \times (1 + ((B-1) \times C_e) / C_s)) \quad (1.4)$$



$C_e$ : Çözeltide kalan madde miktarı (mg/l)

$C_s$ : Çözeltide adsorplananın doygunluk derişimi (mg/l)

$B$ : Çözelti ve adsorpsiyon yüzeyi arasındaki enerji sabiti

$Q_0$ : Yüzeyde tam bir tabaka oluşturmak için, adsorbentin birim ağırlığında adsorplanan miktarı (mg/g) göstermektedir.

### 3.4.5. Temkin izotermi

Adsorbat etkileşimlerinin adsorpsiyon reaksiyonu üzerinde meydana getirdiği etkileri açıklamak için kullanılmaktadır. Temkin izotermi, adsorpsiyon tabakasındaki tüm moleküllerin ısısının lineer olarak azaldığını kabul etmektedir. Kullanılan ana denklem [42];

$$q_e = (R \times T/b) \times \ln A + (R \times T/b) \ln C_e \quad (1.5)$$

$RT/b$  yerine  $B$  yazılır.

$A$ : Temkin izoterm sabiti.

$B$ : Temkin izoterm sabiti.

$R$ : Gaz sabiti. ( $J \text{ mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$ )

### 3.4.6. Dubinin-Radushkevich izotermi

Tek tabaka adsorpsiyon izotermlerinden biri olan Dubinin-Radushkevich izotermi yüksek derecede dikdörtgensel izoterm vereren adsorpsiyon denklemdir [42].

$$\ln q_e = \ln q_m - \beta \times \varepsilon^2$$

$$\varepsilon = R \times T / \ln((1/C_e) + 1) \quad (1.6)$$

$q_m$ : Dubinin-Radushkevich tek tabaka kapasitesi (mol/g)

$\beta$ : Adsorpsiyon enerjisi

$\varepsilon$ : Denge potansiyeli

### 3.5. Deneysel Verilerin Denge İzotermlerine (Langmuir ve Freundlich) Uygulanması

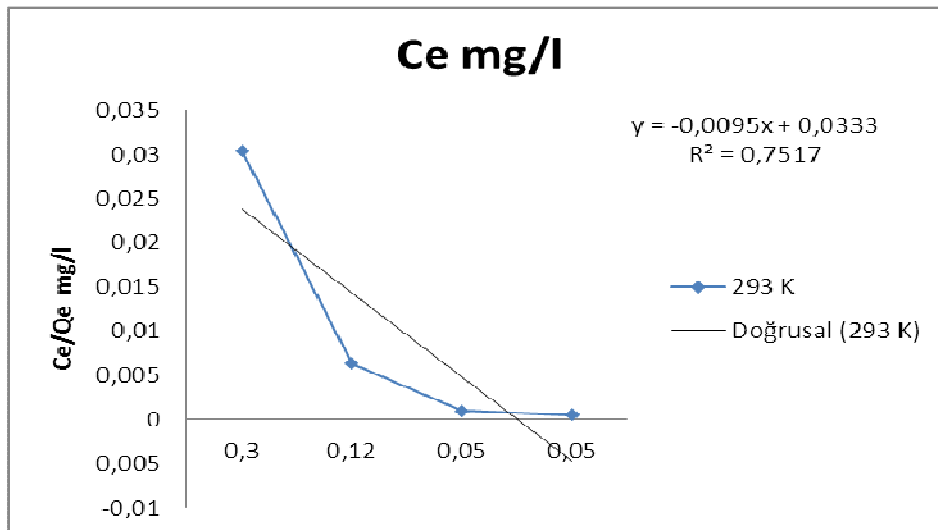
#### 3.5.1. Bakır iyonu adsorpsiyonunda derişim sonuçlarının langmuir izoterm eşitliğine uygulanması

Bakır çözeltisiyle yapılan deney sonuçlarına göre yapılan Langmuir eşitliğine bağlı çalışmalar sonucu Tablo: 3.5.1. oluşturulmuş ve Langmuir eşitliğine bağlı grafik Şekil 3.28' de verilmiştir.

$$(C_e / Q_e = 1 / K_L \cdot X_m + C_e / X_m) \quad (1.7)$$

Tablo 3.1. Perlit ile yapılan bakır iyonu deneyleri için Langmuir eşitliği değerleri

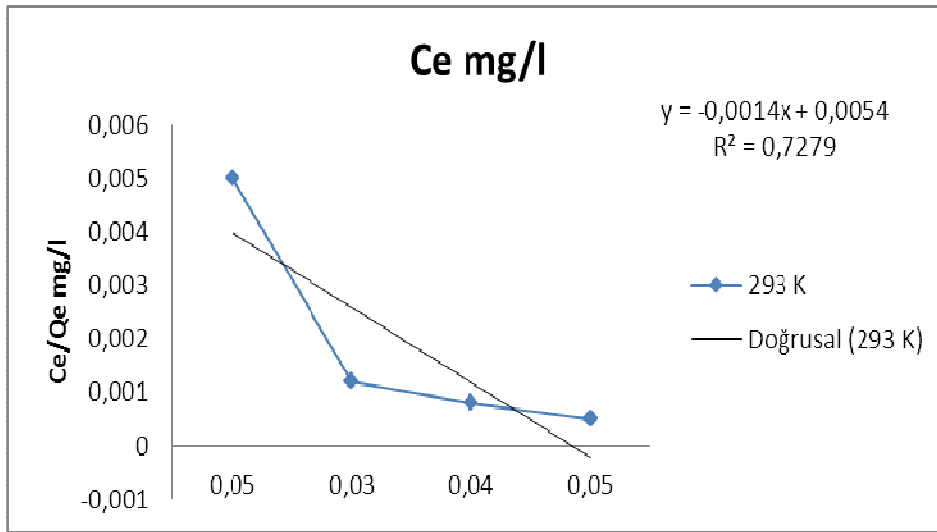
| $C_0$<br>mg / L | $C_e$<br>mg / L<br>293 K | $Q_e$<br>293 K | $C_e / Q_e$<br>293 K |
|-----------------|--------------------------|----------------|----------------------|
| 20              | 0,3                      | 9,85           | 0,0304               |
| 50              | 0,12                     | 19             | 0,0063               |
| 100             | 0,05                     | 49,975         | 0,0010               |
| 200             | 0,05                     | 99,975         | 0,0005               |



Şekil 3.28. Bakır iyonu Perlit deneyleri için Langmuir izotermi grafiği

Tablo 3.2. Zeolit ile yapılan bakır iyonu deneyleri için Langmuir eşitliği değerleri

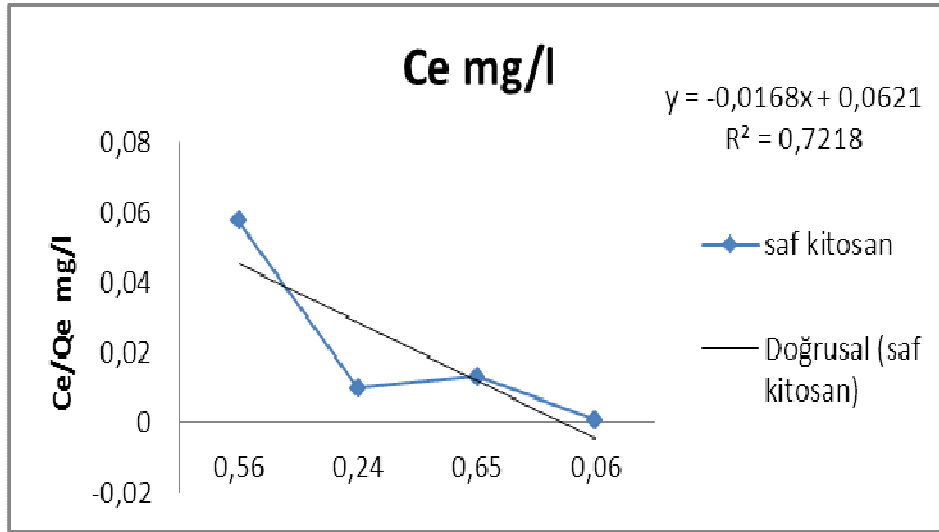
| Co<br>mg / L | Ce<br>mg / L<br>293 K | Qe<br>293 K | Ce / Qe<br>293 K |
|--------------|-----------------------|-------------|------------------|
| 20           | 0,05                  | 9,975       | 0,0050           |
| 50           | 0,03                  | 24,985      | 0,0012           |
| 100          | 0,04                  | 49,98       | 0,0008           |
| 200          | 0,05                  | 99,975      | 0,0005           |



Şekil 3.29. Bakır iyonu Zeolit deneyleri için Langmuir izotermi grafiği

Tablo 3.3. Kitosan ile yapılan bakır iyonu deneyleri için Langmuir eşitliği değerleri

| Co<br>mg / L | Ce<br>mg / L<br>293 K | Qe<br>293 K | Ce / Qe<br>293 K |
|--------------|-----------------------|-------------|------------------|
| 20           | 0,56                  | 9,72        | 0,058            |
| 50           | 0,24                  | 24,88       | 0,010            |
| 100          | 0,65                  | 49,675      | 0,013            |
| 200          | 0,06                  | 99,97       | 0,001            |



Şekil 3.30. Bakır iyonu için kitosan deneylerinin Langmuir izotermi grafiği

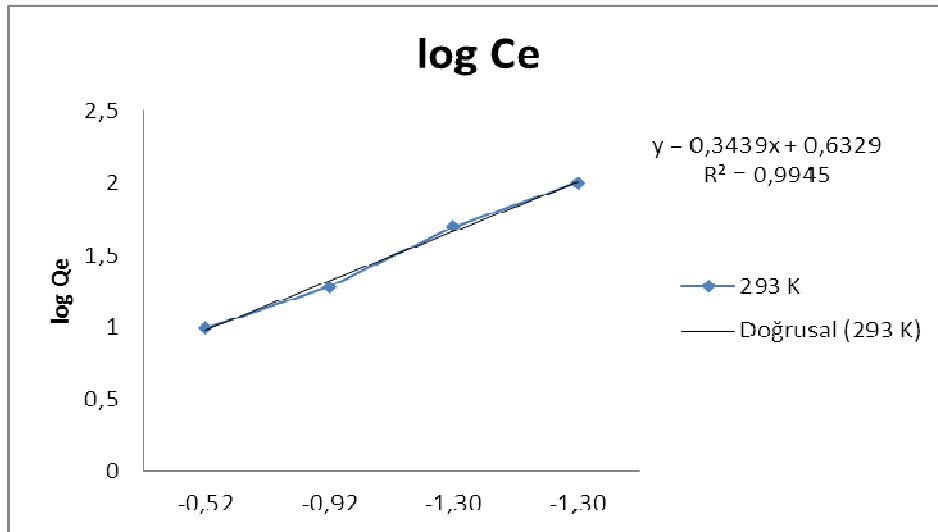
### 3.5.2. Bakır iyonu adsorpsiyonunda derişim sonuçlarının freundlich izoterm eşitliğine uygulanması

Bakır çözeltisiyle yapılan deney sonuçlarına göre yapılan Freundlich eşitliğine bağlı çalışmalar sonucu Tablo 3.4. oluşturulmuş ve Freundlich eşitliğine bağlı grafik Şekil 3.31' de verilmiştir.

$$(\log Q_e = \log k + n \log C_e) \quad (1.8)$$

Tablo 3.4. Perlit ile yapılan bakır iyonu deneyleri için Freundlich eşitliği değerleri

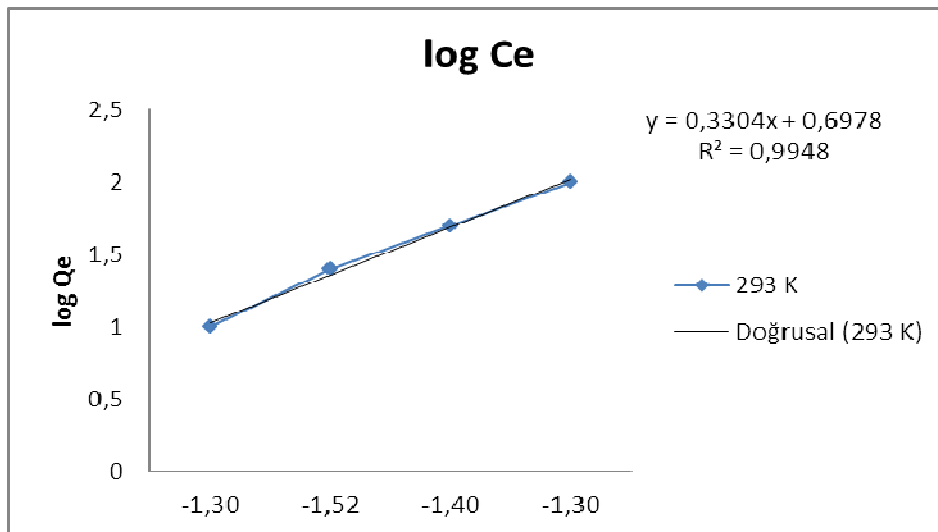
| Co<br>mg / L | Ce<br>293 K mg / L | Qe<br>293 K | Log Ce<br>293 K | Log Qe<br>293 K |
|--------------|--------------------|-------------|-----------------|-----------------|
| 20           | 0,3                | 9,85        | -0,52           | 0,99            |
| 50           | 0,12               | 19          | -0,92           | 1,28            |
| 100          | 0,05               | 49,975      | -1,30           | 1,70            |
| 200          | 0,05               | 99,975      | -1,30           | 2,00            |



Şekil 3.31. Bakır iyonu Perlit deneyleri için Freundlich izotermi grafiği

Tablo 3.5. Zeolit ile yapılan bakır iyonu deneyleri için Freundlich eşitliği değerleri

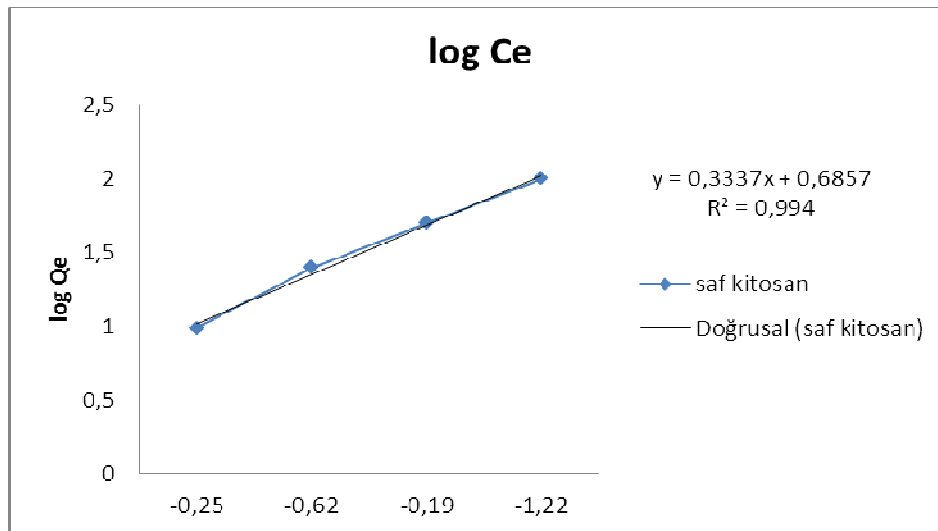
| Co<br>mg / L | Ce<br>293 K mg / L | Qe<br>293 K | Log Ce<br>293 K | Log Qe<br>293 K |
|--------------|--------------------|-------------|-----------------|-----------------|
| 20           | 0,05               | 9,975       | -1,30           | 0,10            |
| 50           | 0,03               | 24,985      | -1,52           | 1,40            |
| 100          | 0,04               | 49,98       | -1,40           | 1,70            |
| 200          | 0,05               | 99,975      | -1,30           | 2,00            |



Şekil 3.32. Bakır iyonu Zeolit deneyleri için Freundlich izotermi grafiği

Tablo 3.6. Kitosan ile yapılan bakır iyonu deneyleri için Freundlich eşitliği değerleri

| Co<br>mg / L | Ce<br>293 K mg / L | Qe<br>293 K | Log Ce<br>293 K | Log Qe<br>293 K |
|--------------|--------------------|-------------|-----------------|-----------------|
| 20           | 0,56               | 9,72        | -0,25           | 0,99            |
| 50           | 0,24               | 24,88       | -0,62           | 1,40            |
| 100          | 0,65               | 49,675      | -0,19           | 1,70            |
| 200          | 0,06               | 99,97       | -1,22           | 2,00            |



Şekil 3.33. Bakır iyonu için Kitosan deneylerinin Freundlich izotermi grafiği

Perlit ile yapılan çalışmalarda Şekil 3.28. ve Şekil 3.31.'de görüldüğü üzere hesaplanan korelasyon katsayısına göre bakır iyonu için Langmuir izoterm katsayısı 0,75, Freundlich izotermi katsayısı 0,99 olarak bulunmuştur. Zeolit ile yapılan çalışmalarda Şekil 3.29.'ve Şekil 3.32.'de görüldüğü üzere hesaplanan korelasyon katsayısına göre bakır iyonu için Langmuir izoterm katsayısı 0,73, Freundlich izotermi katsayısı 0,99 olarak bulunmuştur. Kitosan ile yapılan çalışmalarda Şekil 3.30. ve Şekil 3.33.' te görüldüğü üzere hesaplanan korelasyon katsayılarına göre bakır iyonu için Langmuir izoterm katsayısı 0,72, Freundlich izotermi katsayısı 0,99 olarak bulunmuştur. Adsorpsiyonunun her üç izotermle de uygunluk gösterdiği fakat Freundlich izotermine daha yakın olduğu saptanmıştır.

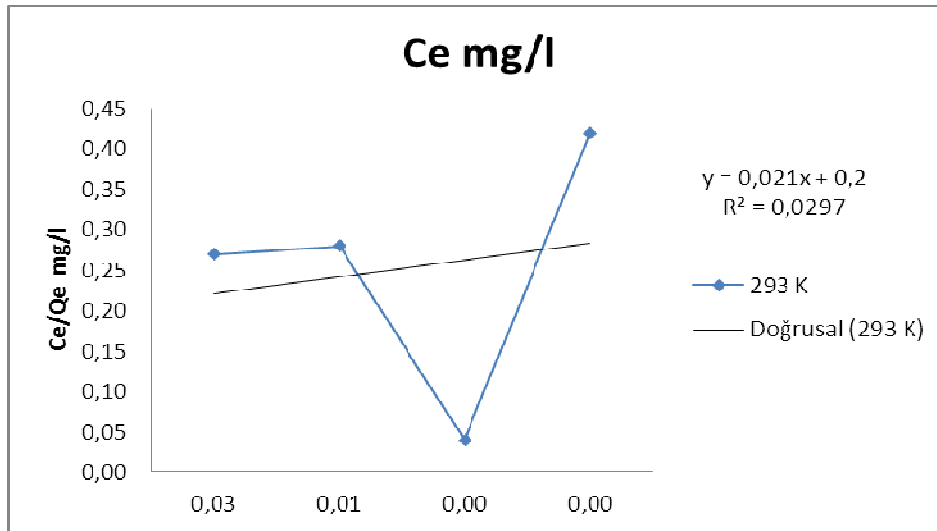
### 3.5.3. Kurşun iyonu adsorpsiyonunda derişim sonuçlarının langmuir izoterm eşitliğine uygulanması

Kurşun çözeltisiyle yapılan deney sonuçlarına göre yapılan Langmuir eşitliğine bağlı çalışmalar sonucu Tablo 3.7, Tablo 3.8. ve Tablo 3.9. oluşturulmuş ve Langmuir eşitliğine bağlı grafik Şekil 3.34.' de ve Şekil 3.35.'te verilmiştir.

$$(C_e/Q_e = 1 / K_L \cdot X_m + C_e / X_m)$$

Tablo 3.7. Perlit ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Langmuir eşitliği değerleri

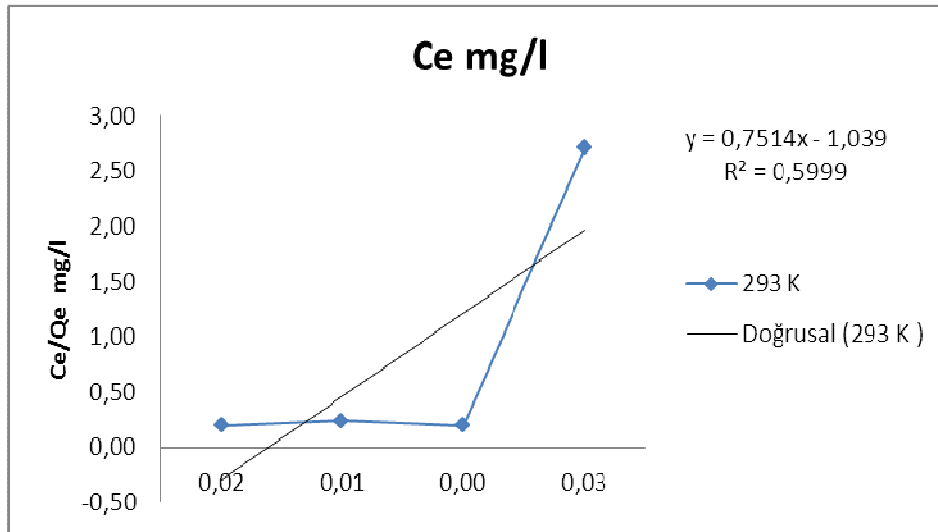
| Co<br>mg / L | Ce<br>mg / L<br>293 K | Qe<br>293 K | Ce / Qe<br>293 K |
|--------------|-----------------------|-------------|------------------|
| 20           | 0,27                  | 9,865       | 0,027            |
| 50           | 0,28                  | 24,86       | 0,011            |
| 100          | 0,04                  | 49,98       | 0,001            |
| 200          | 0,42                  | 99,79       | 0,004            |



Şekil 3.34. Perlit ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Langmuir izotermi grafiği

Tablo 3.8. Zeolit ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Langmuir eşitliği değerleri

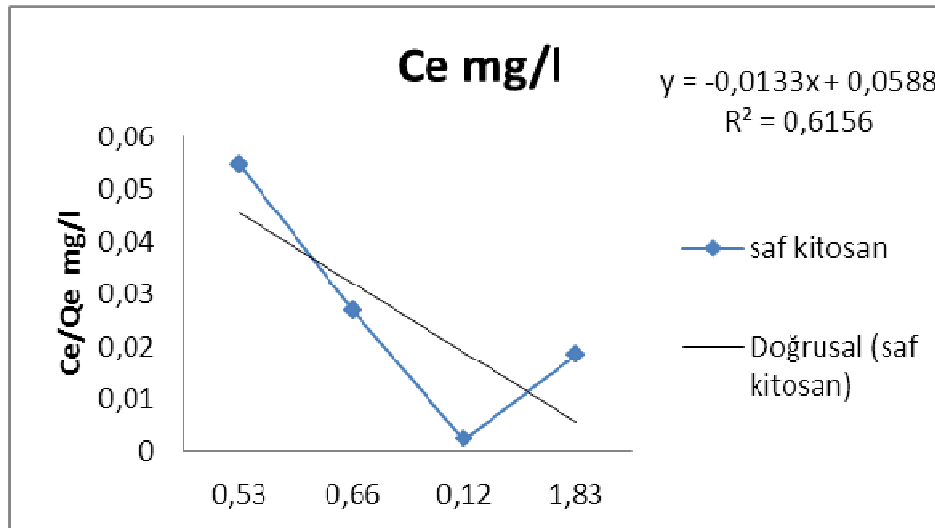
| Co<br>mg / L | Ce<br>mg / L<br>293 K | Qe<br>293 K | Ce / Qe<br>293 K |
|--------------|-----------------------|-------------|------------------|
| 20           | 0,05                  | 9,975       | 0,0050           |
| 50           | 0,03                  | 24,985      | 0,0012           |
| 100          | 0,04                  | 49,98       | 0,0008           |
| 200          | 0,05                  | 99,975      | 0,0005           |



Şekil 3.35. Zeolit ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Langmuir izotermi grafiği

Tablo 3.9. Kitosan ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Langmuir eşitliği değerleri

| Co<br>mg / L | Ce<br>mg / L<br>293 K | Qe<br>293 K | Ce / Qe<br>293 K |
|--------------|-----------------------|-------------|------------------|
| 20           | 0,53                  | 9,73436     | 0,055            |
| 50           | 0,66                  | 24,66757    | 0,027            |
| 100          | 0,12                  | 49,94157    | 0,002            |
| 200          | 1,83                  | 99,083095   | 0,019            |



Şekil 3.36. Kitosan ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Langmuir izotermi grafiği

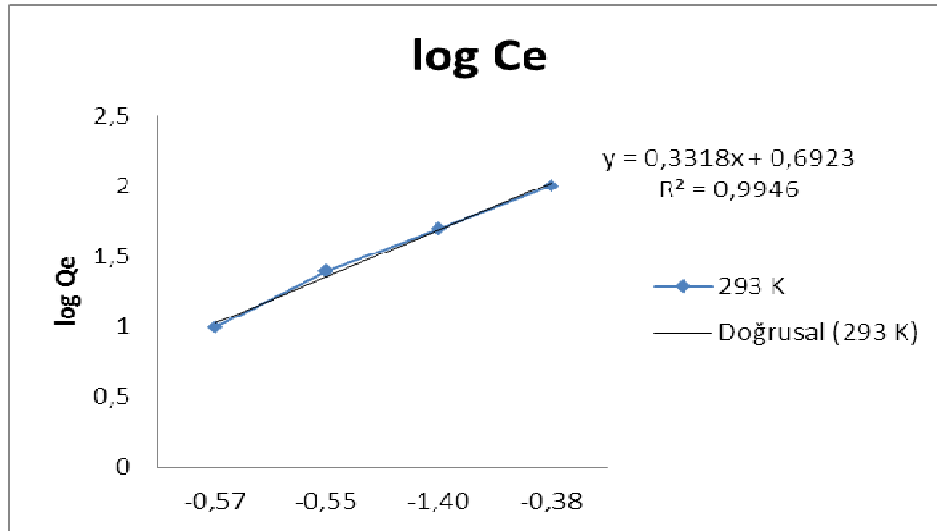


### 3.5.4. Kurşun iyonu adsorpsiyonunda derişim sonuçlarının freundlich izoterm eşitliğine uygulanması

Kurşun çözeltisiyle yapılan deney sonuçlarına göre yapılan Freundlich eşitliğine bağlı çalışmalar sonucu Tablo 3.10. , Tablo 3.11. ve Tablo 3.12. oluşturulmuş ve Freundlich eşitliğine bağlı grafik Şekil 3.37.' de, Şekil 3.38.'de ve Şekil 3.39'da verilmiştir.

Tablo 3.10. Perlit ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Freundlich eşitliği değerleri

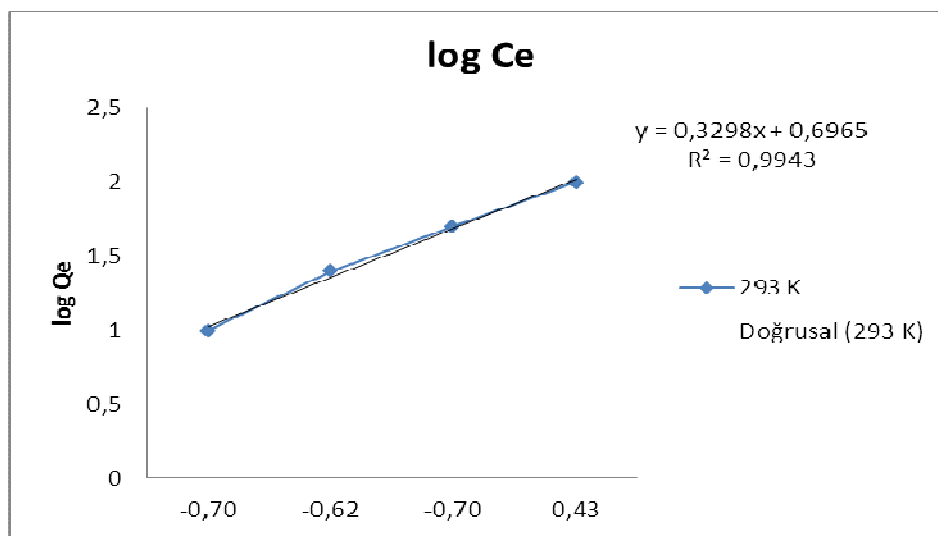
| Co<br>mg / L | Ce<br>293 K mg / L | Qe<br>293 K | Log Ce<br>293 K | Log Qe<br>293 K |
|--------------|--------------------|-------------|-----------------|-----------------|
| 20           | 0,27               | 9,865       | -0,57           | 0,99            |
| 50           | 0,28               | 24,86       | -0,55           | 1,40            |
| 100          | 0,04               | 49,98       | -1,40           | 1,70            |
| 200          | 0,42               | 99,79       | -0,38           | 2               |



Şekil 3.37. Perlit ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Freundlich izotermi grafiği

Tablo 3.11. Zeolit ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Freundlich eşitliği değerleri

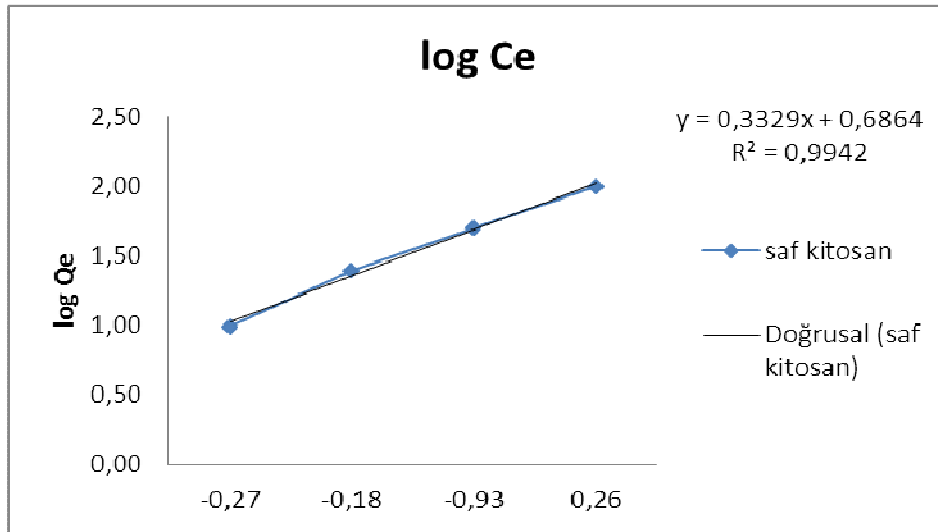
| Co<br>mg / L | Ce<br>293 K mg / L | Qe<br>293 K | Log Ce<br>293 K | Log Qe<br>293 K |
|--------------|--------------------|-------------|-----------------|-----------------|
| 20           | 0,27               | 9,865       | -0,56864        | 0,99            |
| 50           | 0,28               | 24,86       | -0,55284        | 1,40            |
| 100          | 0,04               | 49,98       | -1,39794        | 1,70            |
| 200          | 0,42               | 99,79       | -0,37675        | 2               |



Şekil 3.38. Zeolit ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Freundlich izotermi grafiği

Tablo 3.12. Kitosan ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Freundlich eşitliği değerleri

| Co<br>mg / L | Ce<br>293 K mg / L | Qe<br>293 K | Log Ce<br>293 K | Log Qe<br>293 K |
|--------------|--------------------|-------------|-----------------|-----------------|
| 20           | 0,53               | 9,73436     | -0,27           | 0,99            |
| 50           | 0,66               | 24,66757    | -0,18           | 1,39            |
| 100          | 0,12               | 49,94157    | -0,93           | 1,70            |
| 200          | 1,83               | 99,083095   | 0,26            | 2               |



Şekil 3.39. Kitosan ile yapılan kurşun iyonu deneyleri için Freundlich izotermi grafiği

Perlit ile yapılan çalışmalarda Şekil 3.34. ve 3.37.'de görüldüğü üzere hesaplanan korelasyon katsayılarına göre bakır iyonu için Langmuir izoterm katsayısı 0,029 Freundlich izotermi katsayısı 0,99 olarak bulunmuştur. Zeolit ile yapılan çalışmalarda Şekil 3.35. ve 3.38.'de görüldüğü üzere hesaplanan korelasyon katsayılarına göre bakır iyonu için Langmuir izoterm katsayısı 0,73 Freundlich izotermi katsayısı 0,99 olarak bulunmuştur. Kitosan ile yapılan çalışmalarda Şekil 3.36. ve 3.39.'da görüldüğü üzere hesaplanan korelasyon katsayılarına göre bakır iyonu için Langmuir izoterm katsayısı 0,62 Freundlich izotermi katsayısı 0,99 olarak bulunmuştur. Adsorpsiyonunun Freundlich izotermine daha yakın olduğu saptanmıştır.

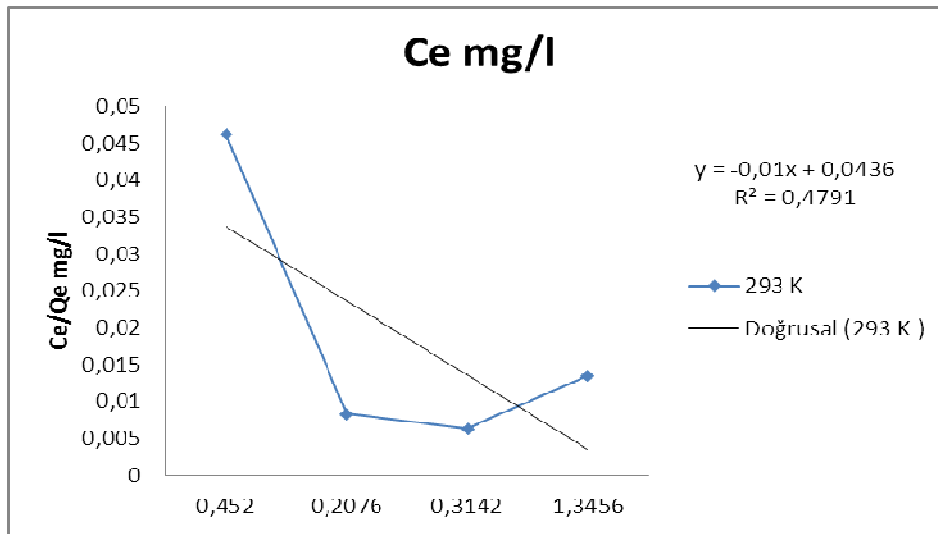
### 3.5.5. Çinko iyonu adsorpsiyonunda derişim sonuçlarının langmuir izoterm eşitliğine uygulanması

Çinko çözeltisiyle yapılan deney sonuçlarına göre yapılan Langmuir eşitliğine bağlı çalışmalar sonucu Tablo 3.13. , Tablo 3.14. ve Tablo 3.15 oluşturulmuş ve Langmuir eşitliğine bağlı grafik Şekil 3.40, Şekil 3.41. ve Şekil 3.42' de verilmiştir.

$$( Ce/Qe = 1 / K_L \cdot X_m + Ce / X_m)$$

Tablo 3.13. Perlit ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Langmuir eşitliği değerleri

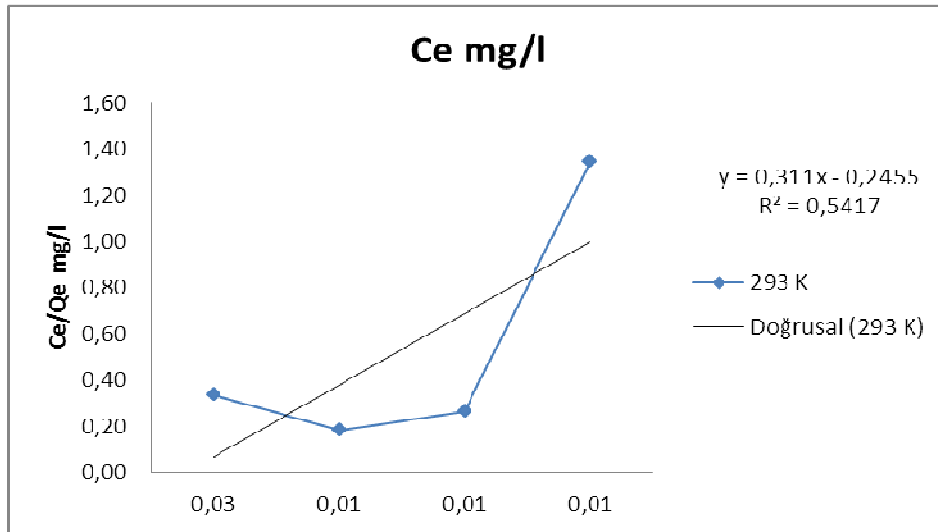
| Co<br>mg / L | Ce<br>mg / L<br>293 K | Qe<br>293 K | Ce / Qe<br>293 K |
|--------------|-----------------------|-------------|------------------|
| 20           | 0,452                 | 9,774       | 0,04624514       |
| 50           | 0,2076                | 24,8962     | 0,00833862       |
| 100          | 0,3142                | 49,8429     | 0,00630381       |
| 200          | 1,3456                | 99,3272     | 0,01354715       |



Şekil 3.40. Perlit ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Langmuir izotermi grafiği

Tablo 3.14. Zeolit ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Langmuir eşitliği değerleri

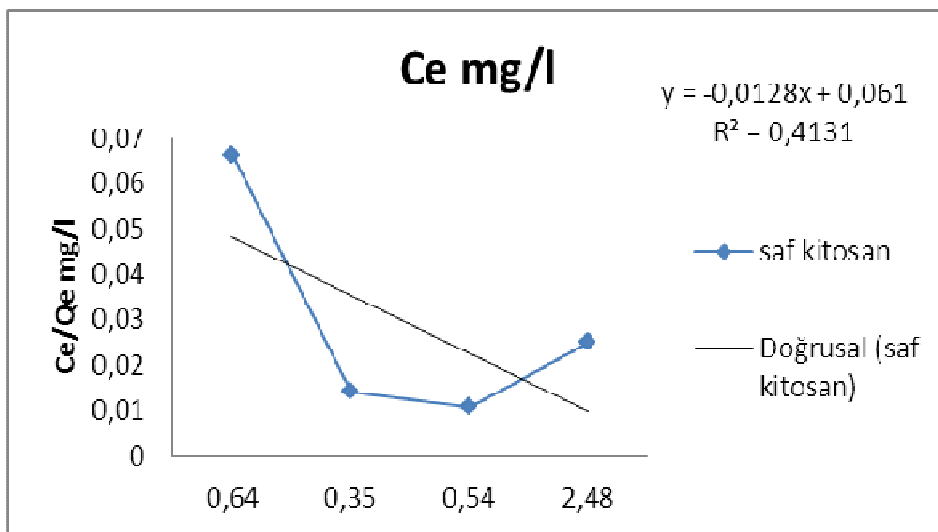
| Co<br>mg / L | Ce<br>mg / L<br>293 K | Qe<br>293 K | Ce / Qe<br>293 K |
|--------------|-----------------------|-------------|------------------|
| 20           | 0,335                 | 9,8325      | 0,03             |
| 50           | 0,184                 | 24,908      | 0,007            |
| 100          | 0,264                 | 49,868      | 0,005            |
| 200          | 1,345                 | 99,3275     | 0,014            |



Şekil 3.41. Zeolit ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Langmuir izotermi grafiği

Tablo 3.15. Kitosan ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Langmuir eşitliği değerleri

| Co<br>mg / L | Ce<br>mg / L<br>293 K | Qe<br>293 K | Ce / Qe<br>293 K |
|--------------|-----------------------|-------------|------------------|
| 20           | 0,643                 | 9,6785      | 0,0664359        |
| 50           | 0,352                 | 24,824      | 0,0141798        |
| 100          | 0,536                 | 49,732      | 0,0107778        |
| 200          | 2,475                 | 98,7625     | 0,0250601        |



Şekil 3.42. Kitosan ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Langmuir izotermi grafiği

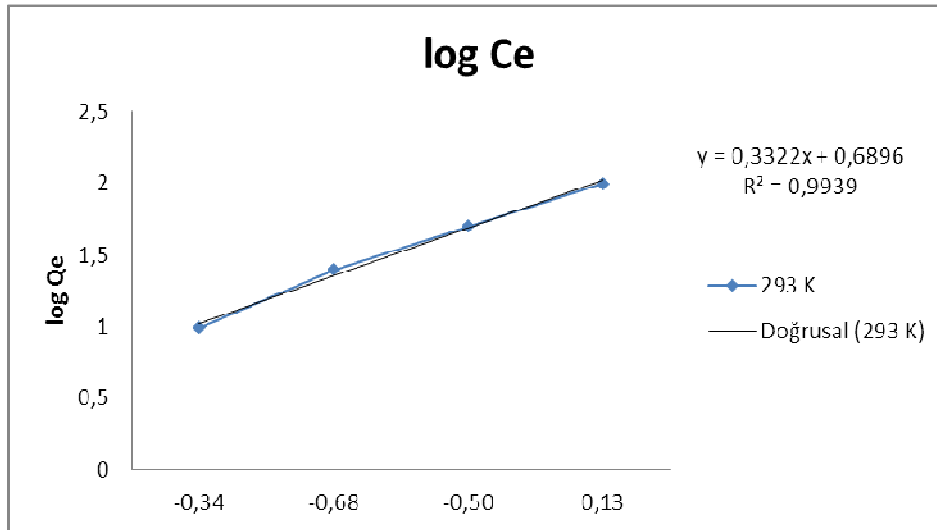
### 3.5.6. Çinko iyonu adsorpsiyonunda derişim sonuçlarının freundlich izoterm eşitliğine uygulanması

Çinko çözeltisiyle yapılan deney sonuçlarına göre yapılan Freundlich eşitliğine bağlı çalışmalar sonucu Tablo 3.16. , Tablo 3.17. ve Tablo 3.18. oluşturulmuş ve Freundlich eşitliğine bağlı grafik Şekil 3.43.' de verilmiştir.

$$(\log Q_e = \log k + n \log C_e)$$

Tablo 3.16. Perlit ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Freundlich eşitliği değerleri

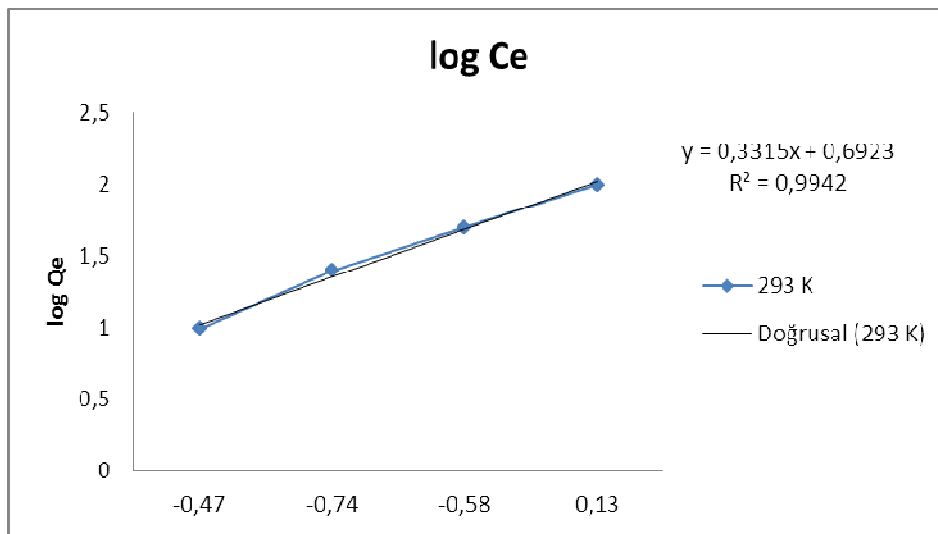
| Co<br>mg / L | Ce<br>293 K mg / L | Qe<br>293 K | Log Ce<br>293 K | Log Qe<br>293 K |
|--------------|--------------------|-------------|-----------------|-----------------|
| 20           | 0,452              | 9,774       | -0,34           | 0,99            |
| 50           | 0,2076             | 24,8962     | -0,68           | 1,40            |
| 100          | 0,3142             | 49,8429     | -0,50           | 1,70            |
| 200          | 1,3456             | 99,3272     | 0,13            | 2,00            |



Şekil 3.43. Perlit ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Freundlich izotermi grafiği

Tablo 3.17. Zeolit ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Freundlich eşitliği değerleri

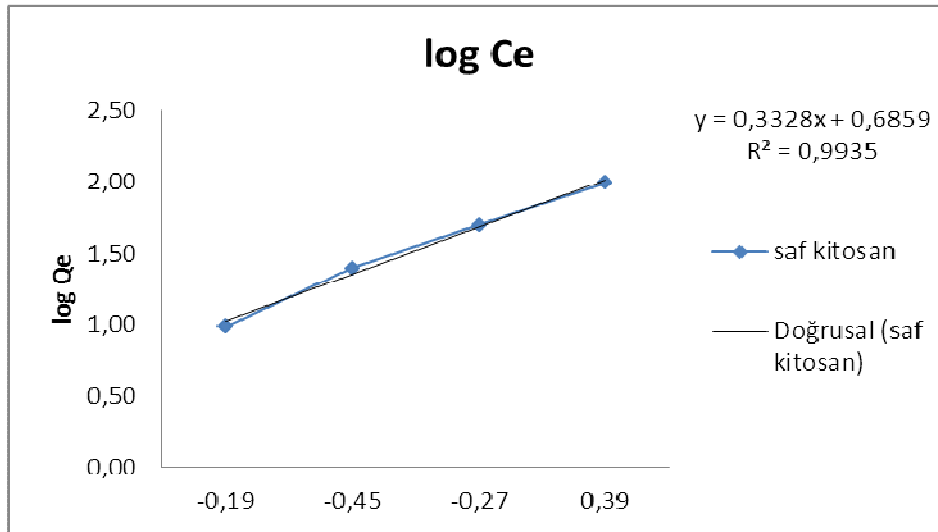
| Co<br>mg / L | Ce<br>293 K mg / L | Qe<br>293 K | Log Ce<br>293 K | Log Qe<br>293 K |
|--------------|--------------------|-------------|-----------------|-----------------|
| 20           | 0,335              | 9,8325      | -0,474955193    | 0,992663955     |
| 50           | 0,184              | 24,908      | -0,735182177    | 1,396338857     |
| 100          | 0,264              | 49,868      | -0,578396073    | -0,578396073    |
| 200          | 1,345              | 99,3275     | 0,128722284     | 1,997069505     |



Şekil 3.44. Zeolit ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Freundlich izotermi grafiği

Tablo 3.18. Kitosan ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Freundlich eşitliği değerleri

| Co<br>mg / L | Ce<br>293 K mg / L | Qe<br>293 K | Log Ce<br>293 K | Log Qe<br>293 K |
|--------------|--------------------|-------------|-----------------|-----------------|
| 20           | 0,335              | 9,8325      | -0,474955193    | 0,992663955     |
| 50           | 0,184              | 24,908      | -0,735182177    | 1,396338857     |
| 100          | 0,264              | 49,868      | -0,578396073    | -0,578396073    |
| 200          | 1,345              | 99,3275     | 0,128722284     | 1,997069505     |



Şekil 3.45. Kitosan ile yapılan çinko iyonu deneyleri için Freundlich izotermi grafiği

Perlit ile yapılan çalışmalarda Şekil 3.40. ve 3.43.'te görüldüğü üzere hesaplanan korelasyon katsayılarına göre çinko iyonu için Langmuir izoterm katsayısı 0,48, Freundlich izotermi katsayısı 0,99 olarak bulunmuştur. Zeolit ile yapılan çalışmalarda Şekil 3.41. ve Şekil 3.44.'te görüldüğü üzere hesaplanan korelasyon katsayılarına göre çinko iyonu için Langmuir izoterm katsayısı 0,54, Freundlich izotermi katsayısı 0,99 olarak bulunmuştur. Kitosan ile yapılan çalışmalarda Şekil 3.42. ve Şekil 3.45.'te görüldüğü üzere hesaplanan korelasyon katsayılarına göre çinko iyonu için Langmuir izoterm katsayısı 0,41, Freundlich izotermi katsayısı 0,99 olarak bulunmuştur. Adsorpsiyonunun Freundlich izotermine uygunluk gösterdiği saptanmıştır.

### 3.6. Freundlich Katsayılarının Hesaplanması

Her bir ağır metal için çizilen Freundlich grafikleri incelenerek eğim ve kesim noktaları hesaplanarak aşağıdaki Tablo 3.19. oluşturulmuştur.



Tablo 3.19. Freundlich sabitleri ve regresyon katsayıları

| Adsorbent |       | Bakır   | Kurşun | Çinko   |
|-----------|-------|---------|--------|---------|
| N         | 293 K | 0,7300  | 0,7500 | 0,7263  |
| K         | 293 K | -0,1060 | 0,1388 | -0,1270 |
| R         | 293 K | 0,9971  | 0,9966 | 0,9960  |

Freundlich ile ilgili sabitler incelendiğinde k değeriyle ağır metallerle klinoptilolit, perlit ve zeolit arasında oluşan afiniteyle ilgili bir ilişki söz konusu olduğuna karar verilmiştir. Çünkü en çok adsorplanan metallerin sıralamasıyla, k değerlerinin seçicilik sıralaması benzerdir. Buna göre ilgi  $Cu > Pb > Zn$  sıralamasıdır.

## BÖLÜM 4. SONUÇ VE DEĞERLENDİRMELER

Bu çalışmada Manisa Gördes klinoptilolitinin, perlitinin ve kitosanın farklı aktivasyon formlarında sulu çözeltilerden  $\text{Cu}^{2+}$ ,  $\text{Pb}^{2+}$ ,  $\text{Zn}^{2+}$  iyonlarının adsorpsiyon mekanizmasıyla giderilmesinde kullanılabilirliği araştırılmıştır.

Yapılan deneysel çalışmalar sonunda:

Kesikli çalışmada 0.4-6 g/L aralığında değişen yedi farklı aktivasyon formundaki klinoptilolit doz miktarları için 15-120 dk zaman aralığında, değişen pH değerlerinde ve iki farklı sıcaklıkta elde edilen ağır metal giderme verimleri incelenmiştir. Neticede optimum adsorbent dozunun 2 g/ L olduğu tespit edilmiştir. Optimum pH değeri incelenen literatür çalışmalarının benzeri olarak 7-9 aralığında bulunmuştur. Karıştırma süresinin en uygun değeri olan 60 dk temas süresi olarak kolon deneyleri için kabul edilmiş uygun sıcaklığın 293 K, aktivasyon çalışmalarında en iyi verim veren klinoptilolit formunun, A tipi aktivasyon olduğu belirlenmiştir.

Adsorpsiyon izotermlerinin oluşturulmasında Langmuir ve Freundlich adsorpsiyon izotermi kullanılmıştır. Langmuir izotermine ait max adsorpsiyon kapasiteleri Cu elementi perlitli çalışmalar için 99,975 mg/g zeolit çalışmaları için 99,975 mg/g, kitosanlı çalışmalar için 99,75 mg/g, Pb elementi perlitli çalışmalar için 99,79 mg/g, zeolit çalışmaları için 99,975 mg/g, kitosan çalışmaları için 99,083 mg/g, Zn elementi perlitli çalışmalar için 99,3272 mg/g, zeolitli çalışmalar için 99,3275 mg/g, kitosanlı çalışmalar için 98,7625 olarak hesaplanmıştır. Kesikli çalışmalarda ağır metallerin farklı malzemeler üzerine seçicilikleri  $\text{Cu} > \text{Pb} > \text{Zn}$  olmak üzere sıralanmıştır. Perlit ile  $\text{Cu}^{+2}$ ,  $\text{Pb}^{+2}$ ,  $\text{Zn}^{+2}$  gideriminin Freundlich izotermine uygunluk gösterdiği belirlenmiştir. Langmuir izotermine sırasıyla her bir ağır metalin 0,7517,

0,0297 ve 0,4791 'lik regresyon katsayısı ile uymadığı, Freundlich izotermine ise  $\text{Cu}^{2+}$ ,  $\text{Pb}^{2+}$ ,  $\text{Zn}^{2+}$  metallerinin 0,99 'luk korelasyon katsayısı olduğu tespit edilmiştir. Freundlich için bulunan  $n$  katsayısında yakalanan 0.99'luk değerlerin, Freundlich adsorpsiyon izotermine uygun olduğu ve bu durum tek tabakalı birikime işaret ettiği belirlenmiştir. Literatür bilgileri de bunu onaylamaktadır.

Yapılan tüm çalışmalar sonucunda, memleketimizde çok fazla miktarda olan ve maliyet açısından çok ekonomik olan Klinoptilolitin ve Perlitin  $\text{Cu}$ ,  $\text{Pb}$ ,  $\text{Zn}$  ağır metalleri için iyi bir adsorbent olduğu tespit edilmiştir. Ayrıca farklı endüstri alanlarında ağır metal giderimi açısından arıtma tesislerinin yükünü hafifletecek ünitelerde kullanılabileceği saptanmıştır. Deneysel çalışmalar ağır metal kirliliğinin yaygın olarak görüldüğü endüstriyel atık sular ile yapılacak kolon çalışmalarına uygulandığında olumlu sonuçlar alınacağına ışık tutmaktadır.

## KAYNAKLAR

- [1] M. SPRYNSKY, B. BUSZEWSKI, A.P. TERZKY, J. Namieśnik Study of the selection mechanism of heavy metal ( $Pb^{+2}$ ,  $Cu^{+2}$ ,  $Ni^{+2}$ ,  $Cd^{+2}$ ) adsorption on clinoptilolite, Journal Of Colloid and Interface Science 304 21-28, 2006.
- [2] MOORE J.W. , S. RAMAMOORTHY, Heavy Metals in Natural Waters, Springer Verlag, New York, 1983.
- [3] KABATA PENDÍAS A. , PENDÍAS H. , Trace Elements in Soils and Plants, Lewis, Boca Raton, FL,1992.
- [4] ÁLVAREZ AYUSO E. , GARCÍA-SANCHEZ A. , QUEROL X. , Water Res. 37, 4855-4862, 2003.
- [5] INGLEZAKIS V.J , LOIZIDOU M.D. , H. P. J. GRIGOROPOULOU, Colloid Interface Sci. 275 570-576, 2004.
- [6] GESELBARCHT J. , in:1996 Water Reuse Conference Proceedings, AWWA, 1996.
- [7] BAILEY S.E. , T.J. OLIN, R.M. BRICKA, D.A. D.A Dean Adrian, Water Res.33 (11) 2469-2479, 1999.
- [8] SAMSUNLU A. , Atık Suların Arıtılması, 162, İstanbul, 2011.
- [9] ATEŞ A. , Otomotiv Endüstri Atıksuyundaki Ağır Metallerin Klinoptilolit kullanılarak Adsorpsiyon Metoduyla Giderilmesinin Araştırılması, Sakarya, Şubat 2006.
- [10] BAKAR C. , BABA A. , Heavy Metals and Human Health: Environmental Health Problem From Twenty Centuries To Future Generation, 1. Tıbbi Çalışmayı, , Nevşehir, 162-185, 30 Kasım- 1 Ekim 2009.
- [11] DÖKMECİ İ. , DÖKMECİ A.H, 2005. Toksikoloji Zehirlendirmede Tanı ve Tedavi, 4.Baskı, Nobel Tıp Kitabevleri, 2005.
- [12] KABAK Y. B. , Ratlarda Deneysel Bakır Zehirlenmesinde Patolojik ve İmmunohistokimyasal Çalışmalar, Samsun, Aralık 2010.

- [13] BURTİS ve ASHWOOD, 1999; PENA ve ark., 1999; TAPIERO ve ark., 2003, Bissig ve ark., 2005; Lutsenko ve ark., 2007.
- [14] WİJEMENGA ve KLOMP, 2004.
- [15] DÜNDAR Y. , ASLAN R. , Yaşamı Kuşatan Ağır Metal Kurşunlarının Etkileri.
- [16] KİTMAN J. L. The secret history of lead. The Nation, 2000.
- [17] NRİAGU J. Saturnine Gout Among Roman Aristocrats:Did lead poisoning contribute to the fall of the empire? Ne J M, 308, 1983.
- [18] DENİZLİ A. , YAVUZ H. , Ağır Metal Toksikolojisi. Standart Dergisi, 477: 76-82. 5, 2001.
- [19] GÖKTEPELİ A, AYAN Z, ARTVİNLİ M., ŞAHİN A. , BARIŞ Y. , İnsan Sağlığı ve Jeoloji. Yeryuvarı ve İnsan, 1: 11-14, 1983.
- [20] ROONEY BL, HAYES EB, ALLEN BK, STRUTT P.J. , Development of a screening total for prediction of children at risk for lead exposure in a Midwestern Clinical Setting. Pediatrics, 93: 183-187, 1994.
- [21] KENNTNER N. , TATARUCH F. , KRONE O. , Heavy metals in soft tissue of white-tailed eagles found dead or moribund in Germany and Austria from 1993 to 2000.
- [22] Environ Toxicol Chem, 2001; 20(8): 1831-1838, 23; Cory-Clechta DA. Alterations in tissue Pb distribution and hemopoetic indices during advanced age. Arch Toxicol, 64: 31-37, 1990.
- [23] TURP S. , Perlit Ve Zeolit Kullanarak Atıksulardan Ni, Zn, Pb Giderim Verimlerinin Belirlenmesi, Sakarya, Ocak 2012.
- [24] TSİTSİSHVİLİ G. , ANDRONİKASHVİLİ T. , KİROV G. , FİLİZOVA L. , Naturel Zeolites, Elis Horwood, Chichester, 1992.
- [25] NEWASMİN J.M., CHEETHAM A.K., P. Day (Eds.), Solid State Chemistry Compounds, Oxford Univ. Press, New York, 1992.
- [26] MUMPTON F. A. , Proc. Natl. Acad. Sci. USA 96 3463-3470, 1999.
- [27] BARRER R. , Zeolites and Clay Minerals as Sorbents and Molecular Sieves, Academic Pres, San Diego, 1978.
- [28] KARABOYACI M. , Modifiye Edilmiş Lignoselülozzikler İle Ağır Metal Adsorpsiyonu, Isparta, 2010.

- [29] TCHOBANGLIOUS G., BURTON F., L., Wastewater Engineering Treatment-Disposal - Reuse. Third Edition, Mc Graw-Hill Inc. , New York, USA, 1991.
- [30] PLUM Laura M., Lothar Rink and Hajo Haase, The Essential Toxin: Impact of Zinc on Human Health, Int. J. Environ. Res. Public Health, 7, 1342-1365;doi:10,3390/ijerph7041342, 2010.
- [31] PRASAD A.S. B. Bao, BECK F.W.J, KÜÇÜK O. , SARKAR F.H. , Antioxidant Effect Of Zinc İn Humans, Free Radical Biology & Medicine, Vol. 37, No. 8, pp. 1182–1190, 2004.
- [32] KARAER H. , Modifiye Edilmiş Chitosan İle Sulu Çözeltilerden Bazik Boyar Maddelerin Adsorpsiyonun İncelenmesi, Diyarbakır, Haziran 2010.
- [33] ERDOĞAN C. B. , Cr (VI) Removal With Natural, Surfactant Modified And Bacteria Loaded Zeolites, İzmir, Haziran 2011.
- [34] DUMAN O. , Doğal Nano Killer ile Atıksulardan  $Zn^{+2}$  ve  $Pb^{+2}$  Ağır Metallerinin Giderilmesi, Konya, Eylül 2012.
- [35] HASAN S. , GHOSH T. K. , VISWANATH D. S. , BODDU V. M., Dispersion of chitosan on perlite for enhancement of copper(II) adsorption capacity, Journal Hazardous Materials, 826-837, 2007.
- [36] AMES L.L: “ The Cation sieve properties of Clinoptilolite”, The American Mineralogist, 45, pp: 689-700, 1960.
- [37] SARI B, Klinoptilolit İle Evsel Atıksulardan Gübre Etkin Maddelerin Giderim Ve Geri Kazanım Olanacağının İncelenmesi, Haziran 2010.
- [38] WAN NGAH W.S. , L. TEONG C. , HANAFIAH M.A.K.M, Adsorption of dyes and heavy metal ions by chitosan composites.
- [39] TARIM E. , Kitosan İle Sulu Çözeltilerden Krom Uzaklaştırılması, Isparta, 2011.
- [40] SOLAKOĞLU Ö.Y, TURAN D. Modifiye Edilmiş Kil ve  $Al^{+3}$  İyonunun Adsorpsiyonu.
- [41] TAYFUR M. , ÜNLÜOĞLU İ. , BENER Ö. , Alüminyum ve Sağlık. Gıda Dergisi 27(4):305-9, 2002.

## ÖZGEÇMİŞ

Müge YILMAZ 23.05.1985 yılında Adapazarı'nda doğdu. İlk ve orta öğrenimini Adapazarı'nda tamamladı. 2008 yılında Sakarya Üniversitesi Çevre Mühendisliği Bölümü'nden mezun olmuştur. Ekim2009- Nisan 2010 arasında geri dönüşüm üzerine faaliyet gösteren bir firmada görev almıştır. 2010-2011 eğitim öğretim yılında Erasmus Programı dâhilinde eğitimine yurt dışında devam etmiştir. Ocak 2012 – Mayıs 2013 döneminde atık su arıtımı üzerine faaliyet gösteren bir firmada görev almıştır.