

T.C.
SİNOP ÜNİVERSİTESİ
LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ
DİSİPLİNLERARASI ÇEVRE SAĞLIĞI ANABİLİM DALI



**ATIK ÜRÜNLERDEN ELDE EDİLMİŞ AKTİF KARBONLARIN ORGANİK
KİRLETİCİLERİN GİDERİMİNDE KULLANIMI**

SELMAN SAYAK

YÜKSEK LİSANS TEZİ

DANIŞMAN

PROF.DR. RIZA BAYRAK

SİNOP – 2025

TEZ KABUL

SELMAN SAYAK tarafından hazırlanan “**ATIK ÜRÜNLERDEN ELDE EDİLMİŞ AKTİF KARBONLARIN ORGANİK KİRLETİCİLERİN GİDERİMİNDE KULLANIMI**” başlıklı bu çalışma, 03/01/2025. tarihinde yapılan savunma sınavı sonucunda başarılı bulunarak, jürimiz tarafından **YÜKSEK LİSANS tezi** olarak kabul edilmiştir.

Başkan

Prof.Dr. Hakkı Türker AKÇAY

Recep Tayyip Erdoğan Üniversitesi / Fen Edebiyat Fakültesi

İmza

Üye

Prof.Dr. Rıza BAYRAK

(Danışman)

Sinop Üniversitesi / Fen Edebiyat Fakültesi

İmza

Üye

Doç.Dr. Ömer ELKIRAN

Sinop Üniversitesi / Sağlık Hizmetleri MYO

İmza

Enstitü Müdürü

Doç.Dr. Hüseyin Turan ARAT

.....

ETİK BEYANI

Tez Yazım Kurallarına uygun olarak hazırladığım bu tez çalışmada; tez içinde sunduğum verileri, bilgileri ve dokümanları akademik ve etik kurallar çerçevesinde elde ettiğimi, tüm bilgi, belge, değerlendirme ve sonuçları bilimsel etik ve ahlak kurallarına uygun olarak sunduğumu, tez çalışmada yararlandığım eserlerin tümüne uygun atıfta bulunarak kaynak gösterdiğimi, kullanılan verilerde herhangi bir değişiklik yapmadığımı, bu tezde sunduğum çalışmanın özgün olduğunu, bildirir, aksi bir durumda aleyhime doğabilecek tüm hak kayıplarını kabullendiğimi beyan ederim.



Selman SAYAK

ÖZET

YÜKSEK LİSANS TEZİ

ATIK ÜRÜNLERDEN ELDE EDİLMİŞ AKTİF KARBONLARIN ORGANİK KİRLİTİCİLERİN GİDERİMİNDE KULLANIMI

SELMAN SAYAK

SİNOP ÜNİVERSİTESİ LİSANSÜSTÜ EĞİTİM ENSTİTÜSÜ
DİSİPLİNLERARASI ÇEVRE SAĞLIĞI ANABİLİM DALI
DANIŞMAN: PROF. DR. RIZA BAYRAK

Bu çalışmada Sinop İli Boyabat İlçesinde yetiştirilen çeltik kabuklarından (kavuz) yüksek sıcaklıkta elde edilen aktif karbon, su buharı ile aktive edilmiş ve gümüş ile katkılanmıştır. Elde edilen gümüş katalizörlü aktif karbon nitro aromatik organik bileşiklerin ve organik boyaların katalitik indirgenmesinde kullanılmıştır. Elde edilen aktif karbonun yapısı SEM (Taramalı elektron mikroskobu) ile incelenmiş, malzemenin gözenek karakterizasyonu BET (Brunauer-Emmet-Teller) ile gerçekleştirilmiştir. Ayrıca yapıdaki gümüş varlığı ise XRD (X-ışını kırınımı) yöntemi ile belirlenmiştir. Organik kirleticilerin katalitik indirgenmesi UV-Vis spektroskopisi takip edilmiştir. Kirliliklerin giderimi, organik kirleticilerin absorbans bantlarındaki değişim ve kirlilik içeren çözeltilerdeki renk değişimleri ile kanıtlanmıştır. Sentezlenen PAC-Ag katalizörünün tekrar kullanılabilirlik potansiyeli, belirlenen reaksiyon parametreleri altında 2-nitroanilin'in katalitik indirgenmesi üzerinde araştırılmıştır. Ürün filtrasyon yöntemi ile reaksiyon ortamından geri kazanılmış, su ve etanol ile yıkandıktan sonra 4 ardışık tepkimeye aktivitesini kaybetmeden tekrar tekrar kullanılabilceği görülmüştür.

ANAHTAR KELİMELELER: Kirletici; Aktif Karbon; Katalizör.

Ocak 2025, 39 Sayfa

ABSTRACT

MSC THESIS

THE USE OF ACTIVATED CARBONS OBTAINED FROM WASTE PRODUCTS IN THE REMOVAL OF ORGANIC POLLUTANTS

SELMAN SAYAK

**SINOP UNIVERSITY INSTITUTE OF GRADUATE PROGRAMS
DEPARMENT OF INTERDISCIPLINARY ENVIRONMENTAL HEALTH
SUPERVISOR: PROF.DR. RIZA BAYRAK**

In this study, activated carbon obtained from the carbonization of rice husks grown in Boyabat District of Sinop Province at high temperature was activated with water vapor and was doped with silver. The obtained silver-catalyzed activated carbon was used in the catalytic reduction of nitro aromatic organic compounds and organic dyes. The structure of the obtained activated carbon was examined by SEM (Scanning electron microscope), the pore characterization of the material was carried out by BET (Brunauer-Emmet-Teller). In addition, the presence of silver in the structure was determined by XRD (X-ray diffraction) method. Catalytic reduction of organic pollutants was followed by UV-Vis spectroscopy. The removal of pollutants was proven by the change in absorbance bands of organic pollutants and color changes in solutions containing pollution. The reusability potential of the synthesized PAC-Ag catalyst was investigated on the catalytic reduction of 2-nitroaniline under the determined reaction parameters. The product was recovered from the reaction medium by filtration method, and after washing with water and ethanol, it was observed that it could be used repeatedly in 4 consecutive reactions without losing its activity

KEYWORDS: Pollutant; Activated carbon, Catalyst.

January 2025, 39 Pages

TEŞEKKÜR

Bu tezi yazmamda benden çok emeđi olan, onca iř yođunluđunun arasında bana zaman ayıran, anlayıřını ve alıřkanlıđını yıllardır takdir ettiđim danıřmanım Prof. Dr. Rıza BAYRAK hocama, katalitik indirgeme alıřmalarındaki desteklerinden tr Prof. Dr. Talat BARAN hocama, laboratuvar alıřmalarındaki desteklerinden dolayı Arř.Gr.Dr. Zehra ZİFİ'ye, desteđini her zaman hissettiđim kıymetli eřime, canımdan ok sevdiđim kızlarıma ve yine varlıklarıyla bana destek olan deđerli mesai arkadařlarıma, sevgili đrencilerime sonsuz teřekkr bor bilirim.

Selman SAYAK

İÇİNDEKİLER

Sayfa

TEZ KABUL	ii
ETİK BEYANI.....	iii
ÖZET	iv
ABSTRACT.....	v
TEŞEKKÜR	vi
İÇİNDEKİLER	vii
TABLolar DİZİNİ	viii
ŞEKİLLER DİZİNİ	ix
GÖRSELLER DİZİNİ	x
SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ	xi
1. GİRİŞ	1
1.1. Kirlilik Türleri.....	2
1.2. Çevresel Kirlletici Olarak Boyar Maddeler	3
1.4. Katalitik İndirgeme	5
1.5. Aktif Karbon	5
1.5. Çeltik (Pirinç)	8
2. MATERYAL VE YÖNTEM.....	10
2.1. Kullanılan Alet ve Cihazlar	10
2.2. Kullanılan Kimyasal Maddeler	10

2.3. Çeltiğin Aktif Karbon Üretimine Hazırlanması.....	10
2.4. Aktif Karbon Üretimi (PAC)	10
2.5. Ag(0) Katkılı Aktif Karbon Üretimi (PAC-Ag)	11
2.6. PAC-Ag katalizörü varlığında nitroaromatiklerin katalitik indirgenmesi için genel yöntem	11
2.7. PAC-Ag katalizörü varlığında organik boyaların katalitik indirgenmesi için genel yöntem	11
3. BULGULAR VE TARTIŞMA.....	12
3.1. Elde Edilen Aktif Karbon (PAC) ve Katalizörün (PAC-Ag) Karakterizasyonu	12
3.2. PAC-Ag katalizörünün Kirleticiler Üzerindeki Katalitik Etkisi.....	16
4. ÖNERİLER	24
KAYNAKLAR	25
ÖZGEÇMİŞ	28

TABLÖLAR DİZİNİ

Sayfa

Tablo 1. PAC-Ag katalizli çevre kirleticilerinin indirgenmesi için optimizasyon parametreleri. (Reaksiyon Şartları: [nitroaromatikler]= 1.0×10^{-4} M, [organik boyalar]= 1.0×10^{-5} M, [NaBH ₄]=0.05 M))	18
--	----



ŞEKİLLER DİZİNİ

Sayfa

Şekil 1 Hava kirliliği.....	2
Şekil 2 Toprak kirliliği.....	3
Şekil 3 Su kirliliği	4
Şekil 4 Fiziksel aktivasyon gösterimi	7
Şekil 5 Çeltik sapı	9
Şekil 6 Çeltik kavuzu (kabuğu).....	9
Şekil 7 PAC numunesine ait SEM görüntüleri	12
Şekil 8 PAC-Ag numunesine ait SEM görüntüleri	13
Şekil 9 PAC'ye ait BET izotermi.....	14
Şekil 10 PAC'ye ait gözenek dağılımı.....	15
Şekil 11 PAC-Ag'nin x-ışını kırınım deseni.....	16
Şekil 12 PAC-Ag katalizörü varlığında a) 2-nitroanilin, b) 4-nitrofenol, c) 4-nitroanilin ve d) 4-nitro-o-fenilendiamin'in katalitik indirgenmelerine ait UV-Vis spektrumları...	20
Şekil 13 PAC-Ag katalizörü varlığında a) 2-nitroanilin, b) 4-nitrofenol, c) 4-nitroanilin ve d) 4-nitro-o-fenilendiamin'in katalitik indirgenmelerinin reaksiyon süresine karşı ln (ct/c0) grafikleri	21
Şekil 14 PAC-Ag katalizörü varlığında a) metil oranj b) rodamin B ve c) metilen mavisi organik boyalarının katalitik indirgenmelerine ait UV-Vis spektrumları.....	22
Şekil 15 PAC-Ag katalizörü varlığında a) metil oranj ve b) rodamin B, boyalarının katalitik indirgenmelerinin reaksiyon süresine karşı ln (ct/c0) grafikleri.....	23

SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ

Kısaltmalar

BET	: Brunauer Emmett Teller
SEM	: Taramalı Elektron Mikroskopisi
UV-Vis	: Morötesi ve-Görünür Bölge Spektroskopisi



1. GİRİŞ

Çevre; insanların ve diğer canlıların yaşamlarını sürdürdükleri ve iki taraflı olarak etkileşim içinde bulundukları fiziki, biyolojik, sosyal, ekonomik ve kültürel ortamların bütünüdür (Kayan, 2018). İnsan bu ortam içerisindeki yaşantısı ile onu çeşitli şekillerde kirletmektedir, zaman içerisinde teknolojinin gelişmesi ile kirlilik miktarı artmakta ve çeşitlenmektedir.

Çevre kirliliği, çevreye ve/veya insan sağlığına potansiyel zarar verebilen bir maddenin/maddelerin çevrede bulunması olarak tanımlanabilir (Briggs, 2003). Çeşitli kaynaklardan meydana gelen katı, sıvı ve gaz fazındaki kirleticilerin hava, su ve toprakta büyük yoğunlukta birikmesi çevre kirliliğini oluşturmaktadır. Bu kirliliklerin önemli bir kısmını temel yaşam ihtiyacı olan su kaynaklarının kozmetik, tekstil, boyama, baskı, gıda ve kâğıt sektörlerinden gelen boyar maddeler ile kirletilmesi oluşturmaktadır (Karaçetin, 2007). Düşük ve orta gelir düzeyine sahip ülkelerde artan çevre kirliliği nedeniyle son 25 yılda kirliliğe bağlı ölüm ve hastalıklar önemli ölçüde artmıştır (Cohen, 2018).

Özellikle 21. yüzyılda kimya sanayisindeki gelişmeler ile üretilen kimyasallar, insanların yaşam standartlarını iyileştirse de beraberinde problemi doğurmuştur. Kimyasalların tehlikesi, hatalı kullanımı, yanlış depolanması, taşınması ve doğal afetler gibi durumlarda kontrolsüz çevreye karışması sonucu oluşmaktadır (Vörösmarty, 2000). Petrol, ilaç, boya, tekstil, kâğıt vb. endüstriyel alanlarda kullanılan kimyasallar içme sularını kirletmesi sonucu insan sağlığını çok büyük tehlike altına sokmuştur (Karaoğlu, 2007).

Bu kimyasal kirleticilerden boyalar, çevre kirliliğinin önemli kısmını oluşturmaktadır. Dünyada yıllık ortalama 800000 ton sentetik boyar madde üretilmekte ve üretilen boyaların %15-60'ı yani 280000 ton sentetik boya atık sular ile çevreye karışmaktadır (Berradi, 2019).

1.1. Kirlilik Türleri

Farklı kirlilik türleri mevcuttur, ancak hava, su ve toprak kirliliği olmak üzere üç ana başlıkta incelenmesi mümkündür (Ukaogo, 2020).

Hava Kirliliği, havada insan, hayvan, bitki ve diğer tüm canlı veya cansız varlıklara zarar verebilecek derişimlerde bulunan kimyasal bileşiklerin mevcut olma durumu olarak tanımlanabilir (Şekil 1). Genel olarak hava kirliliği, atmosferin doğasında bulunmayan ancak varlığıyla hava kalitesinde bir düşüşe neden olan kimyasal maddelerden kaynaklanan bir durumdur. Hava kirliliği, küresel ısınma ve ozon tabakasının incelmesinden dolayı, dünya üzerindeki canlı ve cansız yaşam üzerinde olumsuz değişikliklere neden olmaktadır. Kirleticilerin hava içerisindeki konsantrasyonları ve etkileri, kirlenmeyi oluşturan kaynağa, kirliliğin biçimine ve kirliliğin oluştuğu koşullara bağlı olarak değişmektedir. Yaygın kirleticiler kükürt oksitler (özellikle SO_2), uçucu organik bileşikler (UOB'ler), nitrojen oksitler (NO ve NO_2), ve karbon monoksittir (CO) (Ukaogo vd., 2020). İnsan ve diğer canlıların sağlıklı ortam şartlarına ulaşabilmesi için atmosferik ortamdan UOB'lerin giderilmesi gerekmektedir (Zhang vd., 2021). Atmosferden UOB'lerin giderilmesi için yaygın olarak; kataliz oksidasyonu, biyofiltrasyon, absorpsiyon, adsorpsiyon, yoğunlaştırma ve membran ayırma teknolojileri kullanılmaktadır (Batur, 2021).



Şekil 1. Hava kirliliği (TRT Haber, 2024)

Toprak kirliliği, büyük çoğunlukla insan etkinlikleriyle, toprağın yapısının fiziksel, kimyasal, biyolojik ve jeolojik açıdan bozulmasıdır (Şekil 2). Toprak kirliliği, yanlış tarım tekniklerinin uygulanması, yanlış ve fazla gübre ile tarımsal mücadele ilaçlarının kullanımı, atık ve artıkları, zehirli ve tehlikeli maddelerin toprakta birikmesi sonucunda ortaya çıkmaktadır (Karaca ve Turgay, 2012). İnsanlar toprağa doğrudan ya da dolaylı olarak birçok etki yapmaktadır. Toprak kirlenmesi, insanların aşırı ve yanlış temizleyici kimyasal kullanımı, tarım ilaçlarının bilinçsizce tüketimi, evsel, tıbbi ve sanayi atıklarının geri dönüşümünde var olan yetersizlikler ve asit yağmurlarından etkilenir. Çürüyebilen maddelerin doğal olarak karşılaştıkları dönüştürme olayı yetersiz kalacak olursa aynı sorun ortaya çıkabilir (Karaca ve Turgay, 2012).



Şekil 2. Toprak Kirliliği (TRT Haber, 2019)

Su insan ve diğer canlıların mevcudiyeti açısından esansiyeldir. Canlılığın var oluşundan bugüne su, içme, temizlik, tarım faaliyetleri, sanayi uygulamaları, taşıma, canlının ve dünyanın ısı dengesi, yaşam ortamı oluşturmaları, elektriksel iletkenlik gibi birçok açıdan vazgeçilmez bir maddedir. Gelişmekte olan ülkelerdeki sağlık sorunlarının çoğu, büyük ölçüde güvenli içme suyunun bulunmamasından kaynaklanmaktadır (Osagie vd., 2021). Bir tahmine göre, gelişmekte olan ülkelerdeki

tüm enfeksiyonların %80'i ve ölümlerin 1/3'ten fazlası kirli içme suyu kullanımından kaynaklanmaktadır. Dünya Sağlık Örgütü (WHO) 2021 yılı raporuna göre, kirli su ve sanitasyon yetersizliği nedeniyle yılda yaklaşık 600 milyon ishal ve dizanteri vakası ve binlerce bebek ölümü gerçekleşmiştir. Yer yüzünde içilebilir ve tüketilebilir su miktarının yalnızca %0,3 olduğu düşünüldüğünde, su kaynaklarının evsel ve sanayi faaliyetleri nedeniyle kirlenmesi tüketilebilir su kaynaklarının sona ermesi riskiyle ciddi bir çevre problemidir. Su kirliliği, büyük miktarlarda kentsel, endüstriyel ve tarımsal kaynaklı kirleticilerin (organik ve mineral) kullanımından kaynaklanmaktadır (Osagie vd., 2021). Başta tekstil endüstrisi ve birçok endüstriyel işlemlerde yaygın olarak kullanılan sentetik boyar maddeler alıcı su ortamlarının ana kirletici kaynaklarından birisidir (Şekil 3). Yapılan bazı çalışmalar, özellikle tekstil üretiminde kullanılan bu boyar maddelerin herhangi bir işlem uygulanmadan biyosfere salınması durumunda çevre için büyük felaketlere neden olabileceğini göstermiştir (Othmani vd. 2019).



Şekil 3. Su kirliliği (TRT Haber, 2021)

1.2. Çevresel Kirletici Olarak Boyar Maddeler

Organik kirleticiler, daha ziyade sentetik organik maddeler vasıtasıyla oluşan kirlilik türüdür. Bunlara örnek olarak çok halkalı aromatik hidrokarbonlar, poliklorlu bifeniller, klorlu çözücüler, böcek ilaçları, benzen türevleri, fenol ve türevleri, sentetik boyalar gibi maddeler verilebilir (Attia, 2018). Bu kapsamda, sentetik organik boyar maddeler

ve nitro grup içeren aromatik bileşikler insan sağlığı açısından riskli sayılabilecek grupta oldukları için bunların yaşam ortamından bertaraf edilmesi bilim insanları tarafından uğraş sebebi olmuştur.

Nitro aromatik bileşiklerin ve organik boyar maddelerin sucul ortamlardan arıtılması, bu bileşiklerin kanserojenik, mutajenik ve teratojenik olması sebebiyle oldukça önemlidir. Son yıllarda atık su arıtma yöntemleri önemli oranda değişiklik göstermiştir. Bu kapsamda sözü edilen teknikler; elektrokimyasal, katalitik, fotokatalitik, iyon değişimi, membran filtrasyonu olarak sıralanabilir. Bu yöntemlerin tercihinde giderim verimleri, maliyetleri, tasarımları ve uygulama kolaylıkları gibi özellikler dikkate alınmaktadır. Bu tez kapsamında nitroaromatik bileşiğin yanında organik boyar maddelerin (metil oranj, metilen mavisi ve Rodamin B) katalitik indirgenmesi ile giderimlerinin araştırılması hedeflenmiştir.

1.3. Katalitik İndirgeme

Organik boyalar ve nitro aromatik bileşikler genellikle elektron çekme potansiyeli olan bileşiklerdir ve bu nedenle katalizör varlığında indirgenme yöntemleri giderimlerinde tercih edilmektedir. Bu yöntemlerde indirgeyici ajan olarak farklı bileşiklerin yanında NaBH_4 tercih edilmektedir. İndirgenme ile giderim hususlarında etkili katalizör tasarımı da proses performansı için önemli bir parametredir. Bu kapsamda biyokütlelerden elde edilmiş gümüş katkılı aktif karbon kullanımı da hibrit katalizörlerin etkinliklerinin değerlendirilmesi açısından dikkatleri üzerine çekmektedir.

Farklı kaynaklardan elde edilen biyokütlelerin içerisinde tarımsal kaynaklı (tezek, saman, sap vb.) biyokütleler önemli bir yer tutmaktadır. Bu tip kaynaklarının tercih edilme nedeni yenilenebilir ve ucuz olmasıdır. Ayrıca ülkemizde bitkisel kaynaklı biyokütle temini de oldukça kolay ve ulaşılabilir.

1.4. Aktif Karbon

Aktif karbon, büyük kristal formu ve geniş iç gözenek yapısı ile karbonlu adsorbentleri tanımlamada kullanılan genel bir terimdir. Endüstriyel aktif karbon genelde antrasit, kok, linyit, turba kömürlerinden, odundan ayrıca kemik, fındık ve pirinç kabuğu gibi atıklardan farklı fiziksel ve kimyasal işlemler ile elde edilebilmektedir. Bileşim olarak büyük çoğunluğunu karbon elementinin oluşturduğu, bunun yanında diğer ametalleri de içerebilen adsorban malzemelerin genel adı aktif karbondur.

Aktif karbonun en önemli uygulama alanları arasında sudan tat, koku, renk verici ve istenmeyen organik kirlileticilerin uzaklaştırılması işlemleri sayılabilir. Son yıllarda aktif karbonun hidrometalurji alanında altın, gümüş ve molibdenin geri kazanılması ile ilgili proseslerde kullanımı giderek artmaktadır. Günümüzde aktif karbon doğrudan veya dolaylı yollarla da olsa gündelik hayatımızın vazgeçilmez bir parçası haline gelmiştir (Lussiervd., 1994). Aktif karbon, mikro poröz yapısı ve yüksek yüzey alanı özelliklerinden dolayı atık sulardan boyar maddelerin ve ağır metallerin adsorpsiyon tekniği ile uzaklaştırılmasında etkili bir adsorbandır (Thomas, 2008, Zhang vd. 2014).

Gözenekli bir yapıya sahip olan aktif karbonun 1 gramındaki yüzey alanı, 300 – 2000 m² kadar olabilmektedir. Aktif karbonu, bu denli önemli bir adsorbent haline getiren özelliklerin başında yüzey alanının büyüklüğü gelir (Karataş, 2017, Özdemir, 2013). Yüzey alan fazlalığı metal katkılı katalizör uygulamalarında ise temas yüzeyinin fazlalığından doğan avantajları ile de öne çıkmaktadır.

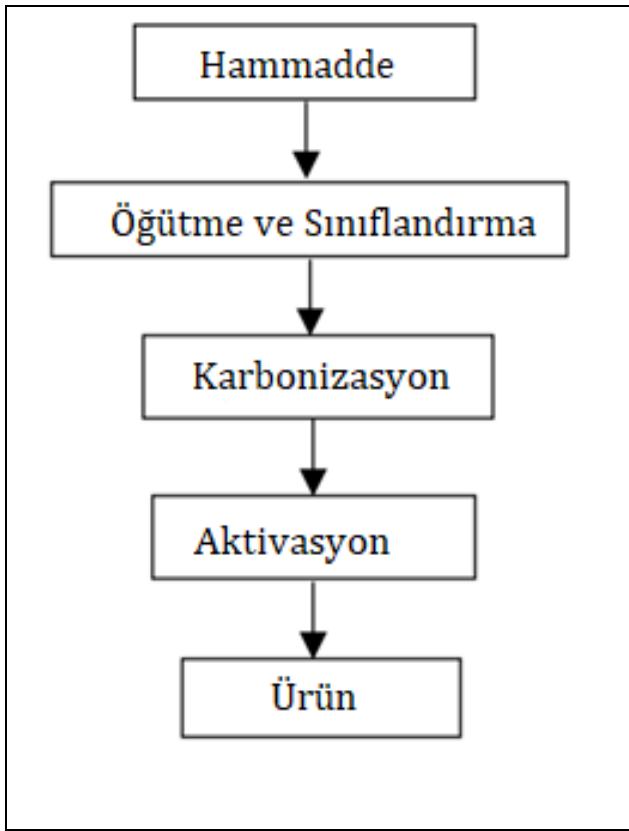
Ülkemiz aktif karbon üretiminde hammadde olarak kullanılabilecek birçok kaynağa sahiptir. Bu kaynaklar arasında karbon içeriği yüksek, rezervi bol linyit, biyokütle (odun talaşı, meyve çekirdekleri ve kabukları vb.) ve endüstri atıkları yer almaktadır (Hopa vd. 2016). Bu tez kapsamında ise aktif karbon kaynağı olarak çeltik kabuğu kullanılmıştır.

Aktif karbon üretim aşamaları, hammadde hazırlanması (öğütme), piroliz (karbonizasyon) ve aktifleştirme şeklinde sıralanabilir (Şekil 4). Karbonizasyon aşaması ekseriyetle inert ortamda 400°C ila 500°C sıcaklıkta gerçekleştirilir. Piroliz reaksiyonundan sonraki aşama ise aktivasyon aşamasıdır. Fiziksel aktivasyon ve kimyasal aktivasyon olmak üzere iki farklı aktivasyon işlemi şeklinde gerçekleştirilebilir.

Kimyasal aktivasyon ise iki şekilde gerçekleştirilebilir. Birinci yöntemde; piroliz öncesi hammadde NaOH, KOH, FeCl₃, H₂SO₄, H₃PO₄, K₂CO₃, ve ZnCl₂ gibi aktifleştirme ajanları ile düşük sıcaklıklarda muamele edilerek hammaddenin poröz yapısı artırılıp daha sonra piroliz işlemine tabi tutulmaktadır. İkinci yöntemde ise; piroliz sonrası elde edilen karbonsu madde, aktifleştirme ajanları ile muamele edilerek poröz yapısı geliştirilmekte ve yüzeyine aktif gruplar entegre edilebilmektedir (Auta, 2011).

Fiziksel aktivasyon, piroliz sonucu elde edilen katı maddeyi 700 °C ila 1100 °C sıcaklıkta CO₂, su buharı, hava ya da bunların belli bir karışımı olacak şekilde tekrar ısı ile muamele edilerek gerçekleştirilmektedir (Yang, 2010). Buhar, CO₂ veya yanma gazı ürünleri fiziksel aktivasyonda kullanılan başlıca aktive edici maddeler olmakla birlikte;

SO₂, klor, amonyak gibi gazlar da aktivasyon amacıyla kullanılmaktadırlar. Endüstride CO₂ ve buhar en çok kullanılan fiziksel aktive edicilerdir (Angın, 2014). Fiziksel aktivasyonun önemli avantajları arasında, aktif karbon üretimini mümkün kılan hammaddenin şeklini ve dokusunu koruma olasılığı ve aktif karbon üretiminin nispeten düşük maliyeti yapılması yer almaktadır. Yine de fiziksel aktivasyon, 2000 m²/g'den daha küçük bir yüzey alanına sahip aktif karbonlar üretir. Ek olarak, iki farklı yüksek sıcaklıkta karbonizasyon süreci yüksek enerji maliyeti sağlar ve hammaddenin kütlesi %70'e kadar azalır. Bu tez kapsamında da fiziksel aktivasyon tercih edilmiştir.



Şekil 4. Fiziksel aktivasyon gösterimi (Özkeser, 2022)

Bir aktif karbonun hangi formda olacağı ve aktif karbonun hangi maddeden elde edileceği kullanım alanına göre farklılık gösterebilmektedir. Yaygın olarak kullanılan hammaddeler gıda atık kökenli olup, odun, biyokütle atıkları, zirai atıklar, gıda sert çekirdekleri ve kabukları, gıda endüstrisi atıkları, kömür, linyit, turba gibi kolay bulunabilen ve düşük maliyetli atıklardır. (Ozmak, 2010).

Birçok farklı maddeden aktif karbon üretilebilmektedir. Üretimde kullanılacak olan aktif karbona ait ham madde seçimi yapılırken, ilgili ham maddenin bazı kriterleri

sağlaması gerekmektedir. Kullanılacak olan ham maddenin; yüksek karbon içeriği, düşük inorganik bileşeni, kolay elde edilir olması, maliyetinin düşük olması, depolanma esnasında herhangi bir bozulma meydana gelmemesi gibi kriterleri sağlaması gerekmektedir (Döşemen, 2009).

Türkiye ve dünyada çeşitli amaçlar ile kullanılan aktif karbonun büyük çoğunluğu sentetik üretimle ve yüksek karbon içerikli kömürden elde edilen ham maddelerdir. Elde edilen ham maddenin üretimi zahmetli olmakla birlikte, büyük çoğunluğu ihraç edildiğinden ekonomik de değildir. Ancak son yıllarda ekonomik değeri olmayan tarımsal atıklardan aktif karbon üretilmesiyle ilgili çalışmaların sayısı artmıştır. Bu amaçla gerçekleştirilen çalışmalarda en çok kullanılan maddeler arasında; badem çekirdeği kabuğu, fındikkabuğu, kayısı çekirdeği, zeytin çekirdeği, hindistan cevizi kabuğu, ceviz kabuğu, nar kabuğu, pirinç kabuğu ve pirinç sapı yer almaktadır.(Özçifçi, 2019, Karakaş, 2017, Özkeser, 2022).

1.5. Çeltik (Pirinç)

Buğdaygiller ailesinden olan çeltik (*Oryza sativa*) daha çok nemli ve sulak ortamları sevmektedir. Türkiye ve Dünya’da çok fazla üretim ve tüketim hacmine sahip olan pirincin en az 8000 yıldır tarımının yapıldığı arkeolojik bulgular ile sabitlenmiştir.

Türkiye’de çeltik üretimi (Özellikle Marmara ve Karadeniz bölgelerinde) 100.000 hektarlık ekili alanda yapılmaktadır. Çeltik tarlalarında hasattan sonra kalan çeltik sapları (Şekil 5) çok sert bir yapıya sahip olmasından dolayı, çeltiklerin hazırlanması, çuvalanmasını, taşınmasını zorlaştıran en önemli faktördür. Çeltik üretimi esnasında açığa çıkan kabuk (kavuz) (Şekil 6) ise toz formda bir maddedir. Bu madde ciddi solunum yolu ve alerjik reaksiyonlara, deride kaşıntı ve döküntülere sebep olmaktadır. Tarlada kalan sap miktarı yaklaşık 350 kg/da’dır. Pirinç sapları, toprağa karışma maliyetinin yüksek olması ve yüksek kül içeriğinden (%18-20) dolayı ayrışma zorluğu sebebiyle yasa koyucu tarafından yasaklanmasına rağmen yakılmaktadır. Ancak, çeltik saplarının yakılması, topraktaki azot, fosfor ($\approx$ % 25), potasyum ($\approx$ % 20) ve kükürt (% 5-60) gibi maddelerin kaybolmasına, hava kirliliği ve yangın tehlikesi gibi olumsuz etkilere neden olabilir (Elekçioğlu ve Tülek, 2009, Özkeser, 2022, Akçay, 2014).

Çeltik bitkisinin yaklaşık %60’ı samandır. Bu saman toprak seviyesinden kesildiğinde %53’ü yaprak ve pirinç tanesinin etrafını kaplayan kabuk kısmı olan kavuz, %44’ü kök ve %3’ü de salkım kısmıdır. Çeltik ülkemizde bol miktarda bulunan bir biyokütledir.



Şekil 5. Çeltik sapı

Çeltiğin en önemli iki atığı kavuz ve saptır. Çeltik ağırlığının yaklaşık %20'si kavuzdan oluşmaktadır. Düşük besin değeri, düşük yoğunluğu ve sert yapıları nedeniyle çeltik kavuzlarının kullanımı sınırlıdır (Chen vd., 2012). Ülkemizde çeltikten elde edilen kavuzlar genellikle tavuk çiftliklerinde zemin malzemesi olarak, sap/saman kısımları ise yakılarak elektrik üretiminde, ısınmada veya bazı pirinç üretim tesislerinde pirincin kurutulması aşamasında kullanılmaktadır. Ancak küldeki alkalin ve klor bileşenleri kazanı kirletmekte ve hatlarda korozyona neden olmaktadır. Yakma işlemi ile elde edilen atık kül ise yol yapımında, anorganik karakterinden dolayı çimento-tuğla imalatında dolgu maddesi olarak kullanılabilir.



Şekil 6. Çeltik kavuzu (kabuğu)

2. MATERYAL VE YÖNTEM

2.1. Kullanılan Alet ve Cihazlar

XRD : Rigaku SmartLab
SEM : JEOL JSM 6610
BET : Quantachrome Autosorb iQ2
UV-VIS Spektrofotometre : Genesys 10 spectrophotometer

2.2. Kullanılan Kimyasal Maddeler

orto-Fosforik asit H_3PO_4

Gümüş Nitrat $AgNO_3$

2-nitrofenol

4-nitrofenol

2-fenilendiamin

Metilen mavisi

Metil oranj

Rodamin B

2.3. Çeltiğin Aktif Karbon Üretimine Hazırlanması

Aktif karbon üretimi için kullanılacak çeltik kabuğu ve samanı Sinop İli Boyabat İlçesi'nde bir çiftçiden temin edilmiştir. Öncelikle atık madde öğütülerek toz haline getirilmiş daha sonra otomatik elek yardımıyla boyutlandırılarak sonraki işlemler için toplanmıştır.

2.4. Aktif Karbon Üretimi (PAC)

Etüvde kurutulan toz çeltik kavuzu yüksek sıcaklığa dayanıklı porselen krozede 100 mL/dk inert N_2 akış hızında ve 800°C sıcaklıkta su buharı aktivasyonu ile kül fırınında

karbonize edildi. Karbonizasyon işleminden sonra elde edilen ürüne 20 mL HCl çözeltisi ilave edildi. Isıtcılı manyetik karıştırıcı üzerinde 1000 rpm’de karıştırılarak 85°C’ de 20 dakika kaynatıldı. Katı kısım vakumda süzme işlemi ile ayrılarak pH nötr oluncaya kadar saf su ile yıkandı. Elde edilen ürün etüvde 80°C’ de kurutuldu.

2.5. Ag(0) Katkılı Aktif Karbon Üretimi (PAC-Ag)

Deneysel çalışmanın bu aşamasında elde edilen malzeme metalik Ag ile katkılandırılmıştır. Bu amaçla Ag(0) kaynağı olarak AgNO₃ tuzu kullanıldı. Bunun için 0,2 g aktif karbon tartılarak 20 mL etanole alındı ve ultrasonik banyoda oda sıcaklığında 10 dk. disperse edildi. Daha sonra karışıma aktif karbonun %20’ si oranında (40 mg) AgNO₃ ilave edilerek 1 saat boyunca oda sıcaklığında, ardından 1 gece boyunca geri soğutucu altında kaynatılarak karıştırıldı. Reaksiyon süresi sonunda elde edilen ürün santrifüj ile ayrılarak 3 kez saf su ve 3 kez etanolle yıkanarak 65°C’ de etüvde kurutuldu.

2.6. PAC-Ag katalizörü varlığında nitroaromatiklerin katalitik indirgenmesi için genel yöntem

1 mL nitro aromatik (1×10^{-4} M) ve 0,25 mL NaBH₄ (0,05 M) bir kuvars küvete aktarıldı ve oda sıcaklığında 2 dakika karıştırıldı. Daha sonra, PAC-Ag katalizörü reaksiyon karışımına eklendi ve reaksiyonların ilerlemesi UV-Vis spektrofotometrisi ile nitro aromatiklerin sahip olduğu karakteristik absorpsiyon bantlarındaki değişikliklerin izlenmesi ile kontrol edildi. İndirgeme reaksiyonları sonrasında PAC-Ag katalizörü filtrasyon ile geri kazanıldı, su ve etanol ile yıkanarak geri dönüştürülebilirlik çalışmalarında kullanılmak üzere kurutuldu.

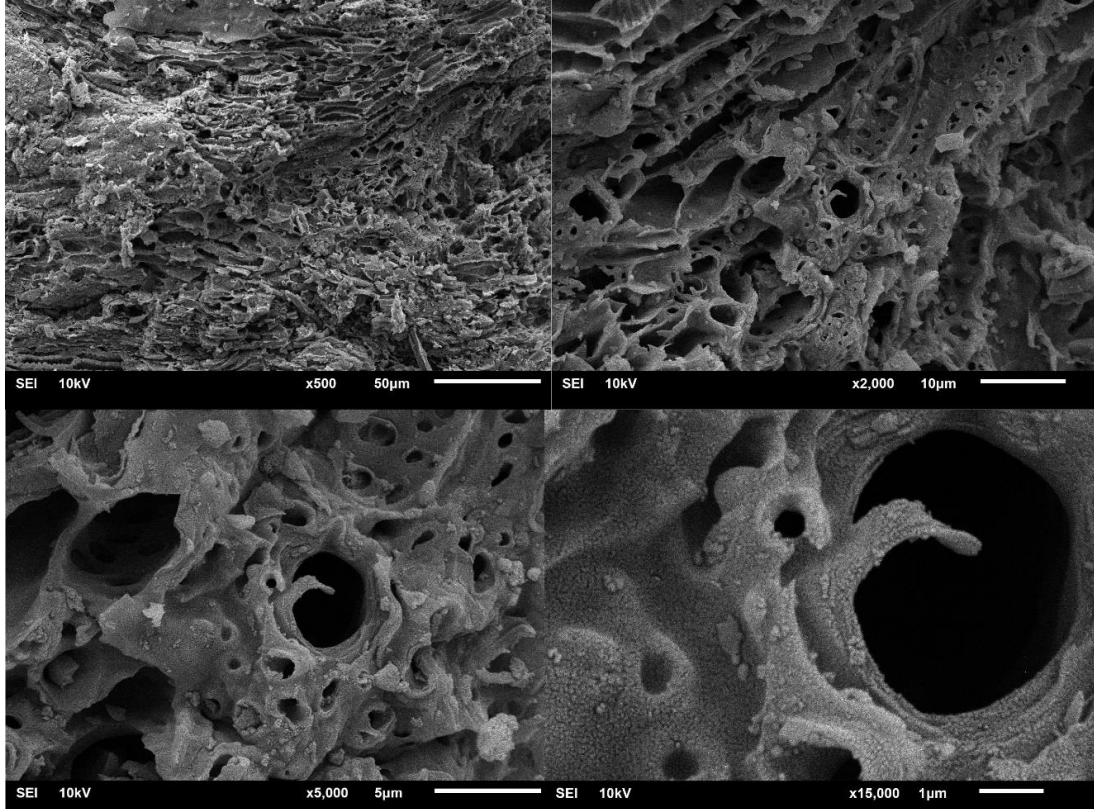
2.7. PAC-Ag katalizörü varlığında organik boyaların katalitik indirgenmesi için genel yöntem

1 mL organik boya (1×10^{-5} M), 0,25 mL NaBH₄ (0,05 M) ve 3 mg AC-Ag katalizörü bir kuvars küvete aktarıldı ve oda sıcaklığında karıştırıldı. Katalitik reaksiyonların ilerlemesi, reaksiyon süresi boyunca metil oranj, metilen mavisi ve Rodamin B boyaları için sırasıyla 464 nm, 663 nm ve 552 nm'deki karakteristik bantlardaki değişikliklerin kaydedilmesi ile izlendi. İndirgemenin tamamlanmasının ardından, PAC-Ag katalizörü yukarıda belirtilen yöntemle benzer bir yöntem kullanılarak, reaksiyon ortamından kurtarıldı, yıkandı ve kurutuldu.

3. BULGULAR VE TARTIŞMA

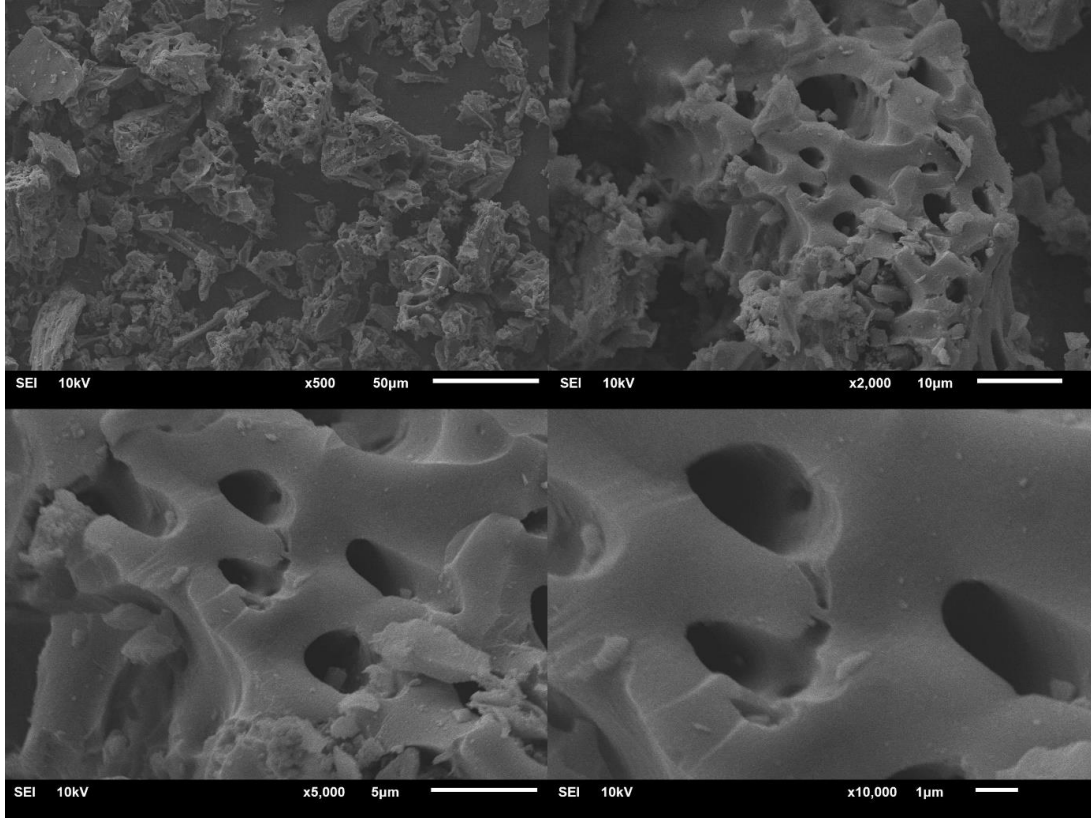
3.1. Elde Edilen Aktif Karbon (PAC) ve Katalizörün (PAC-Ag) Karakterizasyonu

Aktif karbon numunesinin su buharı ile aktivasyonunda 100 mL/dk inert N₂ akış hızında ve 800 °C sıcaklıkta aktifleştirilmesi ile elde edilen aktif karbonun (PAC) yapısı SEM (Taramalı Elektron Mikroskobu) ile incelenmiştir. SEM ile mezo ve nano boyuttaki gözenekliliği incelemek için uygun değildir. Bu malzemenin gözenek karakterizasyonu BET (Brunauer-Emmet-Teller) yöntemi ile de yüzey alanı ölçümü gerçekleştirilmiştir. PAC ve PAC-Ag'nin SEM görüntüleri incelendiğinde malzemenin aktivasyon aşamasında gözenekliliğini kaybetmediği görülmektedir. Şekil 7'deki hiyerarşik kanallı yapı malzemenin doğal gözenekli yapısını aktivasyon işleminden sonra da koruduğunu göstermektedir.



Şekil 7. PAC numunesine ait SEM görüntüleri

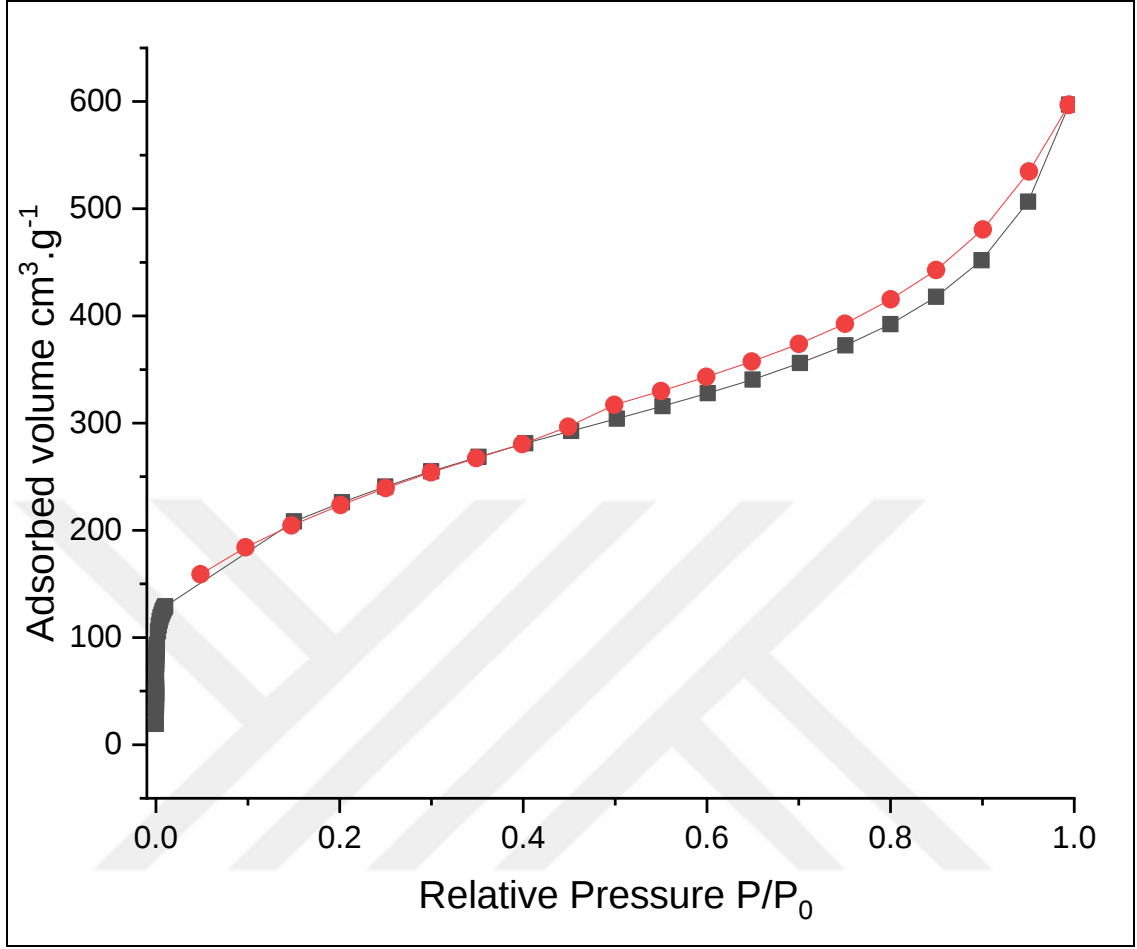
PAC'ye Ag katkılanması ile elde edilen PAC-Ag'nin SEM görüntüleri incelendiğinde de benzer bir sonuç görülmektedir. Şekil 8'de görüldüğü gibi malzemenin gözenekli yapısında önemli bir değişiklik meydana gelmemiştir. Öte yandan SEM görüntüleme tekniği 50 nm'nin altında tanımlanan mezo ve mikro gözenekleri belirlemede ve yapı üzerine nano düzeyde yerleşmiş Ag atomlarını görüntülemede yetersiz kalmaktadır. Bu sebeple malzemenin gözenekliliği daha ayrıntılı olarak BET yöntemi ile yapıdaki metalik Ag varlığı ise XRD ile belirlenmiştir.



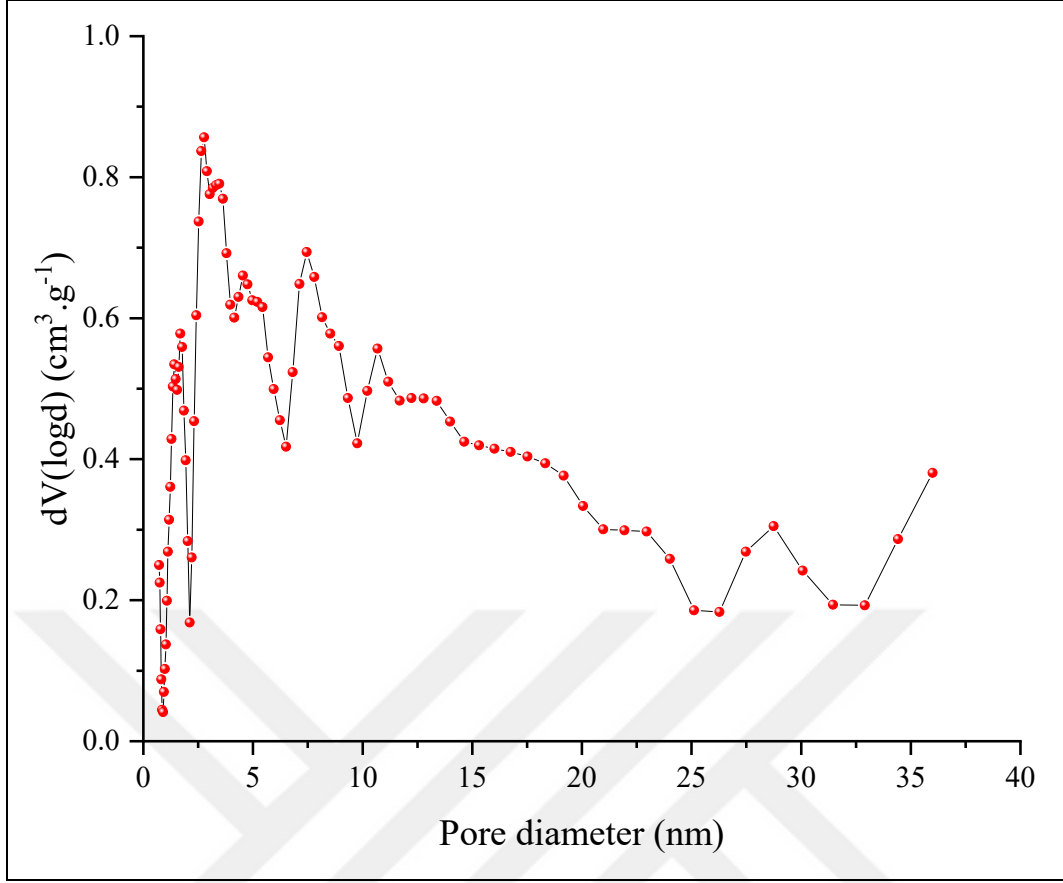
Şekil 8. PAC-Ag numunesine ait SEM görüntüleri

PAC'nin yüzey alanı ve gözeneklilik özellikleri N_2 adsorpsiyon/desorpsiyon izotermi alınarak BET yöntemiyle incelenmiştir (Karaoğlu vd., 2022). Şekil 9'da görülen N_2 adsorpsiyon/desorpsiyon izotermi IUPAC sınıflandırmasına göre mezopor gözenek dağılımının baskın olduğu Tip 4 izotermidir. İzotermde gözlenen histerizis H4 tipinde olup dar "slit-like" mezopor ağırlıklı gözeneklerin varlığını gösterir. Elde edilen malzemenin BET analizi sonucu yüzey alanı $761,25 \text{ m}^2.\text{g}^{-1}$, ortalama gözenek çapı 3,8 nm ve toplam gözenek hacmi $0,922 \text{ mL.g}^{-1}$ dir. Malzemenin gözenek dağılımı QS-DFT

yöntemi ile belirlenmiştir (Karaoğlu vd., 2022). Şekil 10’da görüldüğü gibi malzemenin gözenek dağılımı ağırlıklı olarak 10 nm gözenek çapı ve altında yoğunlaşmaktadır.

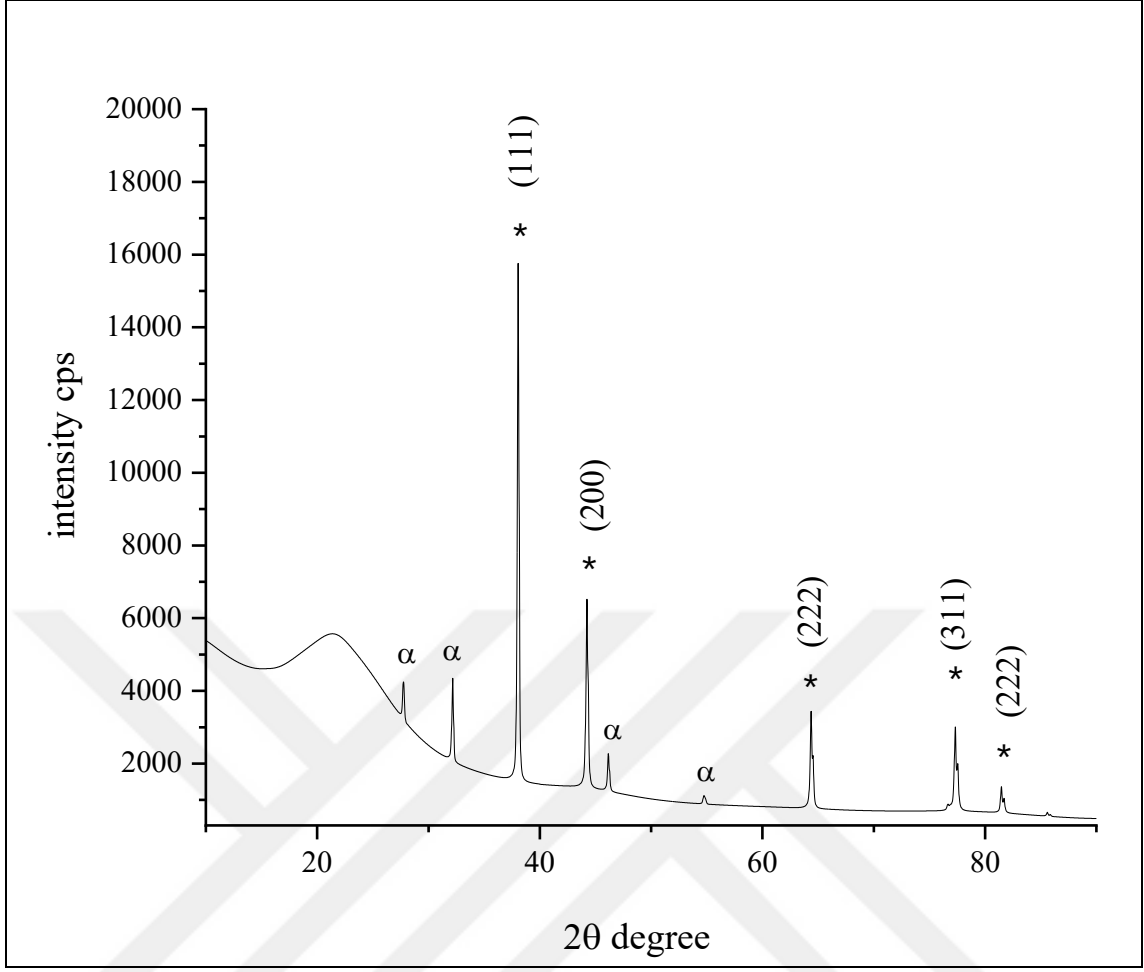


Şekil 9. PAC’ye ait BET izotermin



Şekil 10. PAC'ye ait gözenek dağılımı

PAC-Ag'nin x-ışını kırınım deseni incelendiğinde (Şekil 11) $2\theta = 38,12; 44,30; 64,44; 77,40; 81,54$ 'de (hkl: 111, 200, 222, 311, 222) metalik gümüşe ait kırınım deseni ile örtüşen pikler elde edilmiştir (PDF Card No.: 03-065-2871). Bu baskın piklerin yanı sıra karbon malzemeye gümüşün doplanması sırasında ortamda bulunan klor anyonları sebebiyle meydana gelen AgCl'ye ait pikler $2\theta = 27,82; 32,24; 46,24; 54,83$ 'de gözlenmiştir (PDF Card No.: 01-085-1355). Malzemedeki destek katısı olarak kullanılan karbon malzemeye ait amorf karbon piki yaygın bir bant şeklinde $21,76 (2\theta)$ 'da gözlenmiştir (Karaoğlu vd., 2022).



Şekil 11. PAC-Ag'nin x-ışını kırınım deseni

3.2. PAC-Ag katalizörünün Kirleticiler Üzerindeki Katalitik Etkisi

PAC-Ag katalizörünün, karakterizasyon çalışmalarının ardından, katalitik performansının çeşitli organik çevresel kirleticilerin katalitik indirgenmesinde test edilmiştir. Katalitik indirgeme yöntemi, bir katalizör ve bir indirgenme ajanı varlığında (NaBH_4) organik kirleticilerin uzaklaştırmasında kullanılan en yenilikçi yöntemlerden biridir. Mevcut çalışmada, sentezlenen PAC-Ag katalizörünün aktivitesi indirgenme ajanı NaBH_4 kullanılarak 2-nitroanilin, 4-nitrofenol, 4-nitroanilin ve 4-nitro-o-fenilendiamin gibi aromatik nitro bileşiklerinin yanı sıra metil oranj, metilen mavisi ve Rodamin B gibi organik boyalarının katalitik indirgenmesinde test edilmiştir. İndirgeme reaksiyonları, UV-Vis spektroskopisi ile reaksiyon süreleri boyunca organik kirleticilerin sahip oldukları spesifik absorptans zirvelerindeki, azalmanın izlenmesiyle spektoro-kimyasal olarak takip edilmiştir. Testlere geçilmeden önce, reaksiyon

parametreleri optimize edilmiş ve Tablo 1’de özetlenmiştir. Yapılan çalışmalar sonunda, 3 mg PAC-Ag katalizörü, 0.25 mL NaBH₄ (0.05 M) ve 1x10⁻⁴ M 2-nitroanilin kullanılarak için en iyi reaksiyon sonucuna ulaşıldığı bulunmuştur (Tablo 1). Şekil 12’da görüldüğü gibi, 2-nitroanilin 413 nm ve 285 nm olmak üzere iki adet absorbands bandı sergilemektedir. 3 mg PAC-Ag katalizörünün, 2-nitroanilin+NaBH₄ içeren çözeltiye ilavesinden sonra, katalitik indirgenme başlamış ve indirgeme işlemi sırasında çeşitli zaman aralıklarında UV-Vis spektrumu kaydedildi. Katalitik indirgenmenin başlamasıyla birlikte, 2-nitroanilin’in 413 nm deki absorbands bandının zamanla azaldığı ve 60 saniye sonunda tamamen kaybolduğu gözlenmiştir. Bu ek olarak, 285 nm deki absorbands bandının ise 293 nm kaydığı gözlenmiştir. Bu değişikliklere eş zamanlı olarak, 2-nitroanilin’in sarı olan çözelti renginin katalitik indirgenme sonunda berraklaştığı da gözlenmiştir. Bütün bunlar, 2-nitroanilin’in PAC-Ag katalizörü varlığında, o-fenilendiamin’e başarıyla indirgendiği doğrulamıştır. Diğer yanda, PAC-Ag katalizörü katalitik performansını doğrulamak için, 2-nitroanilin’in katalitik indirgenmesi katalizör olmadan, sadece NaBH₄ varlığında gerçekleştirilmiş ve uzun bir süre (2 saat) sonunda bile, 2-nitroanilin’in sahip olduğu spesifik absorbands bantlarında bir değişiklik gözlenmemiştir. Bu sonuç, PAC-Ag katalizörünün 2-nitroanilin’in katalitik indirgemesi için gerekli olduğu sonucunu doğrulamıştır. Ayrıca, 2-nitroanilin’in katalitik indirgenmesi için reaksiyon hız sabiti aşağıdaki denklem kullanılarak 0.011 s⁻¹ olarak hesaplamıştır.

$$\ln(ct/c0)=-kt$$

Burada ct ve c0 sırasıyla başlangıçtaki ve ölçülen reaksiyon süresindeki (t) organik kirleticilerin konsantrasyonlarını ifade eder ve k (s⁻¹) hız sabitidir.

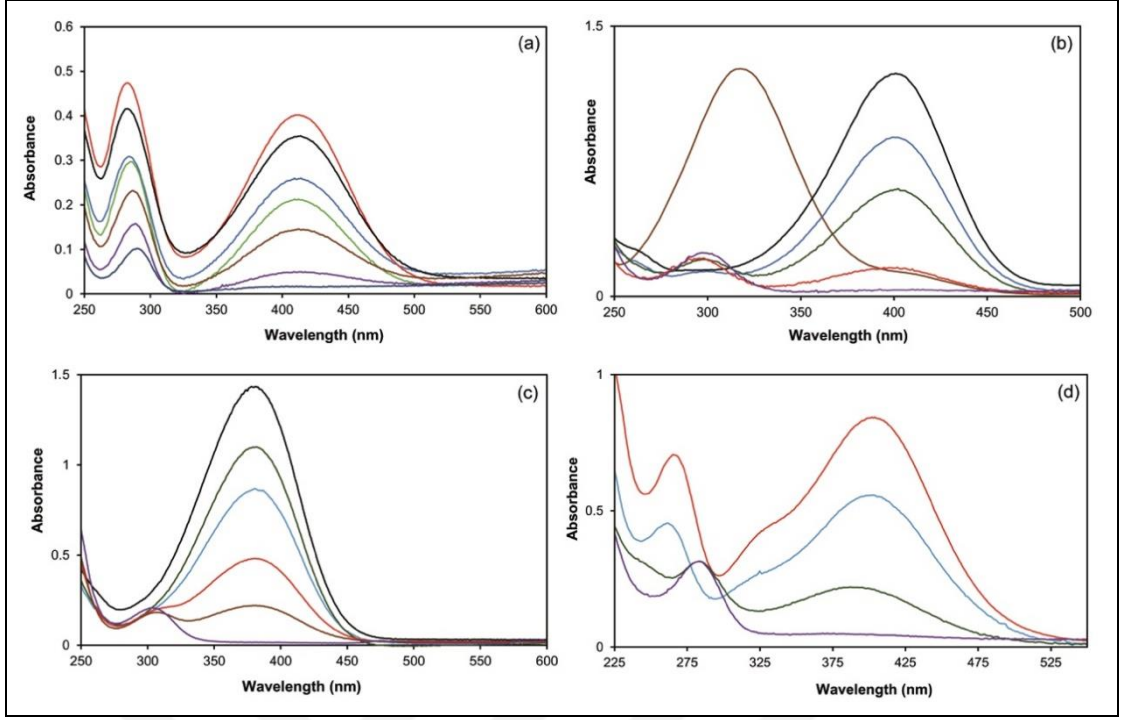
Tablo 1. PAC-Ag katalizli çevre kirleticilerinin indirgenmesi için optimizasyon parametreleri. (Reaksiyon Şartları: [nitroaromatikler]= 1.0×10^{-4} M, [organik boyalar]= 1.0×10^{-5} M, [NaBH₄]=0.05 M))

	Deney No	NaBH ₄ hacmi (mL)	PAC-Ag katalizör miktarı (mg)	Reaksiyon süresi (s)
2-nitroanilin	1	0.1	1	145
	2	0.1	2	87
	3	0.1	3	69
	4	0.25	1	113
	5	0.25	2	72
	6	0.25	3	60
4-nitroanilin	7	0.1	1	167
	8	0.1	2	89
	9	0.1	3	73
	10	0.25	1	96
	11	0.25	2	74
	12	0.25	3	50
4-nitrofenol	13	0.1	1	286
	14	0.1	2	198
	15	0.1	3	151
	16	0.25	1	200
	17	0.25	2	142
	18	0.25	3	120
4-nitro-o-fenilendiamin	19	0.1	1	186
	20	0.1	2	112
	21	0.1	3	62
	22	0.25	1	97
	23	0.25	2	68
	24	0.25	3	45
Metil oranj	25	0.1	1	148
	26	0.1	2	90
	27	0.1	3	67
	28	0.25	1	81
	29	0.25	2	59
	30	0.25	3	45
Rodamin B	31	0.1	1	190
	32	0.1	2	99
	33	0.1	3	78
	34	0.25	1	100
	35	0.25	2	72
	36	0.25	3	60

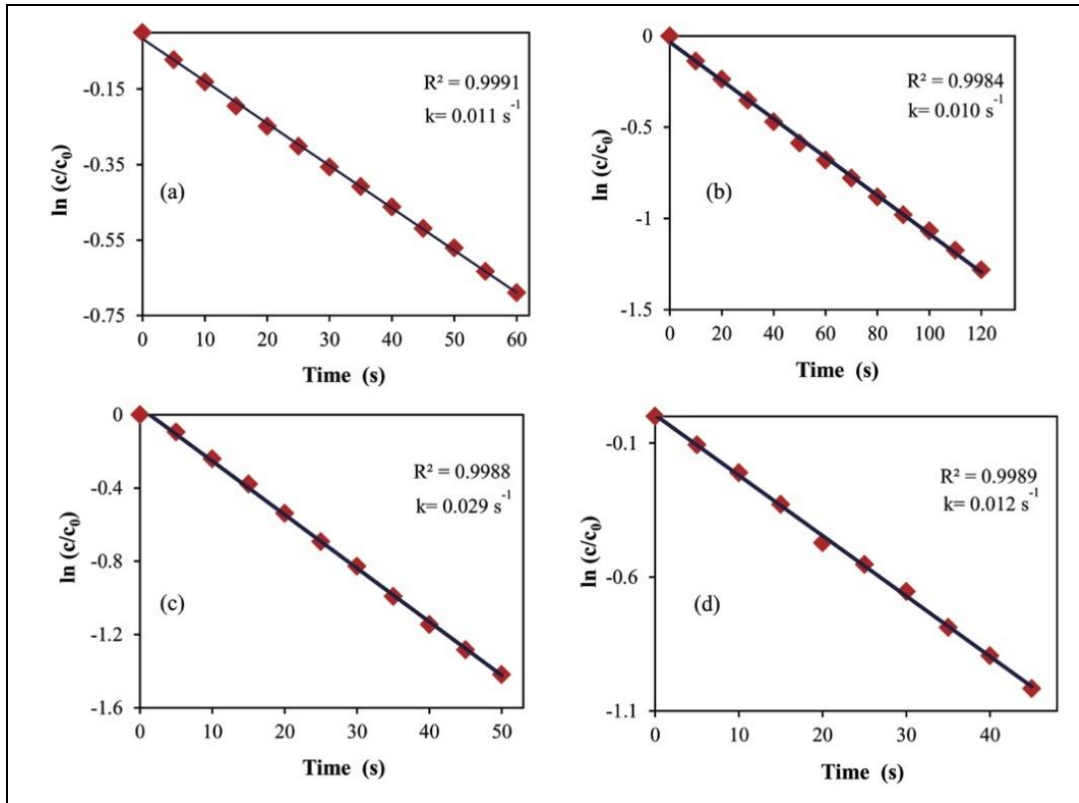
Şekil 12b'de görüldüğü gibi, 4-nitrofenol, 317 nm'de belirgin bir absorbands bandı sergilemektedir. 0.05 mL NaBH₄ çözeltisi, 4-nitrofenol çözeltisine eklendiğinde, 4-nitrofenol'un deprotonasyonu nedeniyle 317 nm'deki pikin 403 nm'ye kaydığı ve çözeltinin renginin parlak sarıya dönüştüğü gözlenmiştir. Bütün bu gözlenmeler, bir ara ürün olan 4-nitrofenolat iyonunun oluştuğunu ve indirgenmenin bu ara ürün üzerinden gerçekleşeceğini göstermektedir. Reaksiyon ortamına, 3 mg PAC-Ag katalizörü eklendiğinde, geçen reaksiyon süresi ile birlikte, 403 nm'deki pik şiddetinde belirgin bir azalma gözlemlenmiş ve 120 saniye içinde bu tepe tamamen kaybolmuştur. Ek olarak, 403 nm'deki pik şiddeti azaldıkça, spektrumda, 4-aminofenole ait olan 300 nm'de yeni bir pik gözlenmiştir. Dahası, 4-nitrofenol 'ün 4-aminofenole dönüşümünün bir başka bir kanıtı olan, 4-nitrofenol'ün sarı renkli çözeltisinin reaksiyon sonunda renksiz hale

geldiği gözlenmiştir. PAC-Ag katalizli 4-nitrofenol 'ün için hız sabiti 0.010 s^{-1} olarak hesaplanmıştır.

PAC-Ag katalizörünün katalitik yeteneği, diğer bir aromatik nitro bileşiği olan 4-nitroanilin ve 4-nitro-o-fenilendiamin indirgenmesinde de araştırılmıştır. Şekil 12 ve Şekil 13'ten görülebileceği gibi, 4-nitroanilin 382 nm'de absorbands bantları vermektedir. Katalitik indirgenmeleri başlatmak için, PAC-Ag katalizörü, 4-nitroanilin+NaBH₄ eklenmiş ve 382 nm'deki pikin zamanla değişimi UV-Vis spektroskopisi kullanılarak izlenmiştir. Reaksiyon ilerlemesi ile, 382 nm'deki pik şiddetlerinin beklenildiği gibi zamanla azalmaya başlamış ve 50 saniye içinde tamamen kaybolmuştur. Bu değişimle eş zamanlı olarak, 4-nitroanilin spektrumunda 306 nm'de yeni bir pik gözlenmiştir. Bu gözlemler, PAC-Ag katalizörünün, 4-nitroanilin'i 1,4-fenilendiamin'e, başarıyla dönüştürdüğünü kanıtlamıştır. PAC-Ag katalizörünün katalitik kabiliyeti diğer bir aromatik nitro bileşiği olan 4-nitro-o-fenilendiamin'in indirgenmesinde de test edilmiştir. 4-nitro-o-fenilendiamin sulu çözeltisi 269nm ve 406 nm ve 'deki iki kuvvetli absorbands bandı vermiştir. PAC-Ag katalizörünün, reaksiyon ortamına eklenmesini takiben (4-nitro-o-fenilendiamin+NaBH₄), 406 nm'deki pik şiddeti azalmaya başlamış ve buna eş olarak 269 nm'deki pikin 307 nm'ye kaydığı gözlenmiştir. 45 saniye sonunda 406 nm'deki pik tamamen kaybolmuştur. Bu gözlemler, PAC-Ag katalizörünün, 4-nitro-o-fenilendiamin'i 1,2,4-benzenetriamin'e dönüştürmeyi, başardığını göstermektedir. Ayrıca, indirgenmeler sonunda, hem 4-nitroanilin hem de 4-nitro-o-fenilendiamin sarı olan çözeltilerinin, berraklaştığı gözlenmiştir. Diğer yandan, 4-nitroanilin ve 4-nitro-o-fenilendiamin için hız sabitleri sırasıyla $0,029 \text{ s}^{-1}$ ve $0,012 \text{ s}^{-1}$ olarak hesaplanmıştır.



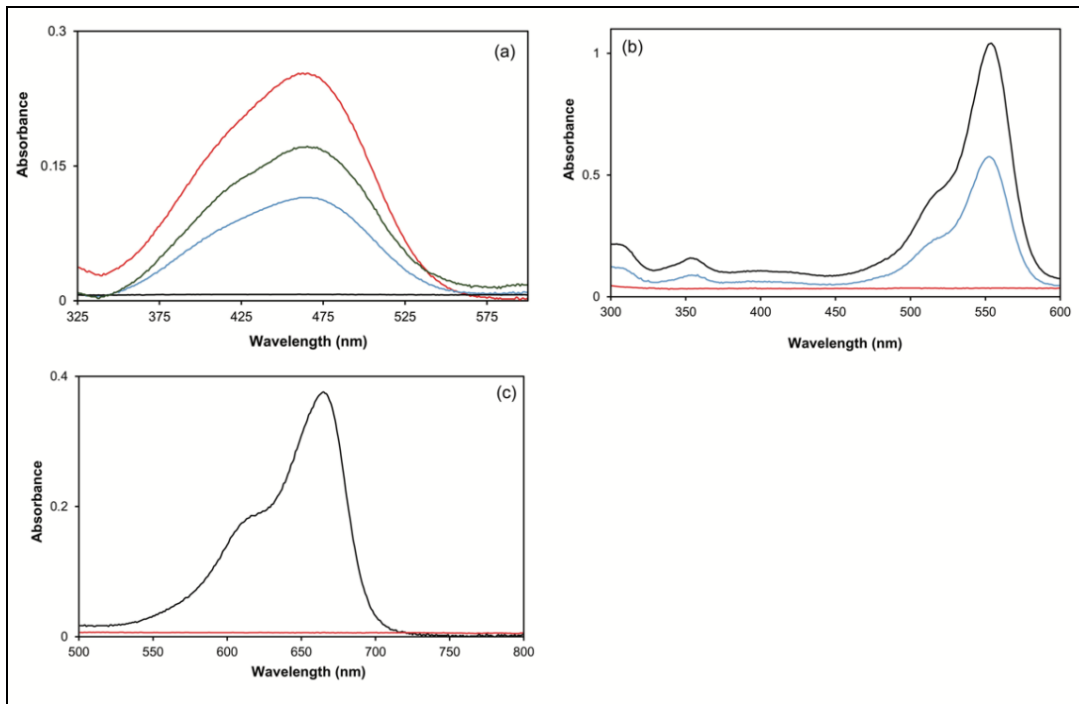
Şekil 12. PAC-Ag katalizörü varlığında a) 2-nitroanilin, b) 4-nitrofenol, c) 4-nitroanilin ve d) 4-nitro-o-fenilendiamin'in katalitik indirgenmelerine ait UV-Vis spektrumları



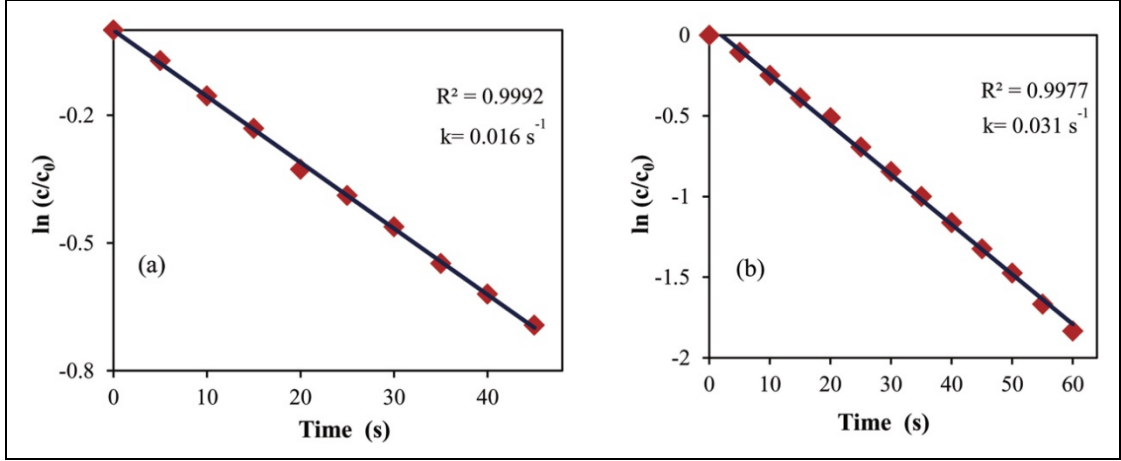
Şekil 13. PAC-Ag katalizörü varlığında a) 2-nitroanilin, b) 4-nitrofenol, c) 4-nitroanilin ve d) 4-nitro-o-fenilendiamin'in katalitik indirgenmelerinin reaksiyon süresine karşı $\ln(c/c_0)$ grafikleri

PAC-Ag katalizörünün nitro aromatiklerin katalitik indirgenmelerinde göstermiş olduğu katalitik performansına dayanarak, aktivitesi metil oranj, metilen mavisi ve Rodamin B gibi çeşitli organik boyaların katalitik indirgenmesinde de test edilmiştir. Şekil 14'te gösterildiği gibi, Rodamin B, metil oranj ve metilen mavisinin sulu çözeltideki UV-Vis spektrumları incelendiğinde, sırasıyla 556 nm, 465 nm ve 665 nm'de karakteristik absorbands bantları vermiştir. Reaksiyonlar için optimum reaksiyon parametreleri araştırılmış ve Tablo 1'de verilmiştir. Reaksiyon karışımlarına (Rodamin B+NaBH₄, metil oranj+NaBH₄, ve metilen mavisinin+NaBH₄), 3 mg PAC-Ag katalizörünün eklenmesi katalitik indirgenmeler başlamış ve farklı zaman aralıklarında UV-Vis spektrumları kaydedilerek reaksiyonlar takip edilmiştir. Katalizörün Rodamin B+NaBH₄ karışımına eklenmesi ile birlikte, 556 nm'deki pikin şiddeti geçen reaksiyon süresi ile azalmış ve 60 saniye sonunda kaybolmuştur. Benzer durum, metil oranj indirgenmesinde de gözlenmiştir. Metil oranj'ın 465 nm'deki karakteristik bandın şiddeti zamanla azalmış ve 45 saniyede kaybolmuştur. Hem Rodamin B hem de metil oranj indirgenmelerini takiben, çözelti renkleri reaksiyon sonlarında berraklaşmıştır. Bu

gözlemler PAC-Ag katalizörünün hem Rodamin B hem de metil oranj indirgenmelerinin başarıyla katalizlediği göstermiştir. Diğer yandan, PAC-Ag katalizörünün metilen mavisinin+NaBH₄ karışımına eklenir eklenmez, metilen mavisinin 666 nm'de karakteristik absorbans bandı hemen kaybolmuş ve çözelti renginin berraklaştığı gözlenmiştir. Bu sonuç, PAC-Ag katalizörünün metilen mavisinin katalitik indirgenmesini anında gerçekleştirdiğini göstermiştir. Ayrıca, PAC-Ag katalizörü varlığında, metil oranj ve Rodamin B indirgenmeleri için hız sabitleri sırasıyla 0.016s⁻¹ ve 0.031 s⁻¹ olarak bulunmuştur (Şekil 15).



Şekil 14. PAC-Ag katalizörü varlığında a) metil oranj b) rodamin B ve c) metilen mavisi organik boyalarının katalitik indirgenmelerine ait UV-Vis spektrumları



Şekil 15. PAC-Ag katalizörü varlığında a) metil oranj ve b) rodamin B, boyalarının katalitik indirgenmelerinin reaksiyon süresine karşı $\ln(c/c_0)$ grafikleri

4. ÖNERİLER

Heterojen katalizörler geri kazanılabilirlik ve tekrar kullanım kabiliyeti nedeniyle hem ekonomik hem de pratik avantajlar sağlamaktadır. Bu nedenle, mevcut çalışmada, sentezlenen PAC-Ag katalizörün tekrar kullanılabilirlik potansiyeli, belirlenen reaksiyon parametreleri altında nitro aromatik bileşiklerin ve organik boyar maddelerin katalitik indirgenmesi üzerinde araştırılmıştır. İlk katalitik döngüden sonra, PAC-Ag katalizörü reaksiyon ortamından filtrasyon ile geri kazanılmış ve tekrar aktif hale getirilmek için su ve etanol ile yıkandıktan sonra, sonraki çalışmalarda kullanılmak üzere kurutulmuştur. Bu işlem, her döngü sonunda tekrarlanmış, PAC-Ag katalizörünün 4 ardışık tepkimede neredeyse aktivitesini kaybetmeden kullanılabileceğini göstermiştir. PAC-Ag katalizörünün geri kazanılabilirliği, üretim maliyeti ve deneysel çalışmada görülen organik kirleticilerin giderimindeki performansı göz önüne alındığında endüstriyel uygulamalarda kullanılabileceğini göstermektedir.

KAYNAKLAR

- Akçay T., (2014), *Trakya bölgesinde çeltik sapının biyokütle potansiyeli ve enerji değerlerinin saptanması*. (Yayımlanmamış yüksek lisans tezi), Namık Kemal Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Tekirdağ.
- Angın, D., (2014). Production and characterization of activated carbon from sour cherry stones by zinc chloride. *Fuel*, 115, 804–811.
- Attia J., (2018). *Removal of organic pollution from wastewater in the valley area using Clay minerals*. (Yayımlanmamış doktora tezi), Analytical Chemistry Ouargla, Kasdi Merbah University.
- Auta, M., & Hameed, B. H., (2011). Optimized waste tea activated carbon for adsorption of Methylene Blue and Acid Blue 29 dyes using response surface methodology. *Chemical Engineering Journal*, 175, 233-243.
- Batur, E., 2021. *Rsm Optimizasyonu ile Çörekotu (Nigella Sativa l.) Atık Biyokütlesi-Esaslı Üretilen Aktif Karbon Kullanılarak Uçucu Organik Bileşiklerin Giderilmesi ve Fotovoltaik Uygulamalarının İncelenmesi*. (Yayımlanmamış yüksek lisans tezi), Siirt Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, s109.
- Berradi M., Hsissou R., & Khudhair M (2019). *Textile Finishing Dyes and Their Impact on Aquatic Environs*. Heliyon, 5 (11) s. 3.
- Briggs, D. (2003). Environmental Pollution and the Global Burden of Disease. *British Medical Bulletin*, 68(1), 1–24.
- Chen, W. H., Lin, T. S., Guo, G. L., & Huang, W.S. (2012). Ethanol production from rice straw hydrolysates by *Pichia stipitis*. *Energy Procedia*, 14, 1261-1266.
- Cohen, A. J., Brauer, M., Burnett, R., Anderson, H. R., Frostad, J., Estep, K., Balakrishnan, K., Brunekreef, B., Dandona, L., Dandona, R., Feigin, V., Freedman, G., Hubbell, B., Jobling, A., Kan, H., Knibbs, L., Liu, Y., Martin, R., Morawska, L., Pope, C. A., Shin, H., Straif, K., Shaddick, G., Thomas, M., Dingenen, R. V., Donkelaar, A. V., Vos, T., Murray, C. J. J., & Forouzanfar, M. H. (2017). *Estimates and 25-Year Trends of the Global Burden of Disease Attributable to Ambient Air Pollution: An Analysis of Data from the Global Burden of Diseases Study 2015*. The Lancet, 389(10082), 1907–18.
- Döşemen, Y. (2009). *Kestane Kabuğundan Aktif Karbon Üretimi*. (Yayımlanmamış yüksek lisans tezi), İstanbul Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul.

- Elekçioğlu, İ. H., Tülek A., (2009). *Çeltik Beyaz Uç Nematodu (Aphelenchoides besseyi Christie pv.oryzae Aphelenchida: Aphelenchoidae)*, 1. Çeltik Sempozyumu, Tekirdağ, ss.39-48.
- Hopa, D. Y., Yılmaz, N., Alagöz, O., Dilek, M., Helvacı, A., & Durupınar, U. (2016). Pyrolysis of Poppy Capsule Pulp For Bio-oil Production, *Waste Management & Research*, 34, 1316-1321.
- Karaca A., & Turgay O. (2012). Toprak Kirliliği. *Toprak Bilimi ve Bitki Besleme Dergisi*, 1, 17-23.
- Karaçetin, G. (2007). *Fındık çotanağından sülfürik asitle hazırlanan aktif karbon üzerinde metilen mavisinin adsorpsiyonu*, (Yayımlanmamış yüksek lisans tezi), Sakarya Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Sakarya.
- Karaoğlu, H. M. (2007). *Sulu Çözeltilerden Bazı Boyar Maddelerin Fizikokimyasal Yöntemlerle Giderimi*. (Yayımlanmamış doktora tezi) Balıkesir Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Balıkesir.
- Karaoğlu, K., Özçifçi, Z., Çalışkan, M., Baran, & T., Akçay, H.T. (2022). Catalytic activity of palladium doped activated carbon from waste coffee on some environmental pollutants. *Materials Chemistry and Physics*, 282, Article 125857. <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2022.125857>.
- Karataş, G. (2017). *Zeytin Çekirdeğinden Aktif Karbon Üretimi*. Yüksek Lisans Tezi. Fırat Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Kayan, A. (2018). Çevre Sorunlarına Eğitimle Farkındalık Oluşturma. *Journal of Awareness*, 3(5), 2149-6544.
- Lussier, M.G., Shull, C.J., & Miller, D.J. (1994). Activated Carbon From Cherry Stones. *Carbon*, 32(8), 1493-1498.
- Osagie, C., Othmani, A., Ghosh, S., Malloum, A., Esfahani, Z. K., & Ahmadi, S., (2021). Dyes Adsorption from Aqueous Media through the Nanotechnology: A Review. *Journal of Materials Research and Technology*, 14, 2195–2218.
- Othmani, A., Kesraoui, A., Akrou, H., López-Mesas, M., Seffen, M., & Valiente, M., 2019. Use of Alternating Current for Colored Water Purification by Anodic Oxidation with SS/PbO₂ and Pb/PbO₂ Electrodes. *Environmental Science and Pollution Research*, 26(25), 25969–25984.
- Ozmak, M. (2010). *Biyokütle Atıklarından Aktif Karbon Üretimi*. (Yayımlanmamış doktora tezi). Ankara Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Ankara.

- Özçifçi, Z. 2019, *Fosforik asitle kimyasal aktive edilmiş atık çay çalısından aktif karbon üretimi*. (Yayımlanmamış yüksek lisans tezi), Recep Tayyip Erdoğan Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Özdemir, I. (2013). *Şarap Endüstrisi Artığı Üzüm Saplarından Aktif Karbon Eldesi Ve Karakterizasyonu*. (Yayımlanmamış yüksek lisans tezi), Fırat Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Elazığ.
- Özkeser, E. C. (2022). *Çeltik Kabuğunun Pirolizi İle Elde Edilen Biyokömürün Karakterizasyonu Ve Çevresel Kirleticilerin Gideriminde Etkinliğinin Araştırılması*, (Yayımlanmamış yüksek lisans tezi), Hitit Üniversitesi Lisansüstü Eğitim Enstitüsü, Çorum.
- Thomas, T. D., (2008). The role of activated charcoal in plant tissue culture. *Biotechnology Advances*, 26(6), 618-631.
- Ukaogo, P. O., Ewuzie, U., & Onwuka, C. V. (2020). *Environmental Pollution: Causes, Effects, And The Remedies*. Microorganisms For Sustainable Environment And Health, 419-429.
- Vörösmarty C. J., Green P., Salisbury J., & Lammers R. B., (2000). *Global Water Resources: Vulnerability from Climate Change and Population Growth*. Science (New York, N.Y.), 289(5477), 284–288.
- Yang, J., & Qiu, K. (2010). Preparation of activated carbons from walnut shells via vacuum chemical activation and their application for methylene blue removal. *Chemical Engineering Journal*, 165(1), 209-217.
- Zhang Y. J., Xing Z. J., Duan Z. K., Li M., & Wang Y. (2014). Effects of steam activation on the pore structure and surface chemistry of activated carbon derived from bamboo waste. *Applied Surface Science*, 315, 279-286.

ÖZGEÇMİŞ

Adı Soyadı : Selman SAYAK

Yabancı Dili : İngilizce

Eğitim Durumu

Lise : Sami Yangın Anadolu Lisesi, 2006

Lisans : Karadeniz Teknik Üniversitesi/Fatih Eğitim Fakültesi, 2011

Erciyes Üniversitesi/Fen Edebiyat Fakültesi, 2014

Mesleki Deneyim

MEB : Durağan Mesleki ve Teknik Anadolu Lisesi, 2014-2018

MEB : Durağan Anadolu Lisesi, 2018-2021

MEB : Boyabat Mevlana Mesleki ve Teknik Anadolu Lisesi, 2021-2022

MEB : Türk Telekom Fen Lisesi, 2022-