

**UKUROVA NİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Hasan Kıvan YEŞİLTAS

**İFT KATMANLI HİDROKSİTLER İLE FOSFOR GİDERİMİNİN
ARAŞTIRILMASI**

EVRE MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

ADANA, 2015

ÖZ

YÜKSEK LİSANS TEZİ

ÇİFT KATMANLI HİDROKSİTLER İLE FOSFOR GİDERİMİNİN ARAŞTIRILMASI

Hasan Kıvanç YEŞİLTAS

ÇUKUROVA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ
ÇEVRE MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

Danışman : Yrd. Doç. Dr. Turan YILMAZ

Yıl: 2015, Sayfa: 107

Jüri : Yrd. Doç. Dr. Turan YILMAZ

: Prof. Dr. Ahmet YÜCEER

: Prof. Dr. Sabri ULUKANLI

Bu çalışmada, sentezlenmiş olan çift katmanlı hidroksitler (ÇKH) olarak adlandırılan anyonik killer ile fosfat giderimi araştırılmıştır. Sentezlenecek olan ÇKH'lar birlikte çöktürme yöntemi ile sentezlenmiştir. İki tür ÇKH sentezlenmiş olup bunlar $MgCl_2$ - $FeCl_3$ tuzlarından sentezlenen Mg-Fe ÇKH ve $MgCl_2$ - $AlCl_3$ tuzlarından sentezlenen Mg-Al ÇKH olmaktadır. Sentezlenen malzemeler elek analizi ile partikül çaplarına göre sınıflandırıldıktan sonra elde edilen deneysel verilere adsorpsiyon izotermi uygulanmıştır.

0,5 g 125-180 μm Mg-Fe ÇKH'ı kullanılarak %84 giderim verimi, 0,05 g 125-180 μm Mg-Al ÇKH'ı kullanılarak %86 giderim verimi elde edilmiştir. Mg-Fe ÇKH'larının Freundlich, Langmuir ve Temkin izotermine ve Mg-Al ÇKH'larında ise Langmuir izotermine uygun olduğu gözlenmiştir. 125-180 μm partikül çapına sahip Mg-Fe ve Mg-Al ÇKH'ları için fosfat tutma kapasiteleri sırası ile 3 mg/g ve 57,5 mg/g olarak belirlenmiştir.

Anahtar Kelimeler: Fosfor Giderimi, Çift Katmanlı Hidroksitler, Adsorpsiyon İzotermi

ABSTRACT

MSc THESIS

INVESTIGATION OF PHOSPHORUS REMOVAL WITH LAYERED DOUBLE HYDROXIDES

Hasan Kıvanç YEŞİLTAS

ÇUKUROVA UNIVERSITY
INSTITUTE OF NATURAL AND APPLIED SCIENCES
DEPARTMENT OF ENVIRONMENTAL ENGINEERING

Supervisor : Asst. Prof. Dr. Turan YILMAZ

Year: 2015, Pages: 107

Jury : Asst. Prof. Dr. Turan YILMAZ

: Prof. Dr. Ahmet YÜCEER

: Prof. Dr. Sabri ULUKANLI

In this study, phosphate removal with synthesized anionic clays named double layered hydroxides. Two different types of LDH are produced with traditional co-precipitation methods which are Mg-Fe LDH from $MgCl_2$ - $FeCl_3$ salts and Mg-Al LDH from $MgCl_2$ - $AlCl_3$ salts. Synthesized materials are classified by particle size with screening analysis and data obtained from adsorption experiments are applied to adsorption isotherms.

%84 and 86 removal efficiencies were obtained with 0,5 g 125-180 μm Mg-Fe LDH and 0,05 g 125-180 μm Mg-Al LDH respectively. Adsorption of phosphate with Mg-Fe LDH is best described with Freundlich, Langmuir and Temkin isotherms while Mg-Al LDH is best described with Langmuir isotherm. Adsorption capacities of 125-180 μm Mg-Fe LDH and 125-180 μm Mg-Al LDH are 3 mg/g ve 57,5 mg/g respectively.

Key Words: Phosphate Removal, Layered Double Hydroxides, Equilibrium Isotherms

TEŞEKKÜR

Lisans ve yüksek lisans eğitimim boyunca zengin bakış açısıyla beni aydınlatan değerli danışman hocam Sayın Yrd. Doç. Dr. Turan YILMAZ'a yüksek lisans tez çalışmamda bana gösterdiği emeğinden ve sabrından dolayı sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

Çukurova Üniversitesi Çevre Mühendisliği Bölümü'ndeki lisans eğitimimden itibaren her türlü desteği benden esirgemeyen, akademik altyapımın oluşmasında örnek aldığım çok değerli hocam Sayın Prof. Dr. Ahmet YÜCEER'e teşekkürlerimi sunarım.

Yüksek lisans tez çalışmam sırasında yanımda olan, bilgilerini benden esirgemeyen Sayın Prof. Dr. Galip SEÇKİN ve Sayın Doç. Dr. Çağatayhan Bekir ERSÜ'ye sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

Yüksek lisans tez çalışmamın her anında yanımda olan, bilgilerini benden esirgemeyen hocam, meslektaşım ve arkadaşım Ömer ZEKİ'ye sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

Yardımlarını esirgemeyen Mahmut ALTINER, Mustafa AKYÜZ, Nazieh ALSHEEK MOHAMED ve Özkan YETİŞTİREN'e teşekkürlerimi sunarım.

Maddi ve manevi her konuda beni destekleyen, her zaman yanımda olan çok sevgili annem Zühal YILMAZ, babam Mehmet YEŞİLTAŞ ve kardeşim Onur YEŞİLTAŞ'a teşekkürü bir borç bilirim.

İÇİNDEKİLER

SAYFA

ÖZ	I
ABSTRACT	II
TEŞEKKÜR.....	III
İÇİNDEKİLER	IV
ÇİZELGELER DİZİNİ	VI
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	VIII
SİMGELER VE KISALTMALAR.....	X
1. GİRİŞ	1
1.1. Fosfor.....	2
1.1.1. Fosforun Çevresel Önemi.....	3
1.1.2. Su ve Atıksulardan Fosfor Giderimi	4
1.1.2.1. Kimyasal Çöktürme	4
1.1.2.2. Biyolojik Fosfor Giderimi.....	5
1.1.2.3. Kristalizasyon.....	6
1.1.2.4. Diğer Fosfor Giderme Yöntemleri.....	6
1.2. İyon Değişirme ve Adsorpsiyon.....	7
1.3. Çift Katmanlı Hidroksitler (ÇKH)	9
1.3.1. Sentez Metodları	11
1.3.1.1. Birlikte Çöktürme Metodu	11
1.3.1.2. Üre Hidroliz Metodu.....	11
1.3.1.3. Hidrotermal Metot.....	12
1.3.2. Çift Katmanlı Hidroksitlerin Su ve Atıksu Arıtımında Kullanımı ...	13
2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR.....	15
3. MATERYAL VE METOD	25
3.1. Materyal.....	25
3.1.1. Sentetik Fosfat Çözeltisi	25
3.1.2. Kullanılan Reaktifler ve Cihazlar	25
3.1.3. Çift Tabakalı Hidroksitler	25
3.2. Metod	26
3.2.1. Çift Katmanlı Hidroksit Sentezi	26

3.2.1.1. Mg-Fe Çift Katmanlı Hidroksit Sentezi	26
3.2.1.2 Mg-Al Çift Katmanlı Hidroksit Sentezi	27
3.2.2. Analitik Metotlar	27
3.2.3. Mg-Fe ve Mg-Al Çift Katmanlı Hidroksitleri ile Fosfor Giderimi ..	28
3.2.4. Çift Katmanlı Hidroksitlerin Fosfor Tutma Kapasitelerinin Belirlenmesi	29
4. BULGULAR VE TARTIŞMA	31
4.1. Bulgular	31
4.1.1. Çift Katmanlı Hidroksitlerin Sentezi	31
4.1.2. Fosfor Giderim Verileri	32
4.1.3. Fosfor Çözeltilerinin pH Değerleri	33
4.1.4. Çift Katmanlı Hidroksitlerin Fosfat Tutma Kapasitesinin Belirlenmesi	34
4.1.5. Adsorpsiyon İzoterm Verileri	34
4.2. Tartışma.....	35
4.2.1. Mg-Fe Çift Katmanlı Hidroksitleri ile Fosfor Giderimi.....	35
4.2.2. Mg-Al Çift Katmanlı Hidroksitleri ile Fosfor Giderimi.....	36
4.2.3. Fosfor Giderimi için Kullanılan Diğer Materyallerin Çift Katmanlı Hidroksitler ile Karşılaştırılması	38
4.2.4. Çift Katmanlı Hidroksitler ile Fosfat Gideriminde pH Faktörü	39
4.2.5. Adsorpsiyon İzotermi.....	41
4.2.5.1. Freundlich İzotermi.....	41
4.2.5.2. Langmuir İzotermi	46
4.2.5.3. Temkin İzotermi.....	56
4.2.5.4. Dubinin-Radushkevich İzotermi	56
4.2.6. Çift Katmanlı Hidroksitler ile Partikül Boyutu ve Fosfor Konsantrasyonunun Değişimi	57
5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER	61
KAYNAKLAR	63
ÖZGEÇMİŞ	73
EKLER.....	74

ÇİZELGELER DİZİNİ

SAYFA

Çizelge 3.1.	Çalışmada kullanılan reaktifler.....	25
Çizelge 4.1.	Sentezlenen ÇKH'ların partikül çaplarına göre dağılımları ve miktarı.....	31
Çizelge 4.2.	Mg-Fe ÇKH ile giderim sonrası çözeltide kalan PO_4^{-3} -P miktarları	32
Çizelge 4.3.	Mg-Al ÇKH ile giderim sonrası çözeltide kalan PO_4^{-3} -P miktarları	32
Çizelge 4.4.	Mg-Fe ÇKH'ları ile elde edilen fosfor giderim verimleri	33
Çizelge 4.5.	Mg-Al ÇKH'ları ile elde edilen fosfor giderim verimleri	33
Çizelge 4.6.	Mg-Fe ÇKH'ları ile giderim sonrası pH değerleri	33
Çizelge 4.7.	Mg-Al ÇKH'ları ile giderim sonrası pH değerleri.....	34
Çizelge 4.8.	Mg-Fe ÇKH'ları için 1/n izoterm değerleri	44
Çizelge 4.9.	Mg-Fe ÇKH'ları için Langmuir izotermi değerleri	52
Çizelge 4.10.	Mg-Al ÇKH'ları için Langmuir izotermi değerleri.....	55

ŞEKİLLER DİZİNİ

SAYFA

Şekil 1.1. Biyolojik fosfor giderimi için temel akım şeması.....	6
Şekil 1.2. ÇKH'ın şematik görünümü	10
Şekil 3.1. Fosfor analizi için kullanılan kalibrasyon eğrisi	28
Şekil 4.1. Mg-Fe ÇKH'ları fosfor giderim verimleri	35
Şekil 4.2. Mg-Al ÇKH'ları fosfor giderim verimleri	37
Şekil 4.3. Mg-Fe ÇKH'ları için kullanılan ÇKH miktarına göre giderim sonrası pH değerleri	40
Şekil 4.4. Mg-Al ÇKH'ları için kullanılan ÇKH miktarına göre giderim sonrası pH değerleri	40
Şekil 4.5. Mg-Fe ÇKH'ları Freundlich İzoterm Grafikleri	43
Şekil 4.6. Mg-Al ÇKH'ları Freundlich İzoterm Grafikleri	46
Şekil 4.7. Mg-Fe ÇKH'ları Langmuir İzoterm Grafikleri -1.....	49
Şekil 4.8. Mg-Fe ÇKH'ları Langmuir İzoterm Grafikleri -2.....	50
Şekil 4.9. Mg-Fe ÇKH'ları Langmuir İzoterm Grafikleri -3.....	51
Şekil 4.10. Mg-Al ÇKH'ları Langmuir İzoterm Grafikleri -1	53
Şekil 4.11. Mg-Al ÇKH'ları Langmuir İzoterm Grafikleri -2	54
Şekil 4.12. Mg-Al ÇKH'ları Langmuir İzoterm Grafikleri -3.....	55
Şekil 4.13. Farklı ÇKH boyutları için kütleye bağlı konsantrasyon değişim grafikleri	59
Şekil 4.14. Partikül boyutları değişimi ile K sabitinin değişimi	60

SİMGELER VE KISALTMALAR

ÇKH	: Çift Katmanlı Hidroksit
D-R	: Dubinin-Radushkevich
TPC	: Tomita Pharmaceutical Co. Ltd., Japan
TNP	: 2,4,6-trinitrophenol
DBS	: Dodesilbenzilsülfonat

1. GİRİŞ

Fosfor, tüm canlılar için canlılık sürecinin birçok evresinde temel makro besin ve enerji taşıyıcı olmasının yanı sıra, tabiatta canlı ve cansız kısımlar arasındaki bağ için anahtar konumunda bir elementtir. Fosfor bileşiklerinin üretimi için temel kaynak fosfat kayaçlarıdır ve dünya üzerinde rezervleri sınırlıdır. Nüfus artışı ile gelişen birçok nedenden dolayı fosfor bileşiklerine artan ihtiyaç küresel bir problemdir ve canlı sistemler için alternatifi olmayan fosforun kontrolü ve yönetimi oldukça zordur. Ayrıca küresel olarak fosforun tarım ve hayvancılık için verimli kullanımı sadece %15-20 ve geriye kalanının çeşitli şekilde atık olması problemin diğer ciddi boyutudur.

Evsel ve bazı endüstriyel atıksular arıtılmadan deşarj edilemeyecek konsantrasyonlarda fosfor içerirler. Atıksularda fosfor, ortofosfatlar, polifosfatlar ve organik fosfatlar formunda bulunur (Caravelli ve ark, 2010). Sucul ortamlara yeteri kadar arıtılmadan verilen fosforlu atıksular ötröfikasyona sebep olmalarından dolayı, birçok ülkede fosfor bakımından deşarj limitleri çok düşük konsantrasyonlara çekilmiştir. Hali hazırda atıksulardan fosfor giderimi için kimyasal ve biyolojik yöntemlerin yaygın olarak kullanılmasına rağmen fosfor konsantrasyonunu daha düşük seviyelere düşürebilecek ekonomik yöntemler için çok yoğun araştırmalar sürmektedir (Choi ve ark, 2011).

Çift katmanlı hidroksitler (ÇKH) çok düşük konsantrasyonlara kadar fosfor giderimi yaparak fosforun ileri arıtımı için uygun ve uygulanabilir bir materyal olarak su ve atıksu arıtımında yer alabilir. Kristal yapıya sahip anyonik ÇKH'lar, pozitif yüklü metal hidroksit tabakaları arasında negatif olarak yüklenmiş su ve anyonları barındıran bir iç tabakaya sahiptir (Cavani ve ark, 1991; Roy ve ark, 1992; Rives ve ark, 1999).

$[M_{1-x}^{+2}M_x^{+3}(OH)_2]^{+x}(A^{-n})_{x/n}mH_2O$ genel yapı formülü ile tanımlanan ÇKH lar sentezlendiği metaller, sentez yöntemi ve kristalizasyon derecesi gibi faktörlere bağlı olarak değişen etkinlikte anyon tutma kabiliyeti olan materyallerdir. Bu tür materyallerin anyonları giderme mekanizması iyon değişimi/adsorpsiyon olarak tanımlanır. İyon değiştirici materyallerin anyonlara

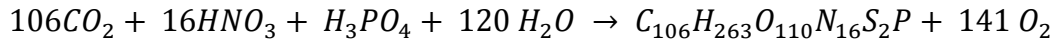
karşı seçicilik değeri değeriğinin artması ile büyümektedir. Fosfat (PO_4^{-3}) anyonu yüksek değeriğe sahip olmasından dolayı bu tür materyaller ile giderime çok uygun olduğu düşünülmektedir. Bundan dolayı bu çalışmada Mg-Fe ve Mg-Al olmak üzere iki çeşit ÇKH sentezlenerek bunların fosfor giderimleri incelenmiştir.

1.1. Fosfor

Elementel fosfor ilk olarak 1669 yılında Alman simyacı Hamburg tarafından idrarın ısıtılması ile elde edilmiştir. Daha sonra 1771 de J.G.Gahn ve C.W.Scheele kemik tozu, karbon ve kum karışımını ısıtarak büyük miktarlarda fosfor elde etmişlerdir. Bundan 135 yıl sonra 1906 da H. Harden ve W.J. Young maya içinde şekerin fermantasyonu için fosforun fosfat formunun temel besin olduğunu keşfetmelerinin ardından fosfat türünün tüm canlı sistemler için enerji taşıyıcı ve biyosferde temel besin olduğu anlaşılmıştır (Föllmi ,1996). 18. yy da W.Buckland fosfatça zengin sedimentlerin varlığını açıklamıştır ve fosforiti gübre olarak ilk kullanan Alman kimyager J. Liebig'e Kuzey İngiltere'de Liassic fosforit kayaçlarını göstermiştir. Daha sonra 1842 de J.Lawes fosforiti H_2SO_4 içinde çözerek sıvı gübre elde edilen bir metot geliştirmiştir. Bu keşfin ardından endüstriyel fosfor kullanımı yaygınlaşmıştır ve Fransa, Belçika, Rusya, Cezayir, Tunus, Amerika ve Kanada da fosforit kayaçlarının bulunduğu belirlenmiştir (Cook ve ark, 1990). Bu günlerde, fosfat madenlerinden yılda 22×10^{20} kg fosfor üretilerek dünya ekonomisine katılmaktadır. Geride kalan fosfat kayaçlarının miktarı tam olarak bilinmemekle birlikte pratik olarak bu kayaçlar sınırlıdır. Bu kayaçların korunması gerekliliği herkes tarafından vurgulansa da artan fosfor ihtiyacı bu kayaçların tükenmesini hızlandırmaktadır (Reijnders, 2014). Mevcut durumda fosfor birçok alanda kullanılmasına rağmen toplam miktarın % 80 den fazlası gübre olarak kullanılmaktadır. Gübreden sonra fosforun en çok kullanıldığı alanlar, $\sim 1.3 \times 10^9 kg.yıl^{-1}$ hayvan yemi katkısı, $\sim 0.2 \times 10^9 kg.yıl^{-1}$ gıda katkısı, $\sim 0.9 \times 10^9 kg.yıl^{-1}$ deterjan, $\sim 1.2 \times 10^9 kg.yıl^{-1}$ diğer endüstriler ve pestisit üretimi olarak verilmektedir (Liu ve ark, 2008; Suh ve ark, 2011; Koppelaar ve ark, 2013; Chowdhury ve ark, 2014).

1.1.1. Fosforun Çevresel Önemi

Fosforun kelime anlamı ışık saçıcıdır. Fosfor biyosferde canlılığın farklı evrelerinde (fosfat formunda) enerji taşıma kapasitesinden dolayı eşsiz bir elementtir. Fosforun böyle bir özelliğe sahip olmasının sebebi elektron konfigürasyonudur. 3s veya 3p elektronlarını 3d orbitaline transfer edebilmesinden dolayı fosfat formu, esnek, reaktif ve kolayca canlı sistemlere adapte olabilmektedir. Bu özelliğinden dolayı fosfor canlı sistemler için temel element ve biyosferin canlı ve cansız bölümleri arasında en temel fonksiyona sahip elementlerden biridir. Biokütle sentezinde atmosferik karbon dioksitin organik maddeye dönüşümünde sınırlayıcı ve düzenleyicidir. Bundan dolayı fosfor döngüsü karbon döngüsü ile birlikte oksijen, sülfür, azot ve demir döngüsü gibi canlılığa dair döngüler ile bağlantılıdır. Fosfatın temel nütrient olarak karbon ve oksijen gibi biyofil elementler ile etkileşimi neticesinde gerçekleşen fotosentez ve solunum için basitleştirilmiş reaksiyon aşağıdaki gibidir.



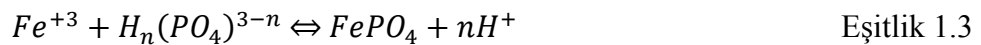
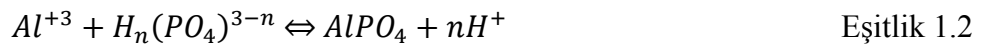
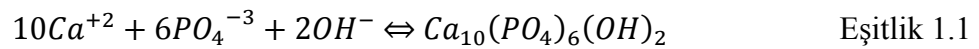
Burada her bir fosfor atomu, 106 karbon atomu ve 141 oksijen molekülü ile reaksiyona girmesi ile biyokütle sentezlenir. Biokütle sentezi için fosfor açısından bu kadar düşük C/P oranı dikkat çekicidir. Fotosentez ile biokütle sentezi bakımından bu muhteşem oranın fosfora bağlı çevre kirlenmesi açısından dezavantajı ötrofikasyondur. Ötrofikasyon sucul ortamlarda azotla birlikte fosforun yeterli miktarı olduğunda aşırı plankton çoğalmasındır. Fotosentezdeki N/P oranına bakıldığında fosfor en temel sınırlayıcı elementtir. Bundan dolayı sucul ortamlara fosfor deşarjı çevre kirliliği bakımından son derece kritik öneme sahiptir. Sucul ortamlara fosfor deşarjı, fosforun çok düşük konsantrasyonların da bile planktonların çoğalması için yeterli olmasından dolayı kısıtlanması konusunda gelişmiş ülkelerdeki otoriteler hem fikirdir.

1.1.2. Su ve Atıksulardan Fosfor Giderimi

Fosfor giderme teknolojileri 1950’li yıllarda ötrofikasyon problemi ve yüzey sularına giren fosforun azaltılması amacıyla gelişmeye başlamıştır. Günümüzde en önde gelen fosfor giderim yöntemi kimyasal çöktürme olmasına rağmen, biyolojik fosfor giderimi daha oturmuş bir haldedir. Kristalizasyon işlemi de bu iki yöntem kadar geliştirilmiş ve endüstriyel alanda kullanılmaya başlanmıştır.

1.1.2.1. Kimyasal Çöktürme

Fosfor gideriminde kimyasal çöktürmenin kullanımı 1950’li yıllarda İsviçre’de ötrofikasyon problemi nedeniyle yaygınlaşmıştır. Kimyasal çöktürme, iki ya da üç değerlikli metal tuzlarının atıksulara eklenmesiyle sudaki fosfatların çözünmez metal fosfatlar halinde çökmesine dayanan fiziko kimyasal bir işlemidir. Bu işlem için en uygun metaller klorür ya da sülfat tuzlarıyla eklenen demir ve alüminyumdur. Ayrıca katı faz ayrımını kolaylaştırmak için anyonik polimerler eklenebilmektedir. Ca^{+2} , Al^{+3} ve Fe^{+3} iyonları ile olan fosfor giderme reaksiyonları sırası ile Eşitlikler 1.1, 1.2 ve 1.3’te verilmiştir.



Kireç ($CaOH_2$) ile fosfor gidermek alüm [$Al_2(SO_4)_3$] veya demir (Fe^{+3}) ile yapılan çöktürme işleminden oldukça farklıdır. Kireç suya ilave edildiğinde, önce sudaki doğal bikarbonat ile kalsiyum karbonat çökeleği oluşturmak üzere

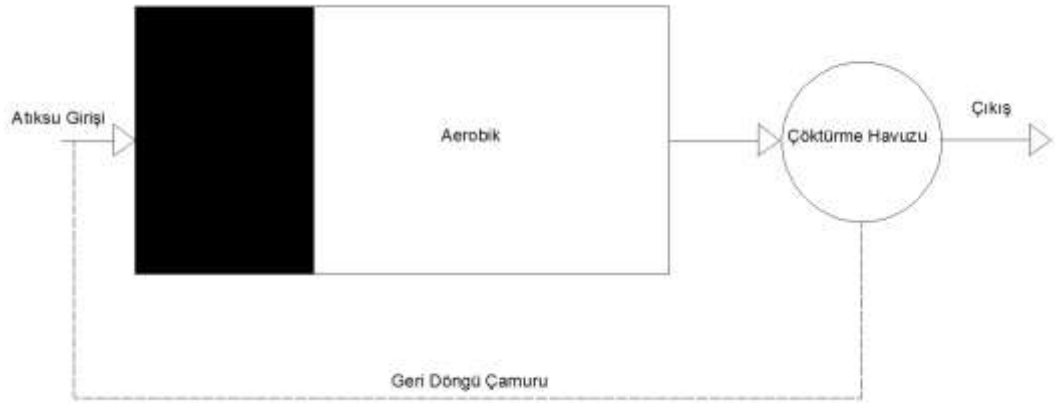
reaksiyona girer. Daha sonra ortamdaki aşırı kalsiyum iyonları fosfat ile reaksiyona girerek hidroksilapatit çökeleğini oluşturacaktır. Bu nedenle gerekli kireç miktarı mevcut fosfat miktarına ve atıksuyun alkalinesine bağlı olacaktır.

Bir mol fosfat çöktürmek için alümin ve üç değerlikli demir iyonlarından birer mol gerekecektir. Bu çöktürme reaksiyonları oldukça basit olup; alkalinite pH, suda bulunan iz elementle ile ilişkilidir. Bu nedenle alüminyum ve demir için verilen eşitlikler (Eşitlik 1.1 ve 1.3 arası) gerekli kimyasal madde dozlarını belirlemek için doğrudan doğruya kullanılmazlar. Bu nedenle gerekli kimyasal madde dozları laboratuvar veya pilot tesis çalışmaları ile belirlenmelidir.

1.1.2.2. Biyolojik Fosfor Giderimi

Biyolojik fosfor giderimi, kimyasal çöktürme işlemi gibi 1950'li yıllarda çalışılmaya başlanmıştır. Belirli koşullar altında, aktif çamur normal biyokütle büyümesi için gereken fosfor miktarından daha fazlasını bünyesine alabilmekte ve atıksulardan fosfor giderimi sağlayabilmektedir (Greenburg ve ark, 1955; Levin ve ark, 1965; Srinath, 1959). Bu giderim uygulamasının kimyasal madde ihtiyacının olmaması ve fazla çamur oluşmaması gibi önemli avantajları bulunmaktadır. Ancak daha karmaşık bir kurulum ve işletme ihtiyacına gereksinim duyması gibi dezavantajları da mevcuttur.

Biyolojik fosfor giderimi, aktif çamur prosesini takiben kurulacak bir anoksik veya anaerobik sistemin kurulması ile gerçekleştirilebilmektedir. Şekil 1.1'de biyolojik fosfor giderimi için temel akım şeması verilmiştir (Morse ve ark, 1997). Anoksik/anaerobik sistemin devamına kurulacak aerobik sistem ile fosforun polifosfatlar şeklinde biyokütlerde tutulması sağlanarak fosfatça zengin çamur olarak giderimi sağlanmaktadır.



Şekil 1.1. Biyolojik fosfor giderimi için temel akım şeması (Morse ve ark, 1998)

1.1.2.3. Kristalizasyon

Kristalizasyon teknolojisi 1970’li yıllarda fosfor giderim ihtiyacının daha sıkı olduğu dönemlerde çalışılmaya başlanmıştır. Bu yöntem yeniden piyasaya sürebilecek bir şekilde giderilmesi amacıyla geliştirilmiştir. Kristalizasyon işlemi için genellikle kalsiyum tuzları kullanılır ve kostik soda ya da kireç gibi alkalilerin eklenmesiyle kalsiyum fosfat olarak sudan ayrılmasıyla gerçekleşir. Son yıllarda kristalizasyon işlemi için kalsiyumun yanında magnezyum tuzlarının kullanımı da yaygınlaşmıştır.

1.1.2.4. Diğer Fosfor Giderme Yöntemleri

İyon değiştirme, manyetik tutma ve adsorpsiyon işlemleri diğer ana fosfor giderme yöntemlerinin haricinde literatürde çalışılmıştır.

İyon değiştirme, anyonik reçineler kullanılarak fosfat iyonlarının başka bir anyonla yer değiştirmesine dayanan fizikokimyasal bir işlemidir. Reçinenin rejenerasyonu ile fosfatlar struvit olarak amonyak ile birlikte çöktürülebilmektedir.

Manyetik su arıtma sistemleri literatürde üçüncül arıtma olarak geçmektedir ve kristalizasyon işleminde benzer bir sistemdir. Kristalizasyon

işleminde olduğu gibi fosfatlar kalsiyum fosfat halinde çöktürülerek mıknatıs gibi manyetik alan yaratabilen maddelere tutunarak sudan uzaklaştırılmasına dayanır.

Fosfat gideriminde adsorbantlar, laboratuvar ölçekli olarak çalışılmıştır. Adsorpsiyon işleminin potansiyel avantajları pH ayarlaması gerektirmemesi nedeniyle herhangi bir kimyasal maddeye ihtiyaç duymaması, çamur olumunun olmaması ve pH'tan etkilenmemesi olarak sıralanabilmektedir. Adsorban madde olarak aktif alumina, yarı-yanmış dolomit ve kırmızı toprak (demir toprağı) günümüze kadar fosfor gideriminde çalışılmış adsorban maddeler olarak belirtilmektedir.

1.2. İyon Değişirme ve Adsorpsiyon

İyon değişirme çözeltideki bir iyonun reçinede bulunan başka bir iyonla yer değiştirmesi ilkesine dayanan işlemidir. İyon değiştiriciler çözeltiden iyonları alıp eşdeğer miktarda diğer iyonları çözeltiye veren katı maddelerdir. İyonları değiştirebilme kabiliyeti materyalin yapısal özelliklerine bağlıdır. İyon değiştiriciler aşırı pozitif veya negatif yüklü bir matristen oluşurlar. Bu aşırı yükler katı yapıda spesifik bölgelere veya fonksiyonel gruplara yerleşirler. Matrisin aşırı yükü zıt iyon olarak adlandırılan iyonlar ile dengelenir. Bazen gözenekler zıt iyonla birlikte çözücüyü de içerir. İyon değiştirici sıvı fazla temas ettiğinde çözücü iyon değiştiriciye geçer ve şişmeye neden olur. Bazı elektrolitler çözücü ile birlikte iyon değiştiriciye girerler ve bunun sonucu ko-iyon olarak adlandırılan aynı yüklü iyonlar fiske edilir. İyon değişimi ve sorpsiyon bir bileşenin katı tarafından tutulmasından dolayı bir birine benzerdir. İki prosesin arasındaki temel fark sorpsiyonun tersine iyon değişimi stokiyometrik bir prosestir.

Adsorbsiyon bir maddenin bir fazdan uygun bir katı yüzeye taşınmasıdır. Adsorbsiyon işleminde en yaygın kullanılan materyal aktif karbondur. Bunun yanı sıra sentetik polimerler silika esaslı maddeler adsorban olarak kullanılmaktadır. Bu maddelerin yüksek maliyeti dezavantajlarıdır. Bazı doğal maddelerin ve bazı

atık materyallerin adsorban olarak kullanılabilirlikleri son yıllarda önemli araştırma konularından biridir.

İyon değişimi ve adsorpsiyon bir birine benzer proseslerdir, çünkü her iki proseste de en yoğun gerçekleşen mekanizma sıvı fazdan katı faza kütle transferidir. Aynı zamanda her ikiside temel olarak bir difüzyon prosesidir. İyon değişimi aynı zamanda bir sorpsiyon prosesidir. Adsorpsiyonla arasındaki fark iyon değişiminde iyonlar tutulurken adsorpsiyonda nötral türler tutulur. Matematiksel teorilerin ve yaklaşımların çoğu aslında sorpsiyon işleminden çok iyon değişimi için geliştirilmiştir. Bununla birlikte bunların çoğu benzer prosesleri açıklamak için modifiye edilmiştir. Fiziksel adsorpsiyonun bir önemli özelliği çok hızlı olmasıdır ve bunun sonucu olarak reaksiyonun toplam hız kontrolü sorpsiyon kinetiğinden daha çok kütle transfer katsayısı tarafından yapılır. Bundan dolayı sorpsiyon bir difüzyon kontrollü proses olarak adlandırılabilir. Bundan dolayı iyon değiştirme işleminin mekanizmasının daha iyi anlaşılabilmesi için çalışmalardan elde edilen verilerin çeşitli kinetik ve izoterm modellerine uygulanmalıdır.

Adsorplanacak herhangi bir maddenin bir adsorbentle birleşme eğiliminin sayısal olarak ifade edilmesi için, sabit sıcaklık ve denge de adsorbent üzerine adsorplanmış miktarın tanımlayan adsorpsiyon izotermi kullanılır. Su arıtımındaki birçok uygulamada adsorplanan madde miktarı sıvı fazdaki konsantrasyonun bir fonksiyonudur ve bu ilişki genellikle izoterm olarak tanımlanır. Adsorbsiyon izotermi, sabit hacimde maddenin belli bir miktarını farklı adsorban miktarlarıyla adsorbsiyona tabi tutarak elde edilen datalardan çıkarılır. Adsorbsiyon izotermi her yeni madde için deneysel datalardan belirlenmelidir. Kesikli bir uygulama için adsorpsiyon kütle dengesi aşağıdaki gibi ifade edilir.

$$\frac{x}{m} = qe = \frac{V}{M} (C_o - C_e)$$

M = Adsorbanın kütlesi (g)

V = Hacim (L)

C_0 = Adsorblanan maddenin başlangıç konsantrasyonu (mg/L)

C_e = Adsorblanan maddenin çıkış konsantrasyonu (mg/L)

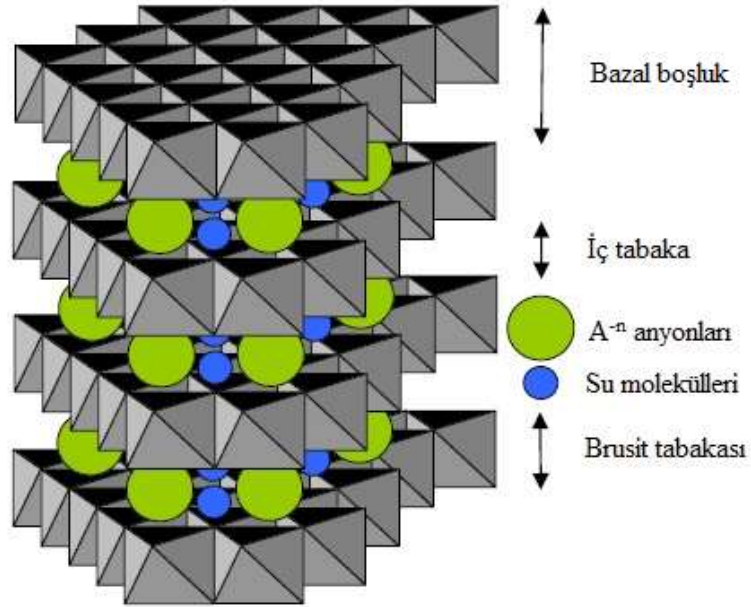
q_e = Birim adsorbent başına adsorplanan madde miktarı (mg/g)

Adsorpsiyon kütle dengesi eşitliğindeki q_e teriminin yerini Freundlich, Langmuir, Temkin ve Dubinin gibi izoterm eşitliklerinden biri alır. Böylece daha sonraki uygulamalarda uygun olan izoterm eşitliğindeki izoterm katsayıları kullanılarak sayısal hesaplamalar yapılır.

1.3. Çift Katmanlı Hidroksitler (ÇKH)

ÇKH'lar çift katmanlı nanoyapılı anyonik killer olarak sınıflandırılmaktadır. Kristal yapıya sahip anyonik killer, pozitif yüklü metal hidroksit tabakaları arasında negatif olarak yüklenmiş su ve anyonları barındıran bir iç tabakaya sahiptir (Cavani ve ark, 1991; Roy ve ark, 1992; Rives ve ark, 1999). ÇKH'ların genel yapısal formülü $[M_{1-x}^{+2}M_x^{+3} \times (OH)_2]^{+x} (A^{-n})_{x/n} \cdot mH_2O$ olmaktadır. Burada M^{+2} iki değerlikli katyonları (Mg^{+2} , Fe^{+2} , Co^{+2} vb.), M^{+3} üç değerlikli katyonları (Al^{+3} , Cr^{+3} , Fe^{+3} vb.), iç tabakadaki anyonun değeri n , (A^{-n}) iç tabaka anyonları (CO_3^{-2} , Cl^- , SO_4^{-2} vb.), x değeri $M^{+3} / (M^{+2} + M^{+3})$ molar oranını ifade etmekte ve 0,2-0,33 arasında değer almaktadır (Cavani ve ark, 1991; Kaika, 2003; Lazaridis ve ark, 2003; Evans ve ark, 2006; Yang, 2007. M^{+2}/M^{+3} oranını değiştirilmesi ile ÇKH'ın yük yoğunluğu ve iyon değiştirme kapasitesi kontrol edilebilir (Newman ve ark, 1998).

Şekil 1.2'de ÇKH'ın yapısal şematik görüntüsü yer almaktadır. Bazal boşluk brusit tabakasını ve iç tabakasının kalınlığını ifade etmektedir (Goh ve ark, 2008).



Şekil 1.2. ÇKH'nın şematik görünümü (Goh ve ark, 2008)

Çift katmanlı hidroksitler doğal kaynaklı minerallerde bulunabildiği gibi sentezi basit ve ekonomik olmaktadır. ÇKH'lar tabakaları arası zayıf bağları ile organik veya inorganik anyonları bünyesine katmaktadır. En çok ilgi çeken özellikleri ise geniş yüzey alanı, diğer iyon değiştirici reçineler ile kıyaslandığı zaman yüksek iyon değiştirme kapasitesi ve daha gelişmiş termal stabilitesi olmaktadır (Bish,1980; Cavani ve ark, 1991; Vaccari, 1998; Ulibarri, 2001; Das ve ark, 2004; Bruna, 2006).

ÇKH'ların potansiyel kullanımları ve çalışma alanları bayağı geniş olmaktadır. Bu alanlara örnek olarak kataliz, fotokimya, elektrokimya, polimerizasyon, magnetizma, biomedikal bilimi ve çevresel uygulamalar verilebilir (Cavani ve ark, 1991; Newman ve ark, 1998; Rives, 2001; Ferreira ve ark, 2004; Li ve ark, 2005; Evans ve ark, 2006).

Son yıllarda ortaya çıkan çevresel kirliliğin giderilmesinde ÇKH'lar ilgi görmeye başlamıştır. Organik ve inorganik atıkların gideriminde çevresel kataliz olarak ÇKH kullanımında önemli araştırmalar ve gelişmeler elde edilmiştir

(Corma ve ark, 1997; Shannon ve ark, 1997; Kannan, 1998; Kannan ve ark, 1999; Palomares, 1999,2004; Perez-Ramirez ve ark, 1999; Rahman ve ark, 2004).

1.3.1. Sentez Metodları

ÇKH aynı sınıf materyaller göz önüne alındığında laboratuvar ortamında sentezi basit olmaktadır. Genel olarak birlikte çöktürme, üre hidroliz ve hidrotermal çöktürme yöntemi kullanılmaktadır.

1.3.1.1. Birlikte Çöktürme Metodu

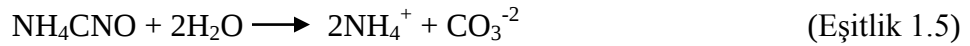
En basit ve en yaygın kullanılan sentez metodu olmaktadır (Othman ve ark, 2009). Su ortamında bulunan M^{+2} ve M^{+3} iyonlarının etkileşimi ile gerçekleşmektedir. Sıklıkla Mg^{+2} ve Al^{+3} metal katyonları kullanılmaktadır.

Düşük doygunlukta ve yüksek doygunlukta çöktürme olmak üzere iki farklı çöktürme metodu bulunmaktadır. Düşük doygunlukta çöktürme metodunda iki ve üç değerlikli metal tuzlarının belirli bir oranda çözeltiye yavaş yavaş eklenmesi ile iç tabaka iyonları çözeltiye eklenmektedir. Devamında iki metal tuzunun çökmesine uygun pH'da bazik çözelti eklenerek sentezlenmektedir. Yüksek doygunlukta çöktürme metodunda ise alkali çözeltiye iki metal iyonunun eklenmesi ile sentezlenmektedir. Yüksek doygunlukta çöktürme, düşük yoğunluklu çöktürme metoduna göre daha az kristalize özellik göstermektedir. Bunun sebebi ise çözeltinin pH'ının sentez sırasında değişiklik göstermesi olarak bildirilmiştir (Cavani ve ark, 1991; Goh, 2008).

1.3.1.2. Üre Hidroliz Metodu

Üre, zayıf baz özelliğinden dolayı ($pK_b=13,8$) uygun anyon varlığında metal iyonlarının hidroksitleri veya çözünmeyen tuzları olarak çöktürmede kullanılabilecek bir yapıya sahiptir. Üre suda yüksek çözünürlüğe sahiptir ve

üenin sulu çözeltilerinde hidrolizi kontrol edilebilmektedir (Vogel ve ark, 1989; Ogawa ve ark, 2002; Rao ve ark, 2005; Zeng ve ark, 2009). Üenin hidrolizi eşitlik 1.1. ve 1.2.'de verilen iki adımda gerçekleşmektedir.



Hız belirleyen adım olan eşitlik 1.1'de yer alan amonyum siyanatın oluşumu ile hidrolizi hızlı gerçekleşen siyanatın ammonyum ve karbonata dönüşmesi ile sonlanmaktadır. Bu reaksiyon pH 9'da gerçekleşir ve sıcaklığın etkisiyle bu pH aralığı metallerin hidroksitleri çökmesi için uygun olmaktadır (He ve ark, 2006).

Bu metot ile ÇKH sentezinde çeşitli sıcaklıklarda, toplam metal konsantrasyonuna, Al/Al+M(II) molar oranına ve üre/ M(II)+Al molar fraksiyonuna göre kompozisyonunun ve kristalizasyonunun değiştirildiği bildirilmiştir (Bravo-Suárez ve ark, 2004; Hibino ve ark, 2009; Liu ve ark, 2014).

1.3.1.3. Hidrotermal Metot

Çift katmanlı hidroksitlerin iç yapısına düşük seçicilik özelliğine sahip organik türlerin eklenmesi istenildiğinde hidrotermal yöntemlerin uygulanması gerekmektedir. Hidrotermal üretim yöntemin, bu gibi durumlarda alüminyum ve ya magnezyum hidroksit gibi çözünmez hidroksitlerin inorganik metal kaynağı olarak kullanılabilmesi özelliğiyle çok etkili olduğu belirtilmektedir. Bu tür çözünmez hidroksit tuzlarının kullanılmasıyla ÇKH yapısına eklenmesi istenen organik maddeler, rekabet edecek başka anyonların ortamda bulunmaması nedeniyle ÇKH yapısına eklenebilecektir (Cavani ve ark, 1991; Ogawa ve ark, 2000, Bravo-Suárez ve ark, 2004; Kovanda ve ark, 2005).

Birlikte çöktürme metodu ile elde edilen ÇKH, paslanmaz çelik teflona aktarılarak otoklavda yüksek sıcaklıklarda (100°C, 140°C, 180°C ve 220°C gibi) belirli bir süre muhafaza edildikten sonra oda sıcaklığında kurutulur ve malzeme 80°C kurutulur (Li ve ark, 2010).

1.3.2. Çift Katmanlı Hidroksitlerin Su ve Atıksu Arıtımında Kullanımı

Çift katmanlı hidroksitler büyük yüzey alanları ve yüksek anyon değiştirme kapasiteleri nedeniyle ek olarak kirletici anyonların gideriminde yüksek verimlerin elde edilebileceği esnek iç tabakaya sahip bir malzeme olarak karşımıza çıkmaktadır. Sulu ortamlarda kirleticinin gideriminde genel olarak üç farklı mekanizma etkin olmaktadır. Bunlar yüzey adsorpsiyonu, iç tabaka anyon değişimi ve hidrotermal işlemler ile ÇKH'ların tekrar yapılandırılması olarak sıralanmaktadır. Yüzey adsorpsiyonu ÇKH'ın yüzeyinde moleküler ya da atomik film oluşturarak kirleticinin yüzeyine bağlanmaktadır. İyon değiştirme prosesinde anyonların iç tabaka ile etkileşimi ve tabakanın yükleme yoğunluğu etkili olmaktadır (Li ve ark, 2005).

ÇKH'lar ile arsenit (AsO_2^-), arsenat (AsO_4^{3-}), kromat (CrO_4^{2-}), fosfat (PO_4^{3-}), selenit (SeO_3^{2-}), selenat (SeO_4^{2-}), borat (BO_3^{3-}), nitrat (NO_3^-), iodat (IO_3^-), molibdat (MoO_4^{2-}) ve vanadat (VO_4^{3-}) oksianyonları giderimleri çalışılmıştır (Gillman, 2006; Yang ve ark, 2005; Ye ve ark, 2004; Chitrakar ve ark, 2005; Das ve ark, 2004; Bryan ve ark, 2003; Ferreira ve ark, 2005; Tezuka ve ark, 2005; Toraishi ve ark, 2002; Zhang ve ark, 2003; Kovanda ve ark, 1999). Adsorpsiyon sistemlerinin dizaynında; adsorbat (tutulan madde) – adsorbant (maddenin tutunduğu cisim) ilişkisi ve adsorbant miktarının optimizasyonunda adsorpsiyon izotermi önemli olmaktadır. ÇKH ile giderim verilerine adsorpsiyon izotermi uygulandığı zaman uygunluklarına göre yaygın olarak kullanılan izoterm modelleri sıralanırsa sıralama Langmuir>Freundlich>modifiye Langmuir>Redlich-Peterson olmaktadır (Goh ve ark, 2008).

Oksianyonların ÇKH ile adsorpsiyonunda pH, adsorbant miktarı, sıcaklık ve partikül büyüklüğü gibi faktörler etkili olmaktadır (Ferreira ve ark, 2006).

Oksianyonların ve ÇKH'nin tipine göre pH'ın etkisi değişmektedir. Genellikle arsenat, kromat, fosfat ve selenit gibi oksianyonların adsorpsiyonunda pH'ın artışı ile giderim verimi artmaktadır. Yüksek pH'larda OH⁻'in oksianyonlar ile rekabeti sebebiyle oksianyonların adsorpsiyonu etkilenmektedir (Szekeres ve ark, 2005; Yang ve ark, 2005). Optimum ÇKH dozunun belirlenmesi adsorpsiyon uygulamalarında ekonomik olmaktadır. Sıcaklığın değişimi adsorbantın denge kapasitesi etkilemektedir. Genellikle adsorpsiyon reaksiyonları ekzotermiktir. Bu yüzden sıcaklık artışı ile tutma kapasitesi düşmektedir (Yang ve ark, 2005). Hidrotermal işlemler görmüş Mg-Al ÇKH ile yapılan bir çalışmada ortam sıcaklığının 30⁰C'den 60⁰C'ye artışı ile fosfat tutulumunda düşüş gözlenmiştir (Das ve ark, 2006). Bunun yanında başka bir çalışmada hidrotermal işlem görmüş Mg-Mn ÇKH ile yapılan fosfat adsorpsiyonun endotermik bir reaksiyon olduğu gözlenmiştir (Chitrakar, 2005). Önceden yapılan çalışmalar incelendiği zaman ÇKH'ların partikül büyüklüklerinin değişiklik gösterdiği gözlenmektedir. Yapılan bazı çalışmalarda ÇKH'nin partikül boyutunun düşmesi ile oksianyonları adsorbe etme kapasitesinin artmadığı fakat adsorpsiyon hızının arttığı gözlenmiştir (Lazaridis ve ark, 2004; Yang ve ark, 2006).

2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR

Bish (1980), takovit olarak adlandırılan Ni-Al hidrotalsitini sentezleyerek Cl^- , NO_3^- , OH^- ve SO_4^{2-} anyonlarının CO_3^{2-} anyonu ile değişimini sulu çözeltilerde incelemiştir. Sentez, nikel ve alüminyum metal katyonlarını klorürlü tuzları şeklinde, bazik ortamda ve atmosfer ile çözeltinin CO_2 miktarı dengeye ulaşana kadar karıştırılması ile elde edilmiştir. Cl^- , NO_3^- ve SO_4^{2-} solüsyonlarının karbonatsız ortamda hazırlandığı ve hidrotalsitin yapısında bulunan CO_3^{2-} 'ın oda sıcaklığında Cl^- , NO_3^- , OH^- ve SO_4^{2-} ile kolayca değişebildiğini bildirmiştir.

Goswamee ve ark. (1998), Mg/Al molar oranı 5:1 ve 2,2:1 olan Mg-Al, Ni-Al ve Zn-Cr tipi dört çeşit çift tabakalı hidroksit sentezlemişlerdir. Sentezledikleri Mg/Al molar oranı 2,2:1 olan ve Mg-Al ÇKH2 olarak adlandırdıkları Mg-Al ÇKH'larının bir kısmını ayırarak kalan kısmı ile birlikte Ni-Al ve Zn-Cr hidrotalsitlerini 450°C ısıtma işlemi tabi tutarak kromat giderimi çalışmışlardır. Isıtma işlemi tabi tutulan Mg-Al ÇKH'ları kullanarak elde ettikleri kromat giderim verileri ile yaptıkları adsorpsiyon izotermi çalışmasının Freundlich izotermine uyduğunu, K_F ve $1/n$ değerlerini ise sırasıyla 1,15 (meq/g)(dm³/g)^{1/n} ve 0,1845 olarak belirlediklerini bildirmişlerdir. Mg/Al molar oranı 5:1 ve 2,2:1 olan Mg-Al ÇKH'ları ile yaptıkları çalışmada Al miktarı fazla olan ÇKH'ın tutma kapasitesinin daha fazla olduğunu, 450°C sıcaklıkta ısıtma işlemi görmüş Mg-Al ÇKH'ının ise ısıtma işlemi görmeyen Mg-Al ÇKH'ına göre tutma kapasitesinin daha yüksek olduğunu tespit etmişlerdir. Ayrıca ısıtma işlemi görmüş Mg-Al ÇKH2'nin ısıtma işlemi görmüş Ni-Al ve Zn-Cr ÇKH'larına göre daha yüksek tutma kapasitesine sahip olduğunu ve adsorpsiyonunun daha hızlı gerçekleştiğini rapor etmişlerdir.

Palomares ve ark. (1999), birlikte çöktürme yöntemi ile Cu-Mg-Al-CO₃ ve Co-Mg-Al-CO₃ hidrotalsitlerini sentezlemişlerdir. Sentezledikleri iki çeşit hidrotalsiti 750°C sıcaklıkta ısıtma işlemi tabi tutarak kullanıma hazır hale getirdikleri hidrotalsitler ile katalitik parçalama ünitesinden çıkan SO₂ ve NO_x giderimi çalışmışlardır. SO₂ ve NO_x gideriminde malzemenin yeterli olduğunu bildirmişlerdir.

Ulibarri ve ark. (2001), birlikte çöktürme metodu ile sentezledikleri hidrotalsitleri kullanarak; iç tabaka anyonlarının etkisini ve malzemenin kristalizasyonunun adsorpsiyon üzerindeki etkisini çalışmışlardır. Çalışmada magnezyum ve alüminyum kaynağı olarak nitratlı ve klorürlü tuzlarını kullanarak sırası ile $Mg-Al-CO_3$ ($HTCO_3$) ve $Mg-Al-Cl$ ($HTCl$) hidrotalsitleri sentezlemişlerdir. Sentezledikleri hidrotalsitleri yıkama-kurutma işleminden sonra üç kısmı ayırmışlardır. Bu kısımlardan ilki $24^\circ C$ sıcaklıkta, kalan 2 kısmı ise sırası ile $80^\circ C$ ve $130^\circ C$ 'de hidrotermal işleme tabi tutmuşlardır. Ayrıca 3 saat bekletme süresi ile $500^\circ C$ sıcaklıkta $HTCO_{3500}$ ve $HTCl_{500}$ olarak adlandırdıkları hidrotalsitleri hazırlamışlardır. Adsorpsiyon çalışmasında sulu çözeltide 2,4,6-trinitrofenol (TNP) ve dodesilbenzilsülfonat (DBS) giderimi çalışmışlardır. Elde edilen verilere adsorpsiyon izotermi uyguladıkları zaman Langmuir izoterminde uyduğu, TNP ve DBS gideriminde hidrotalsitlerin kullanılabilirliğini rapor etmişlerdir. Ayrıca $HTCl$ hidrotalsitinin $HTCO_3$ hidrotalsitine göre; $HTCO_{3500}$ hidrotalsitinin ise $HTCl_{500}$ hidrotalsitine göre daha etkili olduğunu bildirerek kristalizasyonunun artması ile adsorpsiyon kapasitesinin artacağını rapor etmişlerdir.

Lazaridis ve ark. (2003), Crosfield (INEOS Silicas) tarafından temin ettikleri SD1520 kodlu hidrotalsit ile boyar madde giderimi çalışmışlardır. Cibacron Yellow LS-R reaktif boyar maddesi kullanılarak yaptıkları giderim çalışmasında elde ettikleri veriler ile gerçekleştirdikleri adsorpsiyon izotermi çalışmasında adsorpsiyonun Langmuir izoterminde uyduğunu rapor etmişlerdir. Ayrıca 50, 75 ve 100 mg/L başlangıç boyar madde konsantrasyonları ile temin ettikleri hidrotalsiti kullanarak denge konumunda elde edilen boyar madde giderim kapasitelerini sırası ile 4,41; 29,2 ve 47,8 mg/g olarak bildirmişlerdir.

Das ve ark. (2004), düşük doygunlukta birlikte çöktürme yöntemi ile başlangıç molar oranları farklı 7 çeşit (4 çeşit $Zn-Al-Zr$ ve 3 çeşit $Mg-Al-Zr$) ÇKH sentezlemişlerdir. Sentezledikleri ÇKH'ların bir kısmını $450^\circ C$ sıcaklıkta ısıtma işlemi tabi tutarak ÇKH'ların kristalizasyonunu arttırmışlardır. Araştırmacılar ısıtma işlemi görmüş ve görmemiş ÇKH'ları kullanarak sulu çözeltilerde kromat ve selenat giderimini araştırmışlardır. Isıtma işlemi görmüş ÇKH'ların ısıtma işlemi görmemiş ÇKH'lara göre iyon değiştirme kapasitelerinin yüksek olduğunu ve

yaptıkları ön çalışmada Mg-3 (Mg:Al:Zr molar oranı 2,60:1,14:0,26) olarak isimlendirdikleri Mg-Al-Zr ÇKH'larının ısıtma işlemi tabi tutulan ve tutulmayan formları için kromat tutma kapasitelerini sırası ile 11 mg/g ve 4 mg/g olarak bildirmişlerdir. Ayrıca pH 4-9 arasında yaptıkları kromat giderim çalışmasında pH'ın artması ile giderimin azaldığını (pH 4'te Zn-3[Mg:Al:Zr molar oranı 3,08:0,7:0,2] için %92 ve pH 9'da %58, pH 4'te Mg-2[Mg:Al:Zr molar oranı 2,83:0,89:0,27] için %77 ve pH 9'da %48), başlangıç kromat konsantrasyonunun sabit tutularak ÇKH miktarının artırılması ile giderimin arttığını ve ÇKH miktarının sabit tutularak kromat konsantrasyonunun artırılması ile giderimin azaldığını rapor etmişlerdir. Kromat ve selanat gideriminin adsorpsiyon şeklinde gerçekleştiğini, adsorpsiyon kapasitelerinin ise sırası ile 16-24 mg/g ve 23-29 mg/g arasında değiştiğini, Zr^{+4} miktarının artırılması ile tutma kapasitesinin artırılabilirliğini bildirmişlerdir.

Lazaridis ve ark. (2004), bildirdiklerine göre $Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ ve $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ tuzları ile birlikte çöktürme metodunu kullanarak sentezledikleri Mg-Al- CO_3 hidrotalsitleri ile sulu çözeltide kromiyum giderimini araştırmışlardır. Bu çalışmada adsorpsiyonun Freundlich izotermine uyduğu K_F ve n değerlerinin sırası ile 5,10 $(mg/g)(L/mg)^{1/n}$ ve 3,72 olduğunu bildirmişlerdir. Ayrıca malzemenin tutma kapasitesini pH 6'da 17 mg/g olarak rapor etmişlerdir.

Ferreira ve ark. (2006), birlikte çöktürme yöntemi ile sentezledikleri Mg-Al (HTAl) ve Mg-Fe (HTFe) hidrotalsitlerini 105 μm partikül çapının altında olacak şekilde öğütürerek boron giderimi araştırmışlardır. Bu çalışmada 120 dakika temas süresi ile çalıştıkları boron gideriminde HTFe ve HTAl hidrotalsiti için sırası ile 10 ve 80 dakikada dengeye ulaşıldığını bildirerek sırası pH 9,2'de ÇKH'ların tutma kapasitelerini 3,13 mg/g ve 9 mg/g olarak tespit ettikleri, boron adsorpsiyonunda 120 dakikalık temas süresinin denge durumuna ulaşılması için yeterli olduğunu rapor etmişlerdir. Giderim öncesi çözeltide yaptıkları pH ölçümleri ile giderim sonrası pH değerlerini karşılaştırarak hidrotalsitlerin tamponlama özelliğini bildirerek her iki hidrotalsit için başlangıç çözeltilerin pH değerinin 4 olduğunu ve giderim sonrasında HTAl ve HTFe hidrotalsitleri için sırası ile pH değerlerinin 8,9 ve 9,8 olduğunu rapor etmişlerdir. Her iki hidrotalsitin bor giderim mekanizmasının adsorpsiyon/iyon değişimi olduğunu,

adsorpsiyonun Langmuir izotermine uyduğunu ve maksimum kapasite değerlerini HTAl ve HTFe için sırası ile 14 mg/g ve 3,6 mg/g olarak vermişlerdir.

Das ve ark. (2006), birlikte çöktürme metodu ile Mg-Al, Zn-Al, Ni-Al, Co-Al, Mg-Fe, Zn-Fe, Ni-Fe ve Co-Fe ÇKH'ları ile Mg/Al molar oranı 3:1 ve 4:1 olan ÇKH'ları 10 çeşit ÇKH'ı laboratuvarında sentezlenmişlerdir. Sentezledikleri 10 çeşit ÇKH'ı 500°C sıcaklıkta ısıtılarak fosfor giderimi çalışmışlardır. KH_2PO_4 tuzundan hazırlanmış oldukları 500 mg/L stok fosfat çözeltisinden 50 mL alınarak 4 saat temas süresi ile çalıştıkları fosfor giderimi çalışmasında Mg-Al, Zn-Al, Ni-Al, Co-Al, Mg-Fe, Zn-Fe, Ni-Fe ve Co-Fe ÇKH'ları için fosfor giderimlerini sırası ile %85, %43, %63, %20, %73, %40, %27 ve %32 olarak bildirmişlerdir. $\text{Mg}^{+2}/\text{Al}^{+3}$ molar oranı 2:1 (CLDH1), 3:1 (CLDH2) ve 4:1 (CLDH3) olarak sentezledikleri ÇKH'ların fosfat giderim verimlerini (50 mg/L fosfor konsantrasyonu, 1 g/L ÇKH kullanarak pH 6'da 4 saatlik temas süresi) sırası ile %85, %73 ve %65 olarak tespit etmişlerdir. CLDH1'in en yüksek fosfor giderimine sahip olduğunu ve ÇKH'ın bünyesindeki Al^{+3} miktarının artması ile tutma kapasitesinin arttığını bildirmişlerdir. Ayrıca CLDH1 ÇKH'ının fosfor tutma kapasitesini 42,4 mg/g olarak tespit ettiklerini ve ısıtılarak tutulmayan Mg-Al ÇKH'ına göre (10 mg/g) daha fazla olduğunu bildirmişlerdir. CLDH1 ÇKH'ı ile pH 2-11 aralığında yaptıkları fosfor giderimi çalışmasında pH 5 değerinde en yüksek giderim olan %91,7 değerine ulaştıkları, asidik şartlarda ÇKH'ın yapısının bozulacağı ve bazik şartlarda OH^- ile fosfat türlerinin rekabete gireceği düşünüldüğünden optimum pH değerini bu çalışmada 6 olarak belirlemişlerdir. Araştırmacılar CLDH1 ÇKH'ları ile yaptıkları çalışmada adsorban miktarının (0,4 g/L – 5 g/L) artışı ile giderimin arttığını fakat yükleme kapasitesinin azaldığını (0,4 g/L ÇKH kullanarak maksimum kapasite değeri 44,3 mg/g'a ulaşıldığı), 30 mg/L, 50 mg/L ve 70 mg/L fosfat çözeltileri ile 1 g/L ÇKH kullanılarak yapılan analizde başlangıç fosfor miktarının artması ile fosfor gideriminin azaldığını (4. saatin sonunda sırası ile %92, %83 ve %63) rapor etmişlerdir. Ortak anyon etkisini araştırmak için hazırlanan 50 mg/L NO_3^- , Cl^- , SO_4^{2-} ve SeO_3^{2-} , PO_4^{3-} çözeltilerinden ayrı ayrı hazırlanarak 1 g/L ÇKH kullanılarak fosfor giderim verimleri incelenmiştir. PO_4^{3-} , $\text{PO}_4^{3-} + \text{NO}_3^-$, $\text{PO}_4^{3-} + \text{Cl}^-$, $\text{PO}_4^{3-} + \text{SO}_4^{2-}$, $\text{PO}_4^{3-} + \text{SeO}_3^{2-}$ çözeltilerinde sırası ile fosfat giderimleri %84,4;

72,5; 69,6; 59,7 ve 48,5 olarak tespit etmişlerdir. Fosfor gideriminin adsorpsiyon ile açıklanabileceğini, CLDH1 ile yapılan adsorpsiyon analizinde Langmuir ve Freundlich izotermine uyduğunu bildirmişlerdir.

Prochaska ve Zouboulis (2006), dikey akışlı yapay sulak alanda fosfor giderimi için kütlece 10:1 oranında kum ve dolomit karışımından oluşan bir malzeme kullanmışlardır. Malzemenin başlangıçta %45 fosfor giderimi gerçekleştirdiği ve işletme periyodu sonunda kullanılmamış malzeme ile karşılaştırıldığında %6,5-18 aralığına düştüğü belirtilmiştir.

Kuzawa ve ark. (2006), (Tomita Pharmaceutical Co. Ltd., Japan) firmasından temin ettikleri sentetik Mg-Al hidrotalsiti ile 200 mg $\text{Na}_3\text{PO}_4/\text{L}$ olarak hazırladıkları sulu çözeltiden fosfat giderimi ve geri kazanımı çalışmışlardır. Elde edilen veriler ile yapılan izoterm analizine göre adsorpsiyonun Langmuir tipine uyduğu ve maksimum adsorpsiyon kapasitesi q_m değerinin 47,3 mg/g olduğunu bildirmişlerdir. Fosfor geri kazanımı için alkali sodyum klorür (%10 NaCl + %3 NaOH) ve hidrotalsitin rejenerasyonu için %25 lik MgCl_2 çözeltileri kullanarak % 80 geri kazanım ve yüzde yüze yakın rejenerasyon gerçekleştiğini rapor etmişlerdir. Ayrıca çalışmada kullanılan granüler hidrotalsitlerin partikül çapı dağılımının 0,5-1,7 mm arasında değiştiğini bildirmişlerdir.

Shilton ve ark. (2006), demir çelik endüstrisinde yan ürün olarak oluşan fırın cürufunun kullanıldığı tam ölçekli bir tesiste 11 yıl boyunca fosfor giderimini incelemişlerdir. 1993-1994 yılları arasında filtrenin %77 oranında fosfor giderimi gerçekleştirdiğini ve 5 yıl boyunca çıkış suyunda toplam fosfor konsantrasyonun 2,3 mg/L nin üzerine çıkmadığını bildirmişlerdir. 6. yıldan itibaren filtrenin fosfor giderim veriminin azaldığı ve 11 yıllık periyodun sonunda filtrenin 22,4 ton toplam fosfor giderdiğini ve bu miktarın 19,7 tonluk kısmının ilk 5 yıllık periyotta giderildiğini ve cürufun fosfor tutma kapasitesinin 1,23 kg/ton olduğunu rapor etmişlerdir.

Wang ve ark. (2007), 40°C sıcaklıkta (HT) birlikte çöktürme yöntemi ile Mg-Al- CO_3 hidrotalsitleri sentezlemişlerdir. Sentezlenen hidrotalsitin bir kısmı ayrılarak 80°C (HT80) ve 130°C (HT130) sıcaklıklarda teflon kapta hidrotermal işleme tabi tutularak toplamda üç adet malzeme sentezlenmiştir. Sentezlenen

malzemeler ile florür giderimi araştırılmıştır. HT, HT80 ve HT130 hidrotalsitleri için sırası ile %55, %65,5 ve %82,3 giderim verimi elde ettiklerini, elde edilen verilere adsorpsiyon izotermeleri uygulanarak Langmuir izotermine uyduğunu, izoterm kapasite değerlerini ise 1,10; 1,13 ve 1,65 mg/g olduğunu bildirmişlerdir.

Anirudhan ve ark. (2008), $Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ ve $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ metal tuzlarını kullanarak Mg/Al molar oranı 3 olan hidrotalsit sentezlenmişlerdir. Birlikte çöktürme yöntemi ile hazırlanmış oldukları hidrotalsiti pH 4'te tannin ile yükleyerek modifiye etmişlerdir. Hazırlanmış olan hidrotalsitler ile endüstriyel atıksularda bulunan Cu^{+2} , Zn^{+2} ve Cd^{+2} ağır metal iyonlarının giderimini araştırmışlardır. En uygun denge izotermine Langmuir olduğu ve Cu^{+2} , Zn^{+2} ve Cd^{+2} iyonları maksimum adsorpsiyon kapasitelerini sırası ile 81,47 mg/g, 78,91 mg/g ve 74,97 mg/g olduğunu bildirmişlerdir.

Guftasson ve ark. (2008), Filtra-P®, Polonite®, doğal kireçtaşı ve demir üretiminde kullanılan su soğutmalı fırın cürufu gibi dört farklı malzemenin sentetik olarak hazırlanmış fosfor çözeltisinden fosfor giderim verimlerini araştırmışlardır. Filtra-P ve Polonite gibi ticari olarak bulunan filtre malzemelerinin her ikisinin de %95'in üzerinde fosfor giderdiğini ve bu filtre malzemelerinin üzerinde tutulan fosfor miktarının 1,9-19 g/kg olduğunu bildirmişlerdir. Ayrıca diğer iki materyalin fosfor giderim verimlerinin Filtra-P ve Polonite göre daha düşük (doğal kireç taşı %51,1 ve fırın cürufunun ise %85,6) olmasına rağmen fosfat gideriminde kullanılabileceğini önermektedirler.

Türk ve ark. (2010), $MgCl_2 \cdot H_2O$ ve $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ metal tuzlarını kullanarak Mg^{+2}/Fe^{+3} oranı 2,46 olan Mg-Fe hidrotalsitleri sentezlemişlerdir. Birlikte çöktürme metodu ile hazırladıkları hidrotalsiti kullanarak sulu çözeltiden arsenit giderimi çalışmışlardır. Arsenit giderimi için uygun pH değerinin 9 olduğu ve 300 µg/L başlangıç arsenit konsantrasyonundan 27 µg/L'ye indiğini bildirmişlerdir. Adsorpsiyon izotermeleri için yapılan analizde Langmuir izotermine uyduğunu ve maksimum adsorpsiyon kapasitesinin 80,35 µg/g olduğunu belirlemişlerdir.

Kovanda ve ark. (2010), (M^{+2}/Al) molar oranı 2 olacak şekilde Mg-Al- NO_3 ve Zn-Al- NO_3 hidrotalsitlerinin iç tabakasında vinil grupları ve organik anyonlar ile modifiye ederek materyallerin fotoaktif özelliklerini incelemişlerdir.

Xiong ve ark. (2010), turba ile atıksulardan fosfor giderim verimliliğini incelemişlerdir. Turba ile fosfor gideriminin düşük pH değerinde (6,5) daha etkili olduğunu ve Langmuir izotermine göre maksimum adsorbsiyon kapasitesinin 8.91 mg/g olduğunu bildirmişlerdir. Ayrıca turba ile yaptıkları kolon testlerine göre % 94-99 çözünmüş fosfor ve % 76-95 aralığında toplam fosfor giderimi olduğunu rapor etmişlerdir.

Köiv ve ark. (2010), Kalsiyumca zengin alkali filtre materyali olarak tanımladıkları, hidratlı bitümlü şist külü ve bitümlü şist'in fosfor bağlama kapasitelerini belirlemek için Estonyanın iki farklı bölgesinde plot ölçekli filtreler kullanmışlardır. Her iki bölgede kurulan pilot tesis biri yatay akışlı diğeri dikey akışlı paralel işletilen filtreler şeklinde kurulmuştur. Pilot tesislerden Tapa P konsantrasyonu 0,13-17 mg/L arasında değişen ön arıtma uygulanmış evsel atıksu beslenerek altı ay boyunca işletilmiştir. Diğer pilot tesis Väätsa ise ortalama 3,4 mg/L fosfor içeren ön arıtma uygulanmış çöp sızıntı suyu ile on iki ay işletilmiştir. Her iki bölgede işletilen filtrelerin fosfor giderimlerinin ortalama %99 olduğunu bildirmişlerdir.

Chubar (2011), sol-jel sentez metodu ile sentezlediği Mg-Al hidrotalsitleri kullanarak sudan arsenit giderimine ek olarak florit, bromat, bromit, selanat ve borat giderimini incelemişlerdir. Başlangıç konsantrasyonları 170 (arsenit); 212 (florit); 209,06 (bromat); 198,2 (bromit); 127,2 (selenat); 204,2 (borat) mg/L olan çözelti ile yapılan giderim çalışmasında tutulan miktarları sırası ile 18-34, 26-104, 9-78, 3-25, 4-69 ve 8-16 mg/g olarak bildirmiştir. Sentezledikleri hidrotalsitler arasında arsenit için en yüksek adsorpsiyon kapasitesini 220 mg/g olarak rapor etmiştir.

Choi ve ark. (2011), titanyum ile yaptıkları inorganik materyal ile atıksulardan fosfor giderimin Langmuir izotermine uygun olduğunu ve maksimum adsorpsiyon kapasitesini 49.28 mg P/g olarak vermişlerdir. Fosforun materyale bağlanma enerjilerini temsil eden Langmuir izoterm sabitleri α ve β değerlerinin sırası ile 1.33×10^{-2} L/mg ve 51.20 mg/kg olduğunu bildirmişlerdir.

Yin ve ark. (2011), atıksulardan fosfor giderimi için doğal olarak bulunan kalsiyumca zengin magnezyum silikası kullanmışlardır. Fosfor giderim mekanizmasının adsorpsiyon olduğunu, adsorpsiyonun Freunlich izotermine

uyduğunu ve malzemenin maksimum fosfor tutma kapasitesinin 32 mg/g olduğunu bildirmişlerdir.

Zhong-liang ve ark. (2011), demir oksit yüklenmiş aktif karbon kompozit adsorbanı ile aktif karbonun fosfor giderim verimlerini karşılaştırmışlardır. Demir oksit-aktif karbon kompozit adsorbanın adsorpsiyon kapasitesinin 98.38 mg/g, aktif karbonun ise 78.9 mg/g olduğunu bildirmişlerdir. Her iki Adsorban materyalin de Langmuir izotermine uyduğunu ve adsorpsiyon izoterm katsayılarını demir oksit-aktif karbon kompozit materyali için 0,068 L/mg ve aktif karbon için 0,026 L/mg olarak vermişlerdir.

Drenkova-Tuhtan ve ark. (2013), sentezlemiş oldukları Mg-Al, Mg-Al-Zr, Mg-Fe-Zr ve Mg-Fe çift katmanlı hidroksitleri süperparamagnetik partiküllere dönüştürerek atıksudan fosfat giderimi araştırmışlardır. Mg-Fe-Zr, Mg-Fe, Mg-Al-Zr, Mg-Al ve Zr-çöktürmesi ile elde ettikleri malzemelerin adsorpsiyon kapasitelerini sırası ile 30; 21; 20; 13 ve 16 mg/g olduğu, adsorpsiyonun Langmuir izotermine uyduğu ve q_m değerini 35,5 mg/g olarak bildirmişlerdir. Ayrıca pH 7’de elde edilen maksimum kapasite değerinin pH 4,5’te elde edilen değerden daha düşük olduğu, en yüksek giderim verimi olan %97,5 değerine pH 2,8’de ulaşıldığı ve pH değerinin 3’ün altına düşürülmesi ile ÇKH parçacıklarının çözünmeye başladığını rapor etmişlerdir.

Galindo ve ark. (2014), birlikte çöktürme yöntemi ile Mg^{+2}/Al^{+3} molar oranı 2:1, 3:1 ve 4:1 olan Mg-Al hidrotalsitler sentezlemişlerdir. Sentez için Mg^{+2} kaynağı olarak $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ metal tuzunu ve Al^{+3} kaynağı olarak Metalquex, S.L. (Zaragoza, İspanya) firmasının tehlikeli olarak sınıflandırılan alüminyum atığını kullanmışlardır. Sentezlenen malzemenin düşük kristalize özellik gösterdiğini bildirmişlerdir.

Nur ve ark. (2014), demir okside doymuş kuvvetli bazik reçine kullanılarak fosfat giderimi çalışması yapmışlardır. Purolite FerrIX A33E isimli reçine kullanılarak yapılan çalışma kesikli ve sabit yataklı kolon olmak üzere iki farklı şekilde yapılmıştır. Çalışmada sentetik konsantrasyonu 5 ila 30 mg/L arasında değişen pH değeri 7,2-7,6 arasında değişen sentetik fosfat çözeltisi kullanmışlardır. Reçine dozu 1g/L ile %90, >5g/L ile %97 fosfor giderim verimleri elde etmişlerdir. Kesikli yapılan çalışmalar Langmuir izotermine tam

uyum sağladığı ve maksimum adsorpsiyon kapasitesinin 48 mg P/g olduğunu belirtmişlerdir. Adsorbe olan fosfatın 1M NaOH ile etkili bir biçimde desorbe olduğunu ve desorbe olan fosfatın %99,5'u CaCl_2 çöktürülmesi ile geri kazanıldığını belirtmişlerdir.

Wang ve ark. (2014), pilot ölçekli membran biyoreaktör ve öncesinde demir sülfat tuzu eklenmesi ile sentetik atıksudan (giriş fosfor konsantrasyonu = 8,12 mg/L) fosfor giderimini çalışmışlardır. Demir sülfat membran biyoreaktörün anoksik bölümü ve filtrasyon bölümü olmak üzere iki farklı yerde Fe(II)/PO_4 molar oranına göre eklenmiştir. Çalışmada demir sülfat, filtrasyon bölümüne 85 gün boyunca 2,99 molar oranında ve anoksik bölmesine 111 gün boyunca 2,60 molar oranında eklenmiştir. Elde ettikleri sonuçlara göre, demir tuzları her iki bölmeye de eklendiğinde benzer sonuçlar elde ettikleri ve çıkış fosfor konsantrasyonunun 0,05'ten küçük olduğunu belirtmişlerdir. Süpernatant sıvısında demir konsantrasyonu analizi yapılarak, fosfor gideriminin ana mekanizmasının adsorpsiyon olduğunu belirtmişlerdir.

Benammar ve ark. (2015), aktif çamur bakterilerini saf kültürler halinde izole ederek bu türlerin fosfat giderim becerilerini karşılaştırdıkları çalışmada, aktif çamurdan 15 farklı fosfat tutma özelliği olan bakteri türü elde etmişler ancak sadece bunlardan sadece 4 tanesini karakterize etmişlerdir. Bu 4 bakteri türü ile yapılan biyosorpsiyon çalışmalarında, *Ac. junii* %83,36, *P. aeruginosa* %81,78, *Al. denitrificans* %76,72 ve *M. lacunata* AS2 %50,6 fosfor giderimine sahip olduğunu belirtmişlerdir.

Xie ve ark. (2015), aktive edilmiş alüminyum oksit ve lantanyum oksit ile fosfat giderimini ve geri kazanımını çalışmışlardır. Kesikli adsorpsiyon deneyleri 25°C'de, 180 dev/dak karıştırma hızında 24 saatlik temas süresinde gerçekleştirmişlerdir. Fosfor konsantrasyonunu 5 mg/L'den <0,5mg/L'ye düşürmek için gereken aktif alüminyum hidroksit ve lantanyum oksit konsantrasyonlarını sırasıyla 1,2 g/L ve 0,08-0,1g/L olduğunu ve alüminyum oksit için 0,1 M NaOH ve lantanyum oksit için 0,5 M HCl kullanılarak fosfatın tamamen desorbe edilerek geri kazanıldığını belirtmişlerdir. Her iki madde ile yapılan adsorpsiyon işleminin Langmuir izotermine uyduğunu ve Langmuir

adsorpsiyon kapasitelerinin aktif alüminyum oksit için 20,88 mg/g ve lantanyum için 46,95 mg/g olduğunu belirtmişlerdir.

Xu ve ark. (2015), sentetik üre çözeltilisinden magnezyum potasyum fosfat çökmesi ile fosfor ve potasyum geri kazanımını çalışmışlardır. Yapılan çalışmada pH 7,5-11,5 arasında, Mg/P oranı 0,6:1 ile 1,6:1 aralıklarında değiştirilmiştir. Tüm deneysel çalışma 25°C’de, 300 dev/dak karıştırma hızında ve 60 dakikalık reaksiyon sürelerinde gerçekleştirilmiştir. Elde ettikleri sonuçlara göre maksimum fosfor ve potasyum geri kazanım verimleri sırasıyla %99 ve %33 olarak belirtilmiştir.

3. MATERYAL VE METOD

3.1. Materyal

3.1.1. Sentetik Fosfat Çözeltisi

Bu çalışmada kullanılacak olan fosfor çözeltileri potasyum dihidrojen fosfat (KH_2PO_4) tuzundan hazırlanmıştır. Hazırlanmış olan fosfat çözeltisinde pH ve orto-fosfat analizi yapılmıştır.

3.1.2. Kullanılan Reaktifler ve Cihazlar

Bu çalışmada kullanılan reaktifler Çizelge 3.1’de yer almaktadır. Fosfat ölçümleri için Perkin Elmer TU-1880 UV-Spektrofotometre ve pH ölçümleri için WTW 3110i pH metre kullanılmıştır.

Çizelge 3.1. Çalışmada kullanılan reaktifler

Reaktif adı	Formül	Mol ağırlığı, g/mol	Üretici	Saflık, %
Magnezyum klorür	$\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	203,3	Merck	96-101
Demir(III) klorür	$\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	231,54	Sigma	98
Alüminyum(III) klorür	$\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	241,43	Merck	97-101
Sodyum hidroksit	NaOH	40	Sigma	98-100
Hidroklorik asit	HCl	1L=1,19 kg	Merck	37
Potasyum dihidrojen fosfat	KH_2PO_4	136,09	Carlo Erba	98-100

3.1.3. Çift Tabakalı Hidroksitler

Bu çalışmada $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ve $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ tuzları kullanılarak sentezlenmiş olan Mg-Fe çift katmanlı hidroksiti (ÇKH) ve $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ve $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ tuzları kullanılarak sentezlenmiş olan Mg-Al ÇKH’ı olmak üzere iki çeşit çift katmanlı hidroksit kullanılmıştır.

3.2. Metod

3.2.1. Çift Katmanlı Hidroksit Sentezi

Birden fazla çift katmanlı hidroksit sentez yöntemi mevcuttur. Bunlara birlikte çöktürme (Cavani ve ark, 1991), sol-jel metodu, üre hidroliz metodu gibi yöntemler örnek verilebilir. Bu çalışmada birlikte çöktürme metodu ile iki çeşit çift katmanlı hidroksit sentezlenmiştir.

3.2.1.1. Mg-Fe Çift Katmanlı Hidroksit Sentezi

Sentez iki aşamadan oluşmaktadır. İlk aşama birlikte çöktürme metodu ile çift katmanlı hidroksitlerin sentezlenmesi olup ikinci aşama sentezlenen malzemelerin kullanım için hazırlanması olmaktadır.

Senteze başlamadan önce 1 L hacimli beherde deiyonize su ile 0,15 M 400 mL NaOH çözeltisi hazırlanır. Devamında oda sıcaklığında ($\cong 24^{\circ}\text{C}$), 300 dev/dak karıştırma hızında hazırlanmış olan NaOH çözeltisine yavaş yavaş 3,66 g (18 mmol) $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ve 1,62 g (16 mmol) $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ tuzları eklenir. Sentez için uygun pH 10,5-11 arasında olmakta ve sentez esnasında pH değeri azalmaktadır. Bu sebeple NaOH ile karıştırma sırasında pH ayarlanarak senteze devam edilir. 10 dakika süresince pH kontrol edilerek karıştırma işlemi sürdürülür. 10 dakikanın sonunda pH HCl ile 7'ye ayarlanır ve karışım işlemi sonlandırılır. Elde edilen katı-sıvı karışımı 2 saat boyunca çökelmeye bırakılır. 2 saatlik süre sonunda sıvı faz uzaklaştırılarak malzeme elek üzerinde bulunan kaba filtreye dökülür, ayrılır ve 1 saat süre ile kurutulur.

İkinci aşama olan sentezlenen ÇKH'nın kullanıma hazır hale gelmesi için önceden 60°C sıcaklığa ayarlanmış etüve sentezlenen malzeme konularak 24 saat süresince kurutulur. Kurutma işleminden sonra deiyonize su ile birkaç defa yıkandıktan sonra oda sıcaklığında ($\cong 24^{\circ}\text{C}$), 24 saat süresince kurutmaya bırakılır.

3.2.1.2. Mg-Al Çift Katmanlı Hidroksit Sentezi

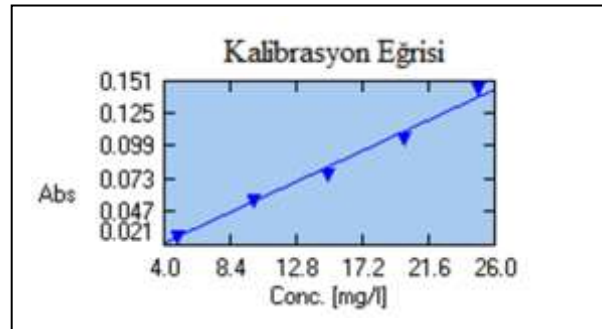
Mg-Al ÇKH sentezi Mg-Fe ÇKH'larının sentez yöntemi ile aynı olup iki aşamadan oluşmaktadır. İlk aşama birlikte çöktürme metodu ile çift katmanlı hidroksitlerin sentezlenmesi olup ikinci aşama sentezlenen malzemelerin kullanım için hazırlanması olmaktadır.

Senteze başlamadan önce 1 L hacimli beherde deiyonize su ile 0,15 M 400 mL NaOH çözeltisi hazırlanır. Devamında oda sıcaklığında ($\cong 24^{\circ}\text{C}$), 300 dev/dak karıştırma hızında hazırlanmış olan NaOH çözeltisine yavaş yavaş 4,16 g (20 mmol) $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ve 2,41 g (10 mmol) $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ tuzları eklenir. Sentez için uygun pH 10,5-11 arasında olmakta ve sentez esnasında pH değeri azalmaktadır. Bu sebeple NaOH ile karıştırma sırasında pH ayarlanarak senteze devam edilir. 10 dakika süresince pH kontrol edilerek karıştırma işlemi sürdürülür. 10 dakikanın sonunda HCl ile pH 7'ye ayarlanır ve karışım işlemi sonlandırılır. Elde edilen katı-sıvı karışım 2 saat boyunca çökmesi için beklenir. 2 saatlik süre sonunda sıvı faz uzaklaştırılarak malzeme elek üzerinde bulunan kaba filtreye dökülür ve 1 saat süre ile kurutulur.

İkinci aşama olan sentezlenen ÇKH'ın kullanıma hazır hale gelmesi için önceden 60°C sıcaklığa ayarlanmış etüve sentezlenen malzeme konularak 24 saat süresince kurutulur. Kurutma işleminden sonra deiyonize su ile birkaç defa yıkandıktan sonra oda sıcaklığında ($\cong 24^{\circ}\text{C}$), 24 saat süresince kurutmaya bırakılır.

3.2.2. Analitik Metotlar

Fosfor analizleri Perkin Elmer marka TU-1880 model UV-VIS spektrofotometre ile yapılmıştır. Standart Methods, 4500-P C analiz yöntemi ile asidik şartlar altında amonyum molibdatın; fosfatın heteropoli asit ve molibdofosforik asit formlarına dönüşmesi ile ölçülmüştür. Fosfor ölçümleri için cihaz kalibrasyonu baştan hazırlanmış ve kalibrasyon eğrisi Şekil 3.1'de kalibrasyon denklemi ise ($R^2=0,9957$) Eşitlik 3.1'de verilmiştir.



Şekil 3.1. Fosfor analizi için kullanılan kalibrasyon eğrisi

$$Abs = 0,00559 * (Conc) - 0,00194 \quad (\text{Eşitlik 3.1})$$

pH ölçümleri pH 4,01; pH 7 ve pH 10 tampon çözeltileri ile kalibre edilen WTW 3110i pH metre kullanılarak Standart Methods, 4500-H⁺ B metoduna göre ölçülmüştür. Bu çalışmada yapılan tartımlar Ohaus marka DV215CD model otomatik kalibrasyon özelliği bulunan SİMKAL kalibrasyon merkezi tarafından ÇÜ-0405001 kod ve 10M02701 sertifika numarası ile kalibre edilmiş hassas tartı ile yapılmıştır.

3.2.3. Mg-Fe ve Mg-Al Çift Katmanlı Hidroksitleri ile Fosfor Giderimi

Bu çalışmada sentezlenen Mg-Fe ve Mg-Al ÇKH'ları partikül çaplarına göre sınıflandırıldıktan sonra KH₂PO₄ tuzundan hazırlanan 20 mg/L PO₄⁻³-P içeren fosfor çözeltisinden 50 mL alınarak Çizelge 3.2'de belirlenen ÇKH miktarları ile fosfor giderimi araştırılmıştır. Her bir partikül çapı sınıfı için ayrı ayrı EK-1'de belirlenen miktar tartıldıktan sonra 100 mL'lik erlenmayere aktarılır. Devamında 50 mL fosfor çözeltisi ÇKH'ın bulunduğu erlenmayere eklenerek oda sıcaklığında ($\cong 24^{\circ}\text{C}$), 334 dev/dak çalkalama hızında ve 1 saat süresince karıştırılır. 1 saatlik süre sonunda çözelti filtre edilmiş (selüloz asetat filtre, 0,45 μm), fosfat analizi yapılarak ve pH değeri belirlenmiştir.

Sentetik fosfor çözeltisi ile yapılan fosfor giderim araştırmasında elde edilen veriler Freundlich, Langmur izoterminin 4 farklı lineer formu, Temkin ve Dubinin izoterm modellerine uygulanmıştır.

3.2.4. Çift Katmanlı Hidroksitlerin Fosfor Tutma Kapasitesinin Belirlenmesi

Bu çalışmada 100 mg/L $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ içeren fosfor çözeltisi ile 125-180 μm partikül çapında Mg-Fe ve Mg-Al ÇKH'larından sırası ile 1 g ve 0,1 g kullanılarak malzemelerin tutma kapasiteleri belirlenmiştir. Araştırma ortam sıcaklığında ($\cong 24^\circ\text{C}$), 334 dev/dak karıştırma hızında ve 24 saat temas süresinde 100 mg/L $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ içeren fosfor çözeltisinden her seferinde 50 mL alınarak yapılmıştır. 24 saatlik süre sonunda çözelti filtre edilerek (selüloz asetat filtre, 0,45 μm) fosfor analizi yapılmıştır. Başlangıç fosfor konsantrasyonu ile 24 saat temas süresi sonundaki fosfor konsantrasyonu eşit olana kadar kesikli sistem çalışma sürdürülmüştür. Başlangıç fosfor çözeltisi miktarı ile 24 saatlik süre sonundaki fosfor miktarı eşit olunca Mg/Fe ve Mg/Al ÇKH'ları için tutulan fosfor miktarları kümülatif olarak toplanarak iki tip ÇKH'ın 125-180 μm partikül çapına sahip partikülleri için tutma kapasiteleri belirlenmiştir.

4. BULGULAR VE TARTIŞMA

4.1. Bulgular

Bu çalışmada, son yıllarda üzerine metodoloji ve kullanım alanları konusunda yoğun olarak çalışılan anyonik killere olarak adlandırılan çift katmanlı hidroksitler (ÇKH'lar) kullanılarak fosfor giderimi araştırılmıştır. Bu amaçla Mg-Fe ve Mg-Al formunda iki çeşit ÇKH sentezlenmiştir. Bu iki ÇKH ile KH_2PO_4 tuzundan hazırlanan fosfat çözeltisinden fosfor giderim verimleri, fosfat tutma kapasiteleri ve adsorpsiyon izoterm analizleri yapılmıştır. Deneysel çalışmadan elde edilen bulgular ÇKH sentezi, kesikli sistemde fosfat giderimi, fosfor çözeltilerinin pH değerleri, ÇKH'ların fosfat tutma kapasitelerinin belirlenmesi ve adsorpsiyon izoterm verileri şeklinde beş başlık altında sunulmuştur.

4.1.1. Çift Katmanlı Hidroksitlerin Sentezi

Fosfor gideriminde kullanılmak üzere $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ve $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ bileşiklerini kullanılarak birlikte çöktürme yöntemi ile Mg-Fe ve Mg-Al ÇKH'ları sentezlenmiştir. ÇKH'ların sentezi tam karışım sağlanarak (300 dev/dak), ortam sıcaklığında ($\cong 24^\circ\text{C}$), pH değeri (pH 10,5-11) kontrol edilerek yapılmıştır. Deiyonize su ile birkaç defa istenmeyen safsızlıkları gidermek için yıkanarak kurutulan ($\cong 24^\circ\text{C}$) ÇKH'lar kullanıma hazır hale getirilmiştir. Sentez sonrası partikül çapları dağılımına göre her iki ÇKH ayrı ayrı sentezlenen miktarları hesaplanmıştır. Partikül çapları dağılımına göre sentezlenen ÇKH miktarları Çizelge 4.1'de verilmiştir.

Çizelge 4.1. Sentezlenen ÇKH'ların partikül çaplarına göre dağılımları ve miktarı

Mg-Fe		Mg-Al	
Partikül çapı, μm	Miktarı, g	Partikül çapı, μm	Miktarı, g
125-180	6,675	125-180	0,892
180-212	11,893	180-212	0,629
212-355	24,468	212-355	6,474
355-500	13,022	355-425	6,524
500-600	7,796	425-600	18,904

4.1.2. Fosfor Giderim Verileri

Bu çalışmada partikül çapları dağılımlarına göre ayrılan ÇKH'lar kullanılarak sentetik olarak hazırlanmış olan fosfat çözeltisinden fosfor giderimi araştırılmıştır. Fosfor giderme çalışmasında tam karışımli olarak (334 dev/dak) ortam sıcaklığında ($\cong 24^{\circ}\text{C}$) bir saat temas süresinde yürütülmüştür. Çalışmada kullanılan ÇKH miktarları EK-1'de yer almaktadır. Hazırlanmış olan fosfat çözeltisinden (EK-2) 50 mL alınarak yapılan analiz sonrasında çözeltide ölçülen fosfor miktarları Çizelge 4.2 ve 4.3'te verilmiştir.

Çizelge 4.2. Mg-Fe ÇKH ile giderim sonrası çözeltide kalan $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ miktarları

ÇKH Kütlesi (g)	125-180 μm	180-212 μm	212-355 μm	355-500 μm	500-600 μm
	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L
0,1	15,91	16,27	17,39	18,59	20,51
0,2	11,43	12,29	14,01	16,25	19,49
0,3	7,87	8,93	11,41	14,19	18,21
0,4	5,17	6,61	9,29	12,33	16,61
0,5	3,39	4,63	7,51	10,65	13,63

Çizelge 4.3. Mg-Al ÇKH ile giderim sonrası çözeltide kalan $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ miktarları

ÇKH Kütlesi (g)	125-180 μm	180-212 μm	212-355 μm	355-425 μm	425-600 μm
	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L
0,01	16,95	17,33	17,87	18,41	18,71
0,02	13,05	14,11	15,17	15,93	16,47
0,03	8,75	10,77	12,47	13,53	14,49
0,04	5,71	7,89	9,39	10,99	12,29
0,05	2,85	3,75	6,25	8,93	10,07

Fosfat gideriminin değerlendirilmesinde başlangıç ve bitiş çözeltilerinin fosfor miktarları ile elde edilen giderim verimlerinin belirlenmesi önem taşımaktadır. Çizelge 4.4 ve 4.5'de kullanılan ÇKH miktarı ve partikül çapı dağılımlarına göre elde edilen giderim verimleri verilmiştir.

Çizelge 4.4. Mg-Fe ÇKH'ları kullanılarak elde edilen fosfor giderim verimleri

ÇKH Kütlesi (g)	125-180	180-212	212-355	355-500	500-600
	µm	µm	µm	µm	µm
	% P Giderimi	% P Giderimi	% P Giderimi	% P Giderimi	% P Giderimi
0,1	25,84	24,16	18,94	12,61	4,38
0,2	46,74	42,72	34,70	23,61	9,16
0,3	63,34	58,40	46,83	33,30	15,10
0,4	75,93	69,22	56,72	42,05	22,61
0,5	84,24	78,45	65,02	49,95	36,50

Çizelge 4.5. Mg-Al ÇKH'ları kullanılarak elde edilen fosfor giderim verimleri

ÇKH Kütlesi (g)	125-180	180-212	212-355	355-425	425-600
	µm	µm	µm	µm	µm
	% P Giderimi	% P Giderimi	% P Giderimi	% P Giderimi	% P Giderimi
0,01	18,95	17,13	14,55	11,961	10,53
0,02	37,61	32,54	27,46	23,875	21,24
0,03	58,18	48,52	40,38	35,31	30,72
0,04	72,73	62,30	55,12	47,464	41,24
0,05	86,41	82,11	70,14	60,765	51,87

4.1.3. Fosfor Çözeltilerinin pH Değerleri

Partikül çapları dağılımlarına göre ayrılan ÇKH'lar ile metodolojisi materyal ve metot bölümünde yer alan fosfor giderim çalışması sonrasında çözeltilerde pH ölçümü yapılmıştır. Çözeltilerin fosfor giderim çalışması sonrası pH değerleri Çizelge 4.6 ve 4.7'de verilmiştir. Fosfor çözeltisinin başlangıç pH değeri 6,5 olarak ölçülmüştür.

Çizelge 4.6. Mg-Fe ÇKH'ları ile giderim sonrası pH değerleri

ÇKH miktarı, g	125-180	180-212	212-355	355-500	500-600
	µm	µm	µm	µm	µm
	pH	pH	pH	pH	pH
0,1	8,4	8,2	8,0	7,8	7,4
0,2	8,5	8,3	8,2	8,1	7,8
0,3	8,7	8,5	8,4	8,4	8,2
0,4	8,8	8,7	8,7	8,6	8,6
0,5	8,9	8,9	8,8	8,8	8,7

Çizelge 4.7. Mg-Al ÇKH'ları ile giderim sonrası pH değerleri

ÇKH miktarı, g	125-180	180-212	212-355	355-425	425-600
	μm	μm	μm	μm	μm
	pH	pH	pH	pH	pH
0,1	7,0	6,8	6,7	6,7	6,7
0,2	7,2	6,8	6,7	6,7	6,7
0,3	7,3	6,9	6,7	6,7	6,7
0,4	7,3	6,9	6,8	6,8	6,8
0,5	7,5	7,0	6,8	6,8	6,8

4.1.4. Çift Katmanlı Hidroksitlerin Fosfat Tutma Kapasitesinin Belirlenmesi

Bu çalışmada sentezlenen 125-180 μm partikül çapı aralığında yer alan Mg-Fe ve Mg-Al ÇKH'lar kullanılarak materyal ve metot bölümünde verilen metodoloji ile ÇKH'ların fosfat tutma kapasiteleri tespit edilmiştir. Giriş fosfor konsantrasyonu ile çıkış konsantrasyonu aynı olarak ölçülene kadar 24 saat temas süresi ile kesikli olarak fosfor çözeltisi eklenmiştir. ÇKH'lar tarafından tutulan fosfor miktarları her kesikli set için hesaplanarak malzemelerin fosfor tutma kapasiteleri Mg-Fe ve Mg-Al ÇKH'ı için sırası ile 3 mg/g ve 57,5 mg/g olarak tespit edilmiştir.

4.1.5. Adsorpsiyon İzoterm Verileri

Çift katmanlı hidroksitlerin fosfor giderim mekanizmalarının belirlenmesi için çalışmada elde edilen fosfor giderim verilerine Freundlich, Langmuir izoterminin dört lineer formu, Temkin ve Dubinin-Radushkevich adsorpsiyon izotermi modelleri uygulanmıştır. İzoterm değerleri hesaplanırken ÇKH miktarı (m), ÇKH tarafından tutulan fosfor miktarı (x), başlangıç çözeltisinin fosfor miktarı (C_0) ve kesikli testlerin sonucunda tutulmadan kalan fosfor miktarı (C_e) verileri kullanılmıştır. Adsorpsiyon izotermi eşitliklerinin lineerize ifadeleri ve hesaplanan parametreler EK-3'te verilmiştir.

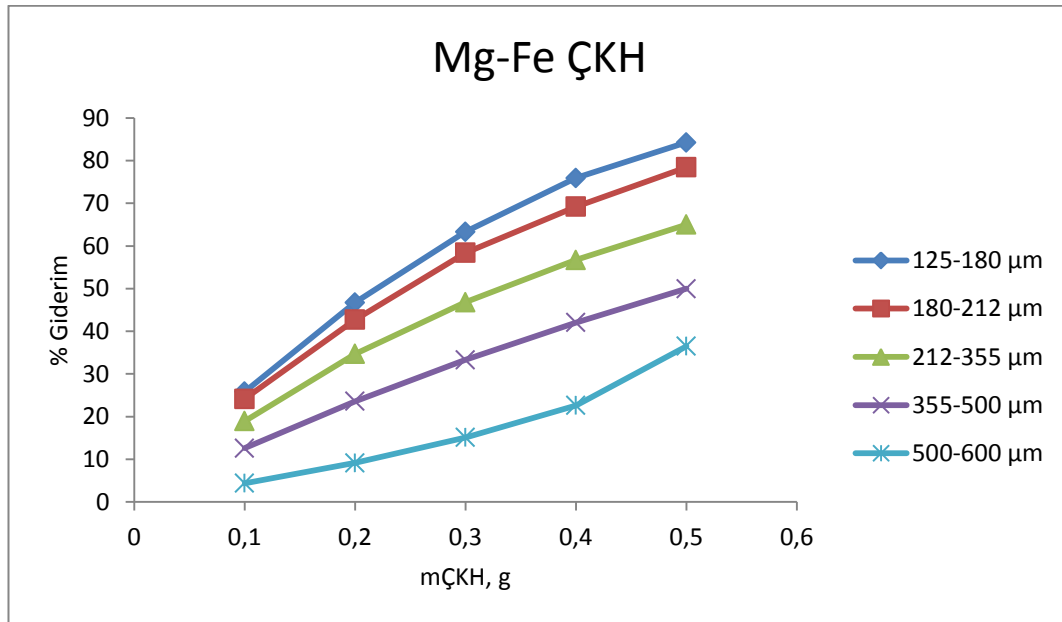
Bu çalışmada sentezlenen ÇKH'lar kullanılarak elde edilen fosfor giderim verilerinin Freundlich, Langmuir, Temkin ve Dubinin-Radushkevich izotermi ile grafiklerinin çizilmesi için izoterm eşitliklerinin lineerize formülasyonlarına göre hesaplanan indis değerleri EK-4 ve EK-7 arasında verilmiştir.

4.2. Tartışma

Bu çalışmada laboratuvar ortamında sentezlenen iki çeşit ÇKH'nın fosfor giderme kabiliyetleri belirlenmiştir. Ayrıca fosfor giderim mekanizmasının anlaşılması için her bir ÇKH'nın fosfor giderim verileri dört farklı izoterm modeline uygulanmıştır.

4.2.1. Mg-Fe Çift Katmanlı Hidroksitleri ile Fosfor Giderimi

Laboratuvar ortamında sentezlenen Mg-Fe ÇKH'ları partikül boyutlarına göre ayrılarak her partikül boyutu için farklı kütlelerde ÇKH tartılarak başlangıç konsantrasyonu 21,44 mg/L olan fosfat çözeltisi ile muamele edildikten sonra Mg-Fe ÇKH'larının partikül boyutlarına göre fosfor giderimleri Şekil 4.1'de verilmiştir.



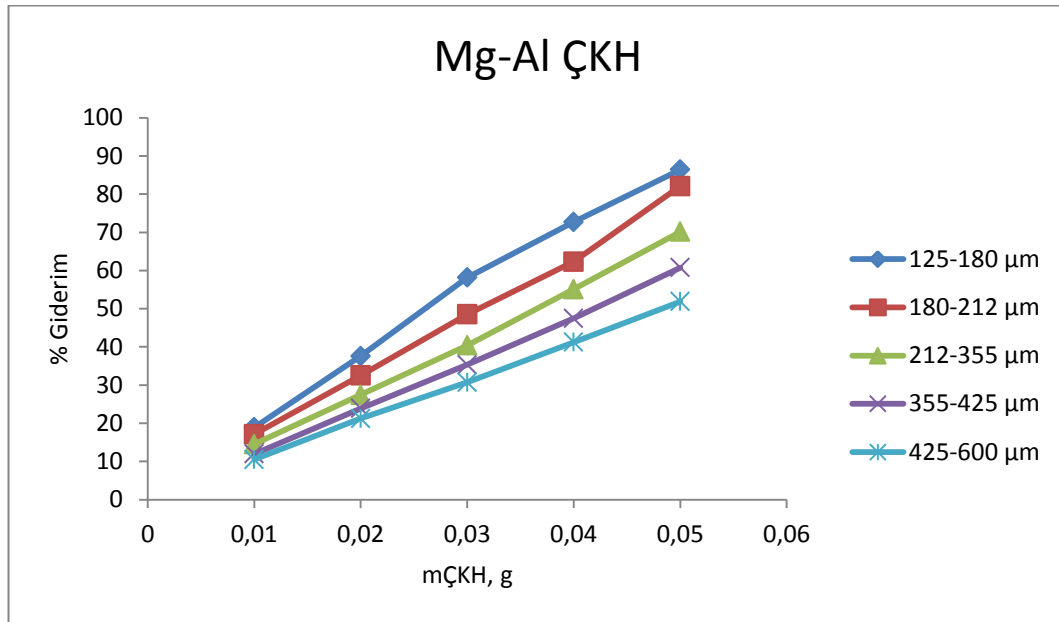
Şekil 4.1. Mg-Fe ÇKH'ları fosfor giderim verimleri

Bu çalışmada kullanılan en büyük partikül boyutu 500-600 µm ve en büyük kütle 0.5 g ÇKH ile fosfor giderimi maksimum %36 gerçekleşirken, en küçük partikül boyutu (125-180 µm) ve yine en yüksek (0,5 g) ÇKH kütlesinde maksimum %84 fosfor giderimi gerçekleşmiştir. Partikül çapının küçülmesine

bağlı olarak fosfor giderimi, kütle artışına bağlı giderimden daha yüksektir. Drenkova-Tuhtan ve ark. (2013), laboratuvar ortamında sentezledikleri Mg-Fe, Mg-Al, MgAl-Zr ve Mg-Fe-Zr olmak üzere dört çeşit ÇKH ile evsel atıksulardan fosfor giderimi çalışmışlardır. ÇKH'ların fosfor giderim verimliliklerini Mg-Fe-Zr>Mg-Fe>Mg-Al-Zr>Mg-Al olarak sıralamışlardır. Mg-Fe ÇKH'nın fosfor tutma kapasitesi değerini yaklaşık 20 mg P/g olarak vermişlerdir. Bu çalışmada ise Mg-Fe ÇKH'nın fosfor tutma kapasitesi 3 mg P/g olarak bulunmuştur. Drenkova-Tuhtan ve ark (2013), demirli ÇKH'ların yüksek fosfor tutma kapasitelerini demirli ÇKH'ların karbon seçiciliğinin ($CO_3^- - C$) düşük olması ve evsel atıksuların alkalinite varlığı ile açıklamışlardır. Bu çalışmada fosfor giderimi saf su ile hazırlanmış olan fosfor çözeltisi ile yapıldığından alkalinite içermemektedir. Buna rağmen iki çalışmada elde edilen fosfor tutma kapasiteleri arasındaki bu büyük farkın seçicilik ve alkalinitenin etkisi ile açıklanamayacağı düşünülmektedir.

4.2.2. Mg-Al Çift Katmanlı Hidroksitleri ile Fosfor Giderimi

Birlikte çöktürme yöntemi ile sentezlenen Mg-Al ÇKH'ları Mg-Fe ÇKH'ları gibi fosfor gideriminde kullanılmak üzere partikül boyutlarına göre ayrılmıştır. Her partikül boyutu için farklı kütlelerde ÇKH tartılarak başlangıç konsantrasyonu 20,9 mg/L olan fosfat çözeltisi ile muamele edildikten sonra Mg-Fe ÇKH'larının partikül boyutlarına göre fosfor giderimleri Şekil 4.2'de verilmiştir.



Şekil 4.2. Mg-Al ÇKH'ları fosfor giderim verimleri

Bu çalışmada kullanılan Mg-Al ÇKH'larının en büyük ve en küçük partikül boyutu olan 425-600 µm ve 125-180 µm ÇKH'ları ile en büyük kütle olan 0,05 g kullanılarak elde edilen fosfor giderimleri sırası ile %52 ve % 86 olarak gerçekleşmiştir. Mg-Al ÇKH'nın forfor tutma kapasitesi ise 57 mg P/g olarak belirlenmiştir. Bu çalışmada fosfor giderimi için sentezlenen iki ÇKH maksimum fosfor giderim oranları bakımından (%84 ve %86) benzerlik göstermektedir. Ancak fosfor tutma kapasiteleri bakımından Mg-Al ÇKH'nın 19 kat daha yüksek bir kapasiteye sahip olduğu belirlenmiştir. Drenkova-Tuhtan ve ark. (2013), evsel atıksulardan fosfor gideriminde Mg-Al ÇKH'ı için maksimum kapasitenin yaklaşık 13 mg P/g olduğunu ve Mg-Fe ÇKH'nın fosfor tutma kapasitesinin daha yüksek olduğunu bildirmişlerdir. Buna sebep olarak ise Mg-Al ÇKH'nın karbon seçiciliğinin yüksek olmasını ve evsel atıksulardaki alkaliniteyi göstermektedirler. Bu araştırmacıların belirttiği gibi Mg-Al ÇKH'larının karbon seçiciliğinden dolayı alkaliniteye bağlı kapasite azalması kabul edilebilir bir yaklaşımdır. Ancak iyon değiştiriciler, adsorbanlar ve bu tip malzemeler için kapasite belirlenmesi saf çözeltilerle yapılmalıdır. Bundan dolayı rekabet edebilecek tür veya türlerin bulunduğu çözeltiler için verilen kapasite değerlerinin anlamlı olduğu düşünülmemektedir. Das ve arkadaşları (2006), Mg-Al, Zn-Al, Ni-Al, Co-Al, Mg-Fe, Zn-Fe ve Co-Fe gibi 773°K sıcaklıkta kalsine edilmiş

ÇKH'ların fosfor tutma kapasitelerini araştırmışlardır ve Mg-Al ÇKH'nın en yüksek fosfor tutma kapasitesi sahip olduğunu ve maksimum fosfor tutma kapasitesinin 44 mg P/g olarak bildirmişlerdir. Başka bir araştırma grubu, Kuzawa ve ark. (2006), ticari olarak mevcut (Tomita Pharmaceutical Co.Ltd. Japan) sentetik granüler Mg-Al ÇKH ile yaptıkları fosfor giderim çalışmasında, sentetik granüler ÇKH'nın maksimum fosfor tutma kapasitesini 47,3 mg P/g olarak vermişlerdir. Her iki araştırma grubunda Mg-Al ÇKH ları için tespit ettikleri fosfor tutma kapasiteleri bu çalışmada sentezlenen 125-180 µm partikül çapı dağılımında yer alan Mg-Al ÇKH'larının fosfor tutma kapasitesinden düşük olmasına rağmen benzer değerler sayılabileceği düşünülmektedir. Çünkü her iki çalışmada da kullanılan ÇKH'ların boyutları belirtilmemiştir. Oysa bu çalışmada, partikül boyutunun fosfor tutma kapasitesini en az kullanılan ÇKH kütlesi kadar etkilediği belirlenmiştir. Bundan dolayı belki de aynı partikül boyutlarında çalışılsa idi çok benzer kapasiteler elde edilebilirdi. Ne yazık ki bu konuda yapılmış çalışmaların çok az olmasından dolayı ileri seviyede karşılaştırmalar yapılamamıştır.

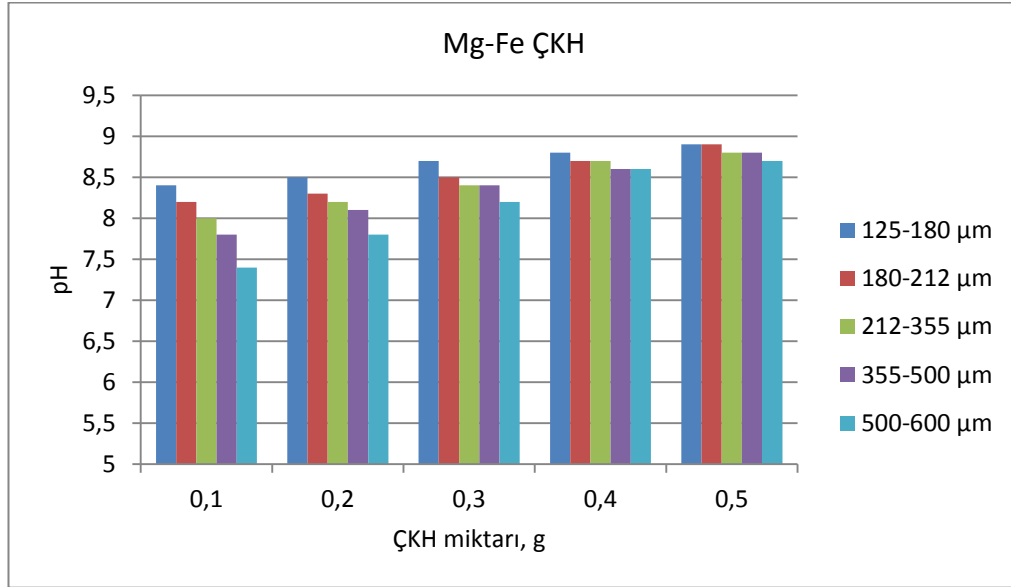
4.2.3. Fosfor Giderimi için Kullanılan Diğer Materyallerin Çift Katmanlı Hidroksitler ile Karşılaştırılması

Prochaska ve ark. (2006) yapay sulak alanda kum ve dolomit karışımını, Shilton ve ark. (2006) demir çelik endüstrisinde yan ürün olarak oluşan fırın cürufunu, Guftasson ve ark. (2008) Filtra-P®, Polonite®, doğal kireçtaşı ve demir üretiminde kullanılan su soğutmalı fırın cürufunu, Xiong ve Mahmood, (2010) turbayı, Kõiv ve ark. (2010) bitümlü şist külünü, Nur ve ark. (2014) demir oksitle doyurulmuş kuvvetli bazik reçineyi ve Zhong-liang ve ark. (2011) demir oksit yüklenmiş aktif karbon kompozit adsorbanı ile fosfor giderimini araştırmışlardır. Prochaska ve ark. (2006), kum ve dolomit karışımı ile %45 fosfor giderimi gerçekleştirdiğini, kum ve dolomit için fosfor tutma kapasitelerini sırası ile 0,121 ve 0,168 mg P/g vermişlerdir. Guftasson ve ark. (2008) sentetik fosfor çözeltisinden fosfor giderimi için kullandıkları dört farklı malzeme için % giderim oranları ve fosfor tutma kapasitelerini Filtra-P® için %95-19,4 mg P/g, Polonite®

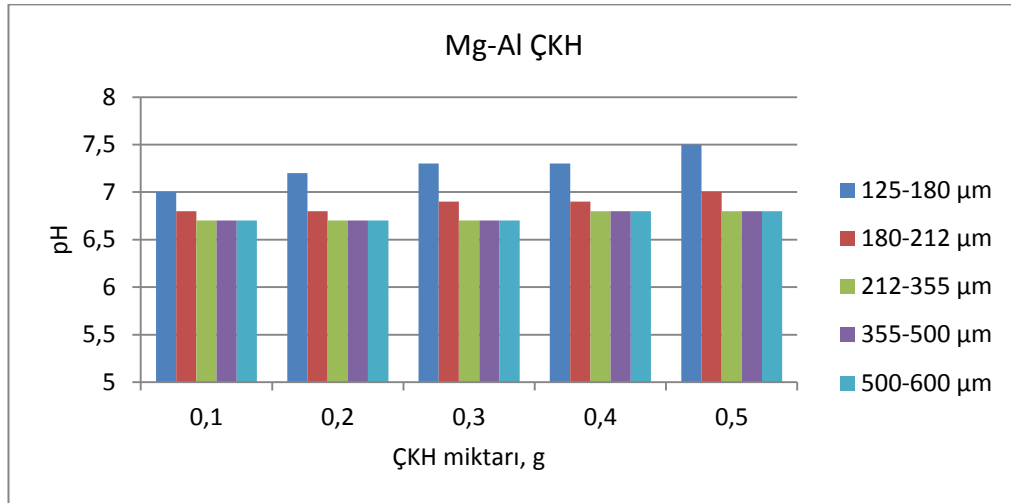
%95-39 mg P/g, doğal kireçtaşı için %51-0,467 ve demir üretiminde fırın cürufu için %85-3,1mg P/g olarak vermişlerdir. Ayrıca Guftasson ve ark. filtre yatağında belirli mesafeler boyunca her malzeme için ikişer fosfor tutma kapasitesi daha vermişlerdir. Bu verilerin fosfor tutma kapasitesi olarak değerlendirilmesi yerine kolon uygulamalarında malzemenin fosfor bağlama kabiliyetinin yatak boyunca konsantrasyon azalmasına bağlı değişiminin belirlenmesi için kullanılmasının daha uygun olacağı düşünülmektedir. Esasen fosfor tutma kapasitelerinin çok büyük bir aralıkta değişmesinin, bu parametre için belli bir standart prosedür eksikliği ve/veya partikül boyutu, kütle ve konsantrasyon değişimleri ile fosfor tutma kapasitesi arasında ilişkiyi açıklayabilecek matematiksel modellerin eksikliğinden kaynaklandığı düşünülmektedir.

4.2.4. Çift Katmanlı Hidroksitler ile Fosfat Gideriminde pH Faktörü

Çift katmanlı hidroksitlerin yapısında hidroksil ve/veya karbonat bulunmaktadır. İyon değişimi esnasında fosforun bağlanması ile su ortamına hidroksil ve/veya karbonat bırakacaktır. Hidroksil ve karbonatın alkali türler olması sebebiyle fosfat giderimi esnasında pH'ın yükselmesi beklenmektedir. Mg-Fe ve Mg-Al ÇKH'ları ile fosfor giderimi çalışmasında elde edilen pH değerlerinin değişimi sırası ile Şekil 4.3 ve Şekil 4.4'te verilmiştir.



Şekil 4.3. Mg-Fe ÇKH'ları için kullanılan ÇKH miktarına göre giderim sonrası pH değerleri



Şekil 4.4. Mg-Al ÇKH'ları için kullanılan ÇKH miktarına göre giderim sonrası pH değerleri

Partikül çapı dağılımlarına göre ayrılan ÇKH'larda ÇKH miktarının artması ile pH değerinde arttığı Şekil 4.3 ve 4.4'de görülmektedir.

Su ortamında fosfor türlerinin dağılımı pH'ın fonksiyonu olarak üç iyonlaşmalı zayıf bir asit olan fosforik asidin iyonlaşmasından belirlenebilir (Petrucchi, 2010). EK-13'da fosforik asidin iyonlaşma denklemi yazılarak K_a sabitleri ile fosfat formlarının (PO_4^{-3} , HPO_4^{-2} ve $H_2PO_4^{-}$) tampon oluşturduğu pH

değerleri hesaplanmıştır. Fosfat gideriminde kullanılan fosfat çözeltisinin pH değerinin 6,5 olduğu ve Mg-Fe ÇKH'ları için fosfor giderimi sonrasında çözeltilerinin pH değerlerinin 7,4 ile 8,9 arasında, Mg-Al ÇKH'ları için ise 6,7 ile 7,5 arasında değiştiği tespit edilmiştir. Bu çalışmada kullanılan iki çeşit ÇKH'ın bünyelerinde fosfat formlarından HPO_4^{-2} ve H_2PO_4^- formlarının katıldığı düşünülmektedir.

Das ve ark (2006), sentez başlangıcında Mg-Al molar oranı 2:1 olarak sentezledikleri ÇKH'ları kullanarak pH aralığı 3 ile 11 arasında fosfor giderimi çalışarak en yüksek fosfor gideriminin pH 5 değerinde %91,7 olarak bildirmişlerdir. Drenkova-Tuhtan ve ark. (2013), sentezledikleri Mg-Fe-Zr ÇKH'ları ile pH 2,8 değerinde %97,5 giderim elde ettiklerini, $\text{pH} < 3$ 'ün altına inilmesi durumunda ÇKH'ların yapısının bozulacağını ve pH değerinin azalması ile fosfor gideriminin arttığını bildirmişlerdir. pH değerinin yükselmesi ile OH^- miktarının artacağı ve fosfat anyonları ile ÇKH'ın bünyesine katılmak için rekabete gireceğinden nötr pH değerinde fosfat giderimi önerilmektedir.

4.2.5. Adsorpsiyon İzotermi

Adsorpsiyon denge izotermi sabit sıcaklıkta birim adsorban kütlesi ve adsorplanan madde miktarı arasındaki ilişkiyi açıklayan ampirik eşitliklerdir. Kesikli adsorpsiyon deneylerinden elde edilen data lar yaygın olarak Freundlich, Langmuir, Temkin, Dubinin–Radushkevich, Redlich–Peterson, Koble–Corrigan, and Fritz–Schlunder gibi izoterm modellerine uygulanır. Bu çalışmada elde edilen veriler, eşitlikleri ve parametreleri EK-3'te tablo halinde tanımlanan Freundlich, Langmuir, Temkin ve Dubinin–Radushkevich izoterm modellerine uygulanmıştır. Adsorpsiyon izotermi analizleri için hesaplanan izoterm sabitleri EK-8'de yer almaktadır.

4.2.5.1. Freundlich İzotermi

Freundlich izotermi, farklı sorpsiyon enerji seviyelerine sahip heterojen adsorpsiyonu tanımlayan ampirik bir izoterm modelidir. Freundlich izotermi

tek tabaka sorpsiyonu oluşması gibi bir sınırlama yoktur ve adsorpsiyon geri dönüşümlüdür (Freundlich, 1906). Freundlich izotermine göre çözeltide artan konsantrasyonla birlikte adsorbant yüzeyine bağlanma güçleri artar (Namasivayam ve ark, 1997). $1/n$ değeri birden küçükse adsorpsiyon kimyasal birden büyükse fiziksel olarak tanımlanır. $1/n$ değeri sıfıra yaklaştıkça adsorban yüzeyinin heterojen olduğunu gösterir. Bununda ötesinde n değeri 1 ile 10 arasında değişiyorsa adsorpsiyon prosesinin kabul edilebilir olduğu belirtilmektedir. Adsorbanın birim kütlesinde adsorblanan madde miktarını ifadesi olan Freundlich eşitliği (Eşitlik 4.1) ve lineerize ifadesi (Eşitlik 4.2) aşağıdaki yer almaktadır.

$$q_e = \frac{x}{m} = K_f (C_e)^{1/n} \quad \text{Eşitlik 4.1}$$

$$\ln \frac{x}{m} = \frac{1}{n} \ln C_e + \ln K_f \quad \text{Eşitlik 4.2}$$

Burada;

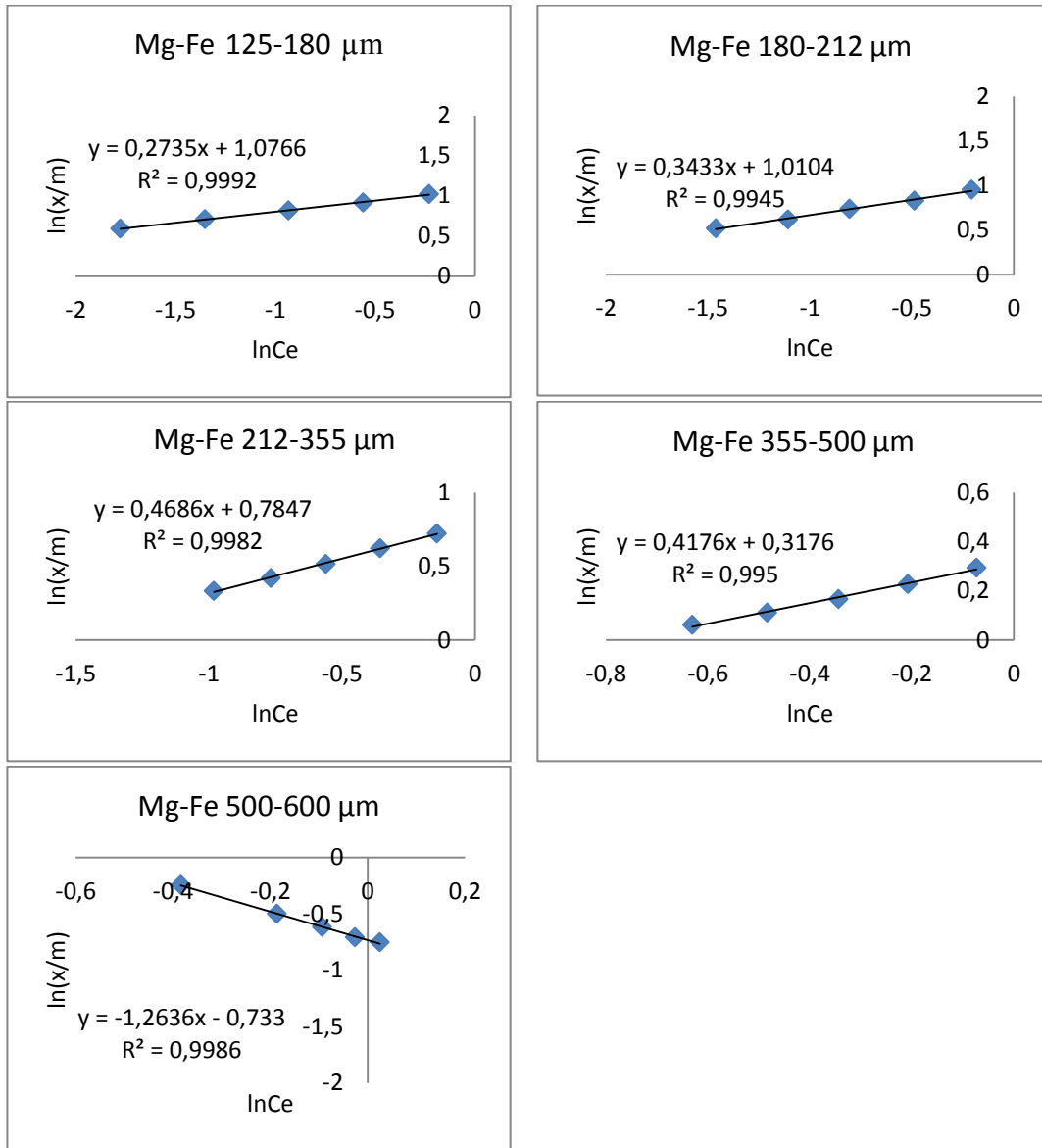
q_e = dengede birim adsorban kütlesi başına adsorblanan maddenin kütlesi (x/m)

K_f = Freundlich kapasite faktörü (Freundlich sabiti)

C_e = adsorbsiyondan sonra sıvı fazda kalan madde konsantrasyonu

$1/n$ = yoğunluk faktörü

$\ln(x/m)$ 'e karşı $\ln C_e$ değerleri grafiğe geçirildiğinde elde edilen doğrunun eğimi $1/n$ ve kesim noktası $\ln K_f$ değerine eşittir. Belirlenen her bir partikül boyutu dağılımı için Mg-Fe ve Mg-Al ÇKH'ları ile yapılan fosfor giderimi deneylerinde elde edilen sonuçlardan hesaplanan izoterm parametrelerine göre çizilen grafikler sırası ile Şekil 4.5 ve 4.6'da verilmiştir.



Şekil 4.5. Mg-Fe ÇKH'ları Freundlich İzoterm Grafikleri

Mg-Fe ÇKH'ları ile fosfor giderim mekanizmasının adsorpsiyon ve adsorpsiyonun Freundlich izotermine uygun olduğu belirlenmiştir. Tüm Mg-Fe ÇKH'ları partikül çapı boyutları dağılımları için elde edilen izoterm sabitleri ($1/n$ ve K_f) farklı olarak bulunmuştur. Partikül boyutları artışına bağlı sabitlerden $1/n$ 'in artışı 125-180 μm , 180-212 μm ve 212-355 μm partikül çapı dağılımlarında artış gösterirken 355-500 μm ve 500-600 μm partikül çapı dağılımlarında bu artış diğerlerine uymamaktadır. Çizelge 4.8'de Mg-Fe ÇKH'larının partikül çapı dağılımları için hesaplanan Freundlich izoterm sabitleri $1/n$, ve K_F sabiti ile n değerleri verilmiştir.

Çizelge 4.8. Mg-Fe ÇKH'ları için 1/n izoterm değerleri

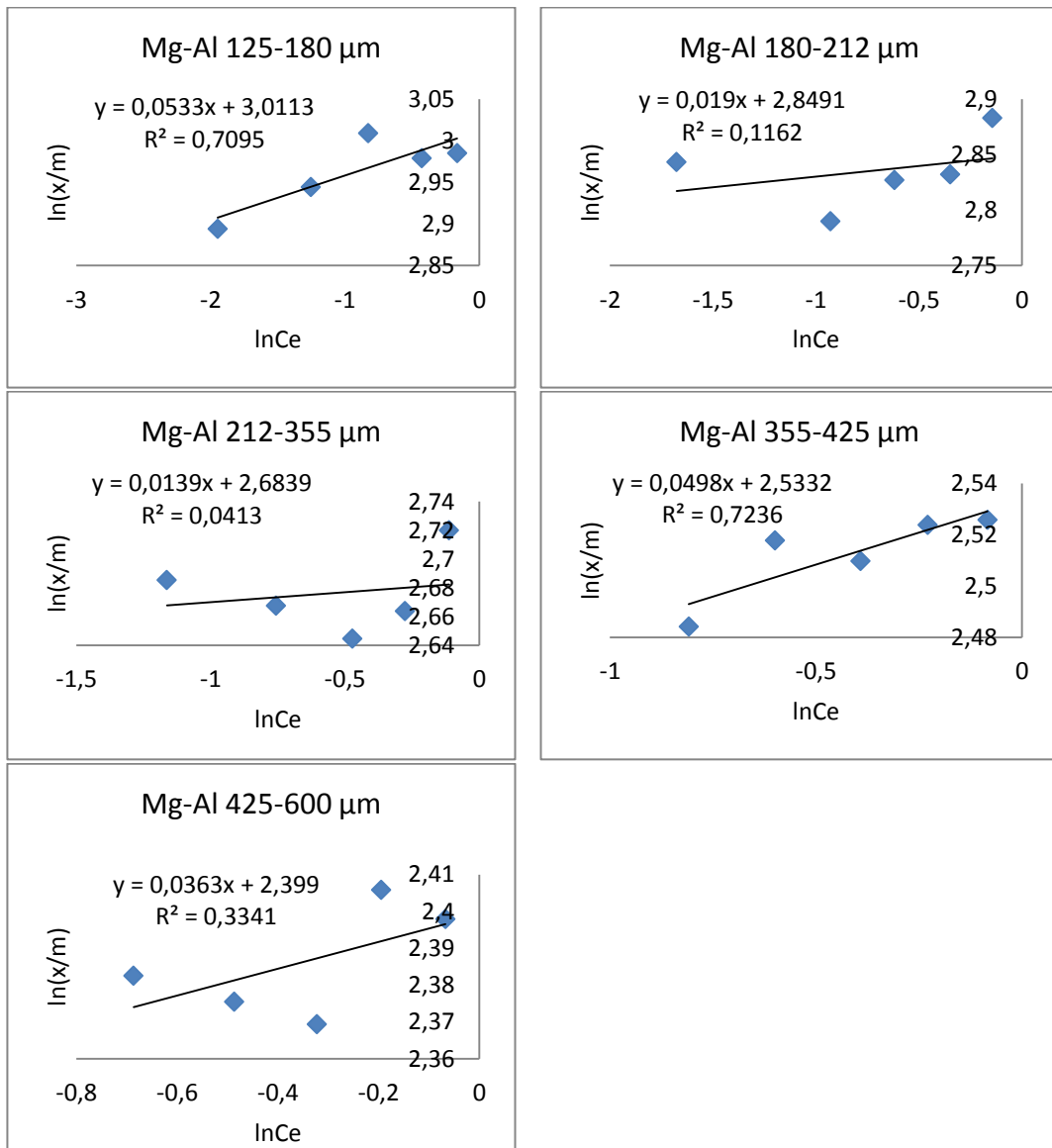
Partikül Çapı, μm	1/n	n	$K_F, (\text{mg/g})(1/\text{mg})^{1/n}$
125-180	0,273	3,663	2,934
180-212	0,343	2,915	2,746
212-355	0,468	2,136	2,191
355-500	0,417	2,398	1,373
500-600	1,128	-0,791	0,480

Tespit edilen 1/n sabitleri değerlendirildiği zaman fosfat giderimi için adsorpsiyon işleminin 125-180 μm , 180-212 μm , 212-355 μm ve 355-500 μm partikül çapı dağılımlarında kimyasal olduğu, ve 500-600 μm partikül çapı dağılımında ise fiziksel olduğu, tüm ÇKH'ların yüzeyinin ise heterojen olduğu Freundlich izotermi ile açıklanabilir. Ayrıca tespit edilen 125-180 μm , 180-212 μm , 212-355 μm ve 355-500 μm partikül çapı dağılımlarında n sabitlerinin 1-10 arasında olduğu, 500-600 μm partikül çapı dağılımında ise 1 değerinden düşük olduğu belirlenerek dört partikül çapı dağılımı için (125-180 μm , 180-212 μm , 212-355 μm ve 355-500 μm) adsorpsiyon prosesinin kabul edilebilir olduğu görülmektedir. Ayrıca 500-600 μm partikül çapı dağılımında görüldüğü gibi partikül çapının artışı ile adsorpsiyonunun Freundlich izoterminden saptığı anlaşılmaktadır. Mg-Fe ÇKH'ları için partikül çapının artışına bağlı 1/n değerinin arttığı ve kimyasal olan adsorpsiyonun işleminin partikül çapının artışı ile 500-600 μm partikül çapı dağılımında fiziksel olduğu (Freundlich izotermine göre) gözlenmiştir.

Goswamee ve ark. (1998), Mg/Al molar oranı 5:1 ve 2,2:1 olan Mg-Al, Ni-Al ve Zn-Cr tipi dört çeşit çift tabakalı hidroksit sentezleyerek kromat gideriminde adsorpsiyon prosesinin Freundlich izotermine uyduğunu ve K_F ve 1/n değerlerini sırası ile 1,15 $(\text{meq/g})(\text{dm}^3/\text{g})^{1/n}$ ve 0,1845 olarak, Lazaridis ve ark. (2004), laboratuvarında sentezlemiş oldukları Mg-Al hidrotalsitleri ile krom giderimi çalışmasının Freundlich izotermine uyduğunu ve K_F ve 1/n değerlerini sırası ile 5,10 $(\text{mg/g})(\text{L}/\text{mg})^{1/n}$ ve 0,268 olduğu, Das ve ark. (2006), $\text{Mg}^{+2}/\text{Al}^{+3}$ molar oranı 2:1 (CLDH1) olarak sentezledikleri Mg-Al ÇKH'ları ile adsorpsiyon çalışmasının Freundlich ve Langmuir izotermine uyduğunu 303, 313, 323 ve 333 K sıcaklığında sırası ile K_F ve 1/n değerlerini 20,76 ve 0,287, 13,06 ve 0,327, 10,87 ve 0,320 ve 7,28 ve 0,320 olarak bildirmişlerdir. Araştırmacıların

hesapladıkları $1/n$ değerleri ile bu çalışmada Mg-Fe ÇKH'ları kullanarak elde edilen $1/n$ değerlerinin 0'a yakın olduğu ve malzemenin yüzeyinin heterojen olduğunu ve adsorpsiyon mekanizmasının Freundlich izotermi ile açıklanabileceği görülmektedir.

Mg-Al ÇKH'larının beş partikül çapı dağılımı için yapılan Freundlich izotermi analizinde bu çalışmada kullanılan birim ÇKH başına adsorplanan fosfor miktarı ve fosfor giderimi sonrası sıvı fazda kalan fosfor miktarı kullanılarak elde edilen grafikler Şekil 4.8'de verilmiştir.



Şekil 4.6. Mg-Al ÇKH'ları Freundlich İzoterm Grafikleri

Şekil 4.8’de görüldüğü gibi Mg-Al ÇKH’larının tüm partikül çapı dağılımları için yapılan izoterm analizinde adsorpsiyonunun Freundlich izotermine uymadığı görülmektedir. Mg-Al ÇKH’ları kullanılarak fosfor giderimi analizinde ölçülen giderim değerleri diğer izoterm modellerine uygulanmış ve adsorpsiyonun Langmuir izotermine uyduğu belirlenmiştir.

4.2.5.2. Langmuir İzotermi

Langmuir izotermi aynı enerji seviyelerine sahip belirli bir sayıda homojen girilebilir bölge olduğu kabulüne dayanan tek tabakalı bir izoterm modelidir. Langmuir’e göre moleküllerin yüzeye adsorblanma hızı moleküllerin yüzeyden ayrılma hızına eşit olduğunda dengeye ulaşılır. Langmuir tarafından geliştirilen izoterm eşitliği aşağıdaki eşitlikte verilmiştir.

$$q_e = \frac{q_m K_L C_e}{(1 + K_L C_e)} \quad \text{Eşitlik 4.3}$$

Burada;

q_e = Dengede birim adsorban kütlesi başına adsorblanan maddenin kütlesi (x/m)

q_m = Tek tabaka sorpsiyon kapasitesi

K_L = Langmuir izoterm sabiti

C_e = adsorbsiyondan sonra sıvı fazda kalan madde konsantrasyonu

Langmuir izoterminin dört çeşit lineer tipi için lineerize ifadeler aşağıda verilmiştir.

$$\text{Tip I için } C_e/q_e = (1/K_L q_m) + (C_e/q_m) \quad \text{Eşitlik 4.4}$$

$$\text{Tip II için } 1/q_e = (1/K_L q_m C_e) + (1/q_m) \quad \text{Eşitlik 4.5}$$

$$\text{Tip III için } q_e = q_m - (1/K_L) q_e / C_e \quad \text{Eşitlik 4.6}$$

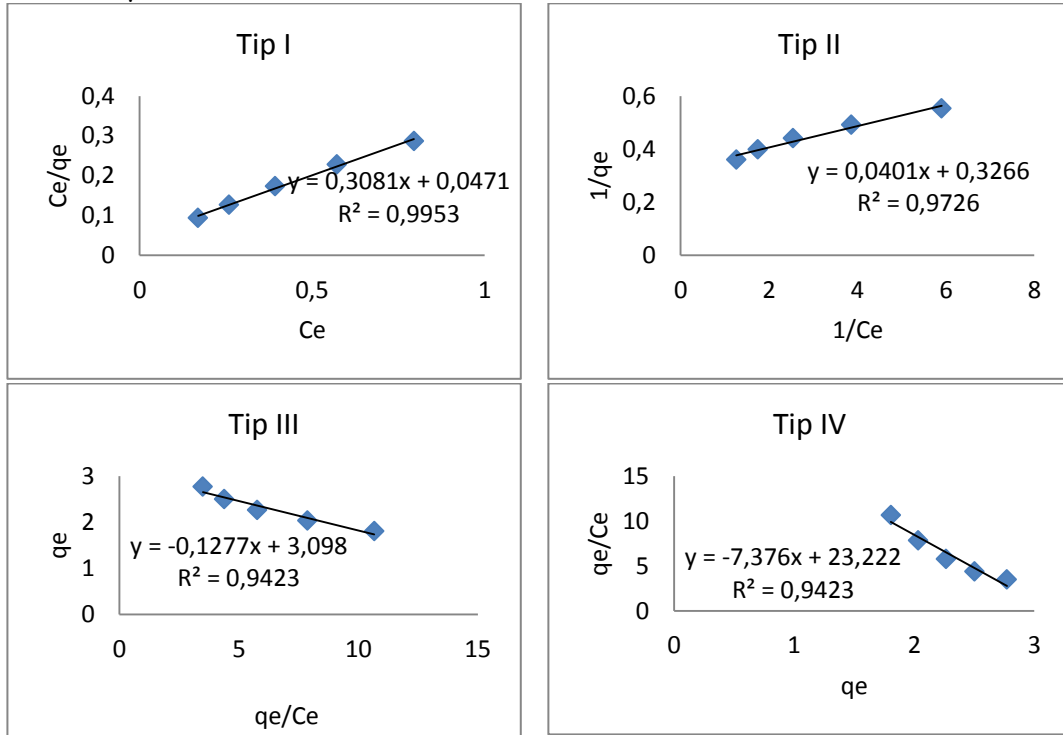
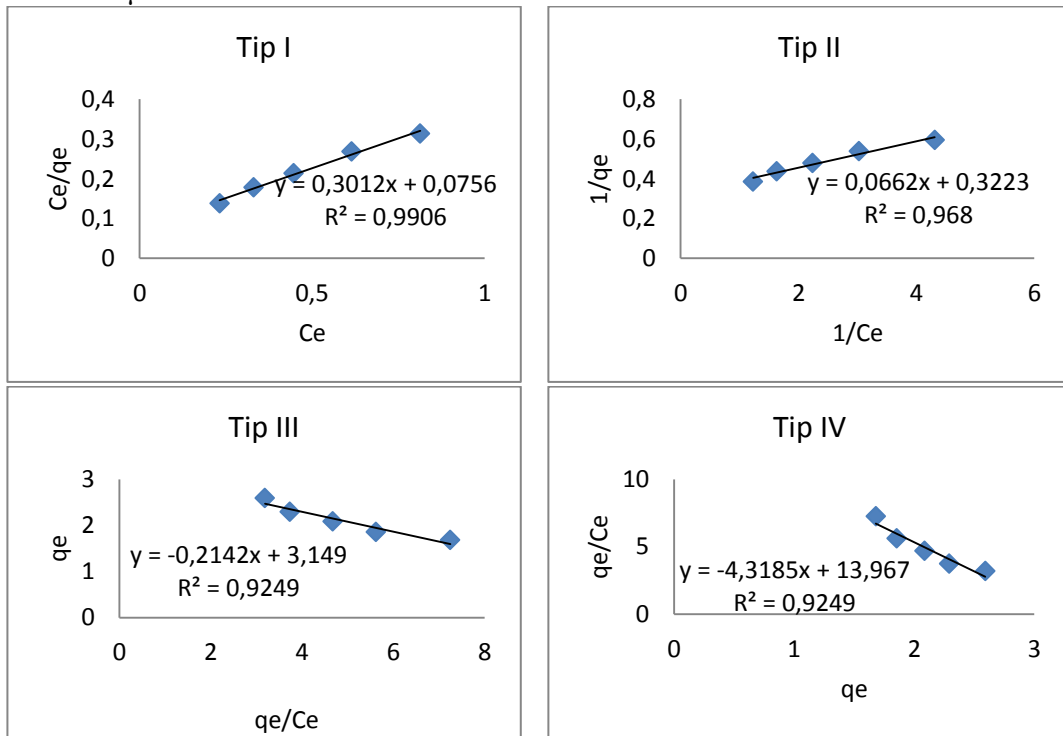
$$\text{Tip IV için } q_e / C_e = K_L q_m - K_L q_e \quad \text{Eşitlik 4.7}$$

Ayrıca Langmuir izotermi için temel bir öneme sahip olan ayırma faktörü R_L değerlerinin formülü aşağıdaki eşitlikte verilmiştir.

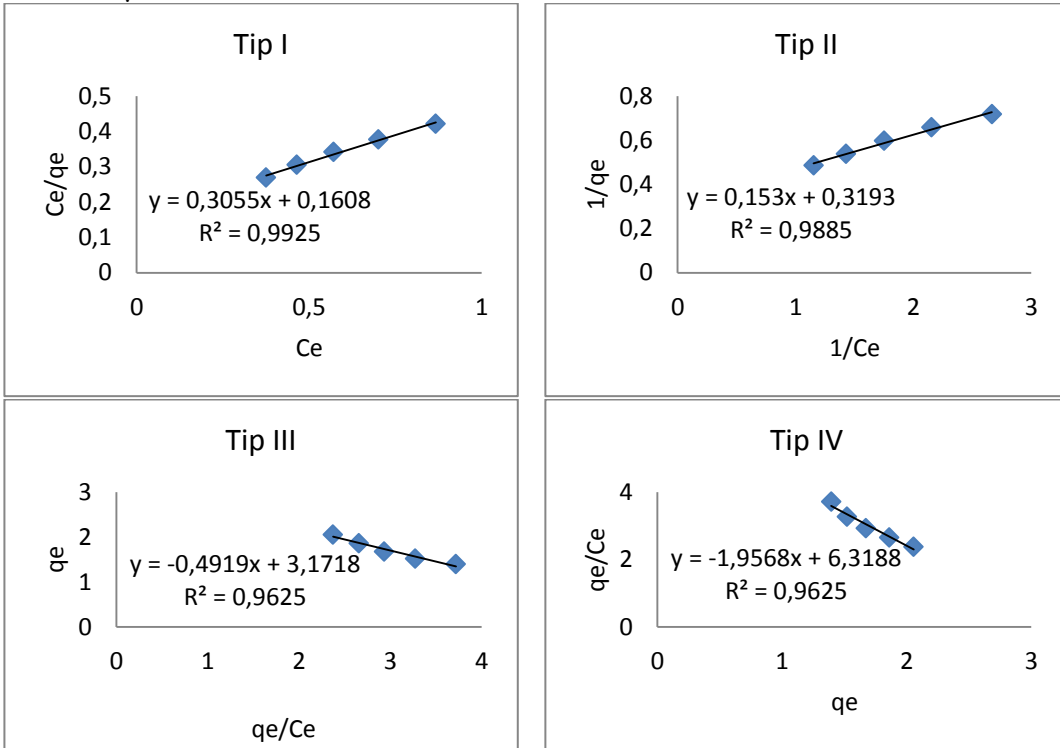
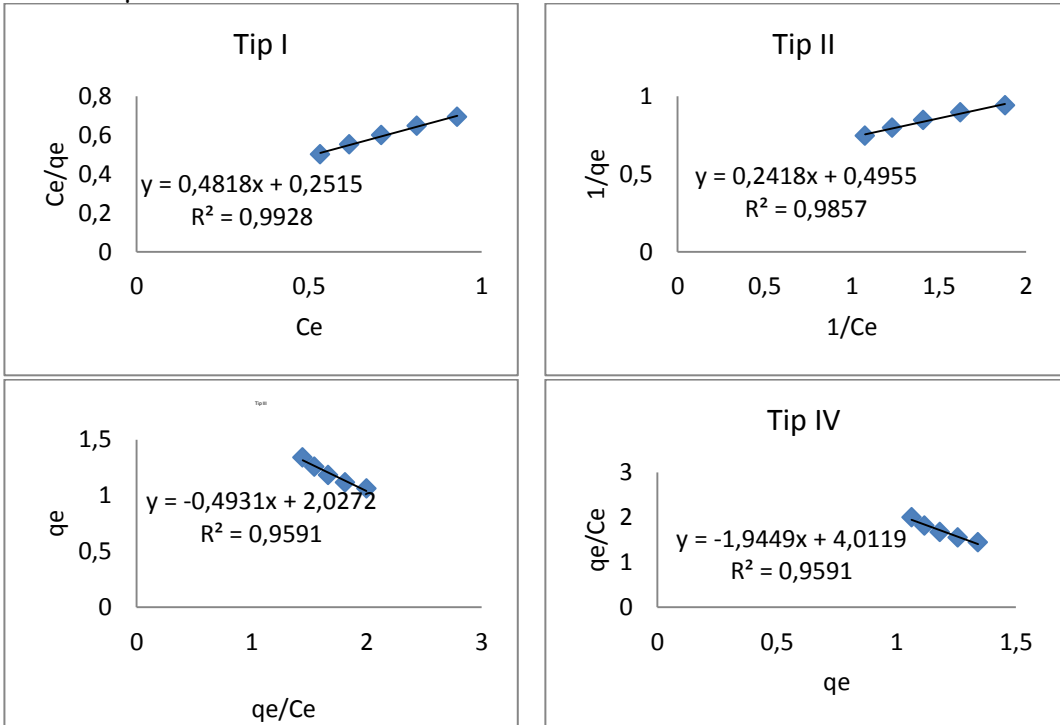
$$R_L = \frac{1}{1 + K_L C_o}$$

R_L değeri adsorpsiyonun geri dönüşümlü ve geri dönüşümsüz olduğunu belirlemede kullanılan önemli bir göstergedir. Eğer R_L sıfıra eşitse adsorpsiyon geri dönüşümsüzdür, R_L değeri 0 ile 1 arasında olması tercih edilir ve 1'den büyük olması ise tercih edilmez.

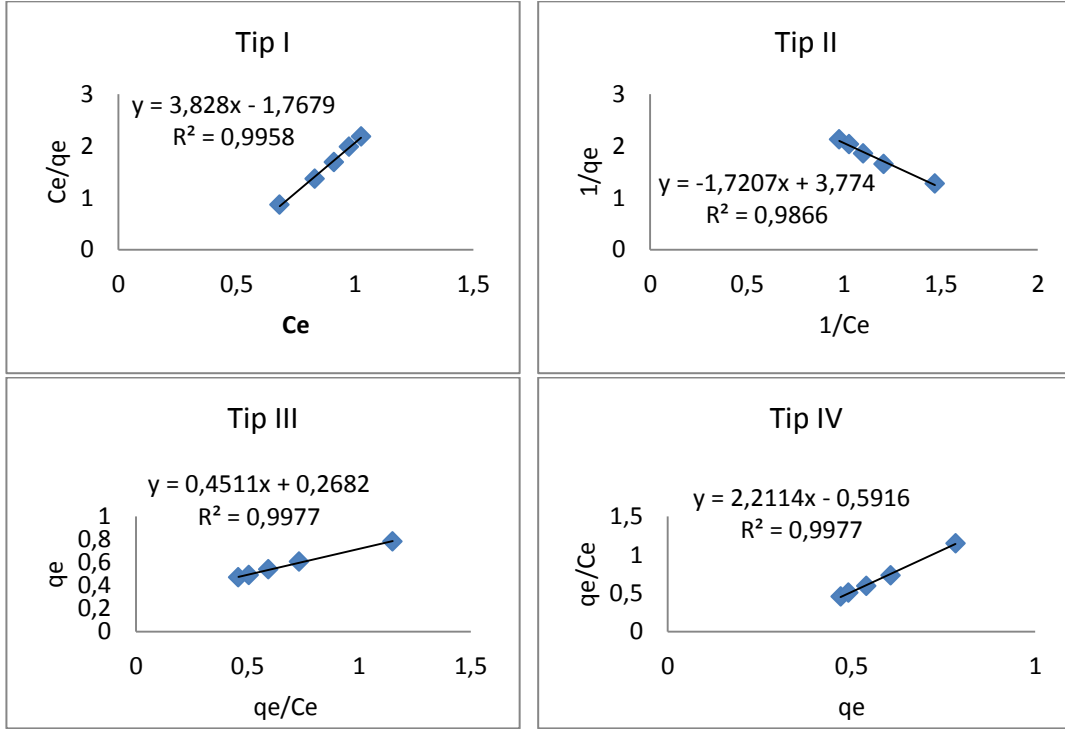
Langmuir izoterminin dört farklı şekilde lineerize edilen eşitlikleri kullanılarak Tip I, Tip II, Tip III ve Tip IV için sırası ile C_e/q_e 'e karşı C_e , $1/q_e$ 'e karşı $1/C_e$, $1/q_e$ 'e karşı $1/C_e$ ve q_e/C_e 'e karşı q_e değerleri grafiğe geçirildikten sonra Mg-Fe ve Mg-Al ÇKH'larının 5 farklı partikül çapı dağılımı için fosfor giderim deneylerinde elde edilen ölçüm sonuçları ile hesaplanan izoterm parametrelerine göre çizilen grafikler Mg-Fe ve Mg-Al ÇKH'ları için sırası ile Şekil 4.7 – 4.9 ve Şekil 4.10 - 4.12 arasında verilmiştir.

125-180 μm 180-212 μm 

Şekil 4.7. Mg-Fe ÇKH'ları Langmuir İzoterm Grafikleri -1

212-355 μm 355-500 μm 

Şekil 4.8. Mg-Fe ÇKH'ları Langmuir İzoterm Grafikleri -2

500-600 μm 

Şekil 4.9. Mg-Fe ÇKH'ları Langmuir İzoterm Grafikleri -3

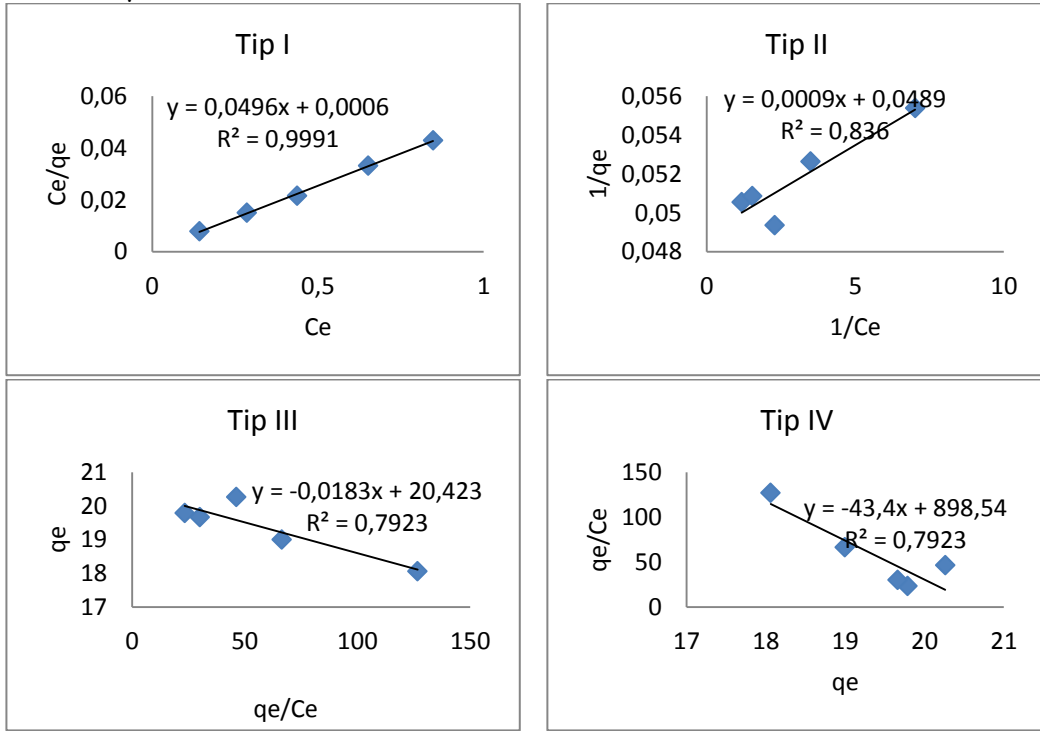
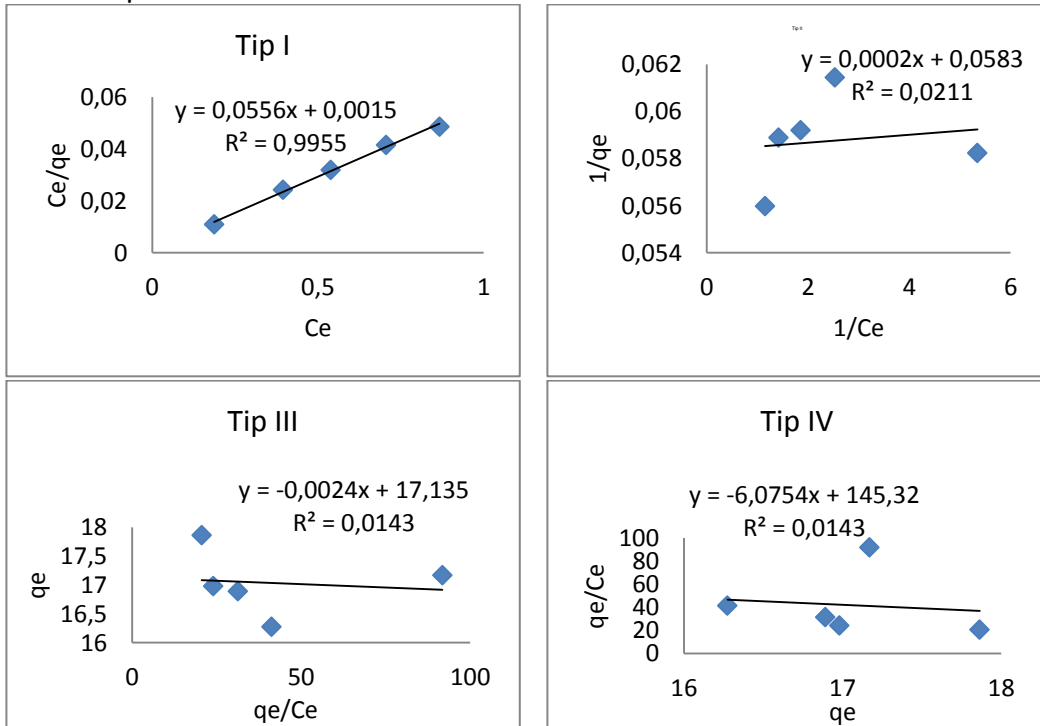
Mg-Fe ÇKH'larının beş partikül çapı dağılımı içinde Şekil 4.7 ve 4.9 arasında çizilen grafikler incelendiği zaman adsorpsiyonunun Langmuir izotermine uyduğu görülmektedir. Mg-Fe ÇKH'larının dört partikül çapı dağılımı (125-180 μm , 180-212 μm , 212-355 μm ve 355-500 μm) için ayrıca Freundlich izotermine uygun olduğu Freundlich izotermi başlığı altında belirlenmiştir. Das ve ark. (2006), ısıtılmış işlem görmüş Mg/Al molar oranı 2:1 olan birlikte çöktürme metodu ile laboratuvarında sentezledikleri Mg-Al ÇKH'ları ile yaptıkları fosfor gideriminin adsorpsiyon olduğunu ve adsorpsiyonun Freundlich ve Langmuir izotermine uyduğunu bildirmişlerdir. Mg-Fe ÇKH'ları için partikül çapları dağılımlarına göre hesaplanan Langmuir izotermi ayırma faktörü R_L , q_m ve K_L değerleri Çizelge 4.9'da yer almaktadır.

Çizelge 4.9. Mg-Fe ÇKH'ları için Langmuir izotermi değerleri

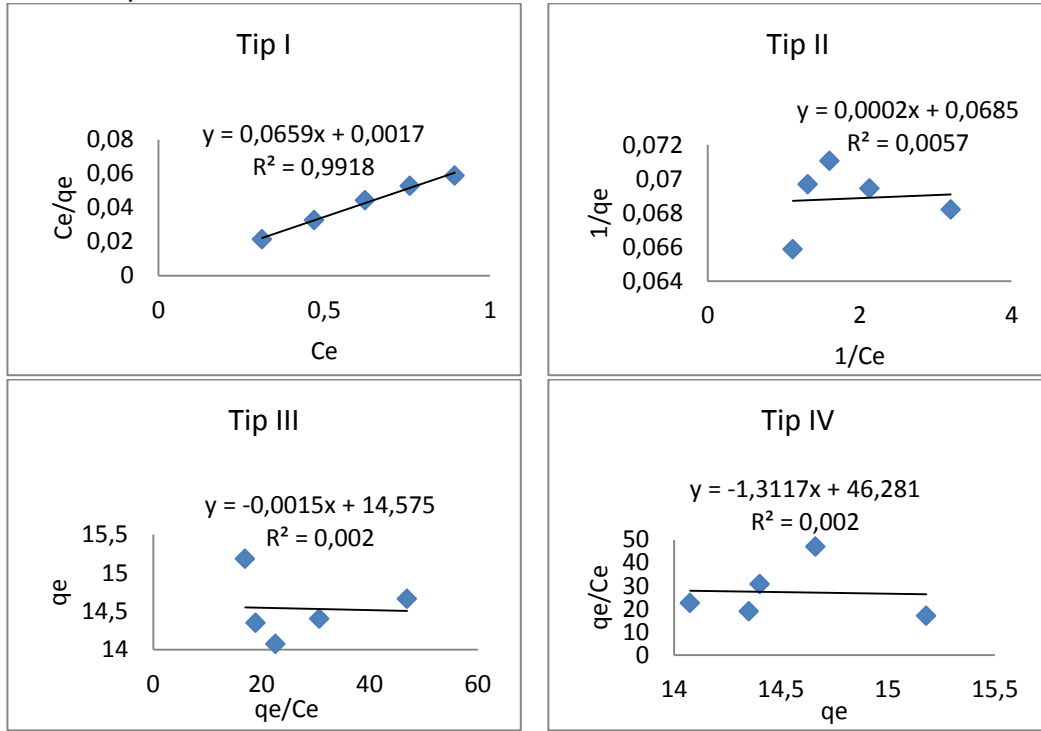
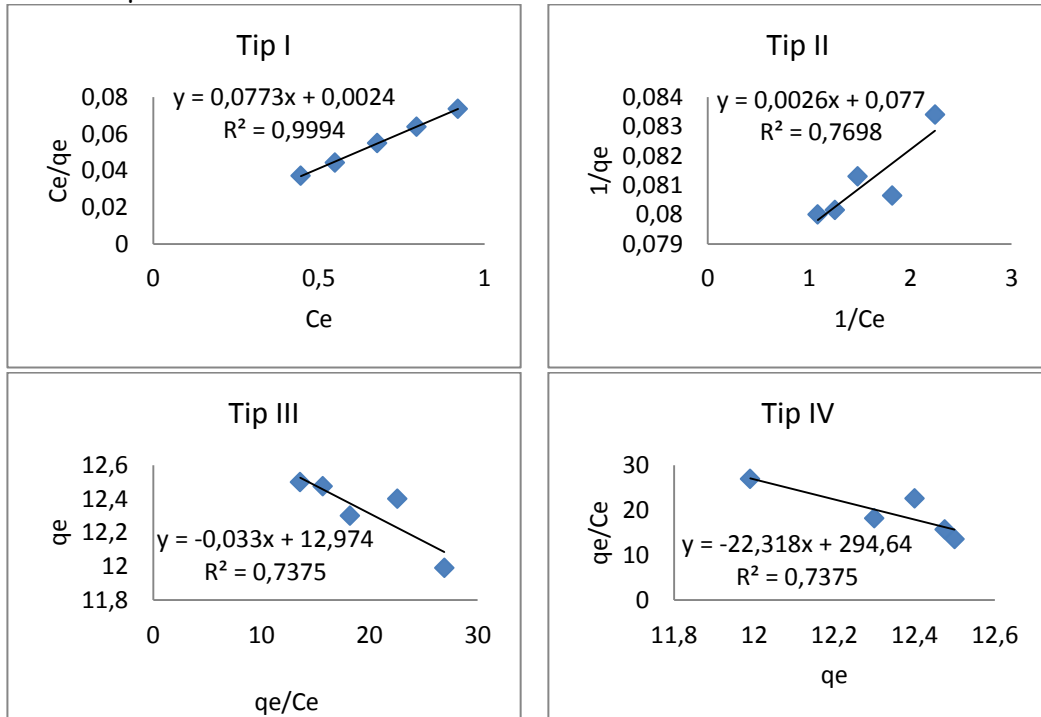
Partikül Çapı, μm	R_L	q_m , mg/g	K_L , 1/mg
125-180	0,125	3,245	6,541
180-212	0,190	3,320	3,984
212-355	0,329	3,273	1,899
355-500	0,329	2,075	1,916
500-600	-0,759	0,261	-2,165

Çizelge 4.9'da yer alan R_L değerlerinde görüldüğü gibi 125-180 μm , 180-212 μm , 212-355 μm ve 355-500 μm arası partikül çapı dağılımlarında yer alan Mg-Fe ÇKH'larının R_L değerlerinin 0-1 arasında olduğu ve Langmuir izotermi için uygun aralıkta olduğu anlaşılmaktadır. 500-600 μm partikül çapı dağılımında ise R_L değerinin sıfırdan küçük olduğu görülmektedir. 125-180 μm , 180-212 μm ve 212-355 μm partikül çapı dağılımlarında partikül çapının artışı ile K_L değerinin azaldığı ve R_L değerinin arttığı, 355-500 μm ve 500-600 μm partikül çapı dağılımlarında ise K_L ve R_L değerlerinin bu artış (K_L) ve azalışa (R_L) uymadığı belirlenmiştir. Değerlerin sıfırdan farklı olması adsorpsiyon prosesinin geri dönüşümlü olduğunu ifade etmektedir.

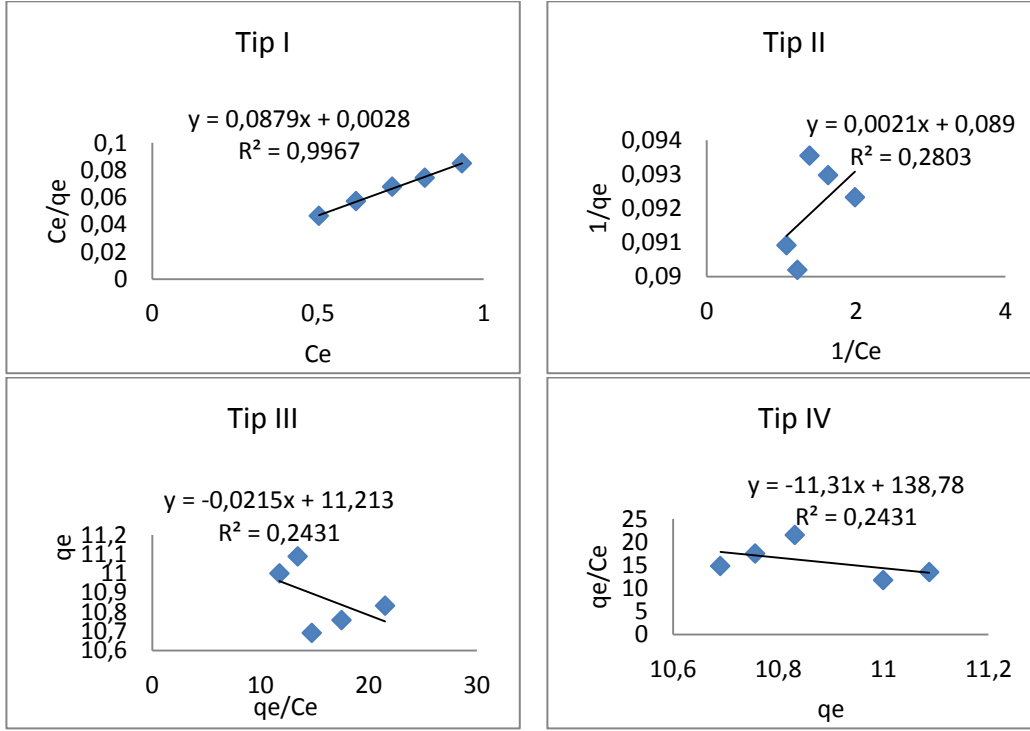
Mg-Al ÇKH'ları ile fosfor giderim çalışmasında ölçülen fosfor giderimleri ile uygulanan ÇKH miktarları kullanılarak çizilen Langmuir izoterm grafikleri Şekil 4.10 ve 4.12 arasında verilmiştir.

125-180 μm 180-212 μm 

Şekil 4.10. Mg-Al ÇKH'ları Langmuir İzoterm Grafikleri -1

212-355 μm 355-425 μm 

Şekil 4.11. Mg-Al ÇKH'ları Langmuir İzoterm Grafikleri -2

425-600 μm 

Şekil 4.12. Mg-Al ÇKH'ları Langmuir İzoterm Grafikleri -3

Şekil 4.10 ve 4.12'da verilen grafiklerden görüldüğü gibi Mg-Al ÇKH'larının beş farklı partikül dağılımı için adsorpsiyonun Langmuir izotermine uyduğu görülmektedir. Mg-Al ÇKH'ları için partikül çaplarına göre hesaplanan Langmuir izotermi ayırma faktörü R_L , q_m ve K_L değerleri Çizelge 4.10'de yer almaktadır.

Çizelge 4.10. Mg-Al ÇKH'ları için Langmuir izotermi değerleri

Partikül Çapı, μm	R_L	q_m , mg/g	K_L , 1/mg
125-180	0,011	20,161	82,7
180-212	0,025	17,272	52,631
212-355	0,024	15,174	38,764
355-425	0,028	12,919	32,25
425-600	0,029	11,376	31,393

Hesaplanan R_L değerlerinde görüldüğü gibi Mg-Al ÇKH'larının tüm partikül çapları için R_L değerlerinin 0-1 arasında olduğu ve Langmuir izotermi için uygun aralıkta olduğu tespit edilmiştir. Mg-Al ÇKH'larının beş farklı partikül dağılımı için partikül çapı artışına bağlı K_L değerlerinin azaldığı ve 180-212 μm

Mg-Al ÇKH'ları partikül dağılımı hariç diğer dört partikül çapı dağılımı için R_L değerinin arttığı anlaşılmıştır. R_L değerlerin sıfırdan farklı olması adsorpsiyon prosesinin geri dönüşümlü olduğunu ifade etmektedir.

Ulibarri ve ark. (2001) sentezledikleri Mg-Al- CO_3 (HTCO_3) ve Mg-Al-Cl (HTCl) ve çeşitli sıcaklıklarda ısıtılmalara tabi tuttıkları hidrotalsitler ile DBS ve TNP gideriminin, Lazaridis ve ark. (2003), Crosfield (INEOS Silicas) tarafından temin ettikleri SD1520 kodlu hidrotalsit ile boyar madde gideriminin Langmuir izotermine uyduğunu bildirmişlerdir. Ayrıca Das ve ark. (2006), başlangıç molar oranları farklı 7 çeşit (4 çeşit Zn-Al-Zr ve 3 çeşit Mg-Al-Zr) ÇKH ile kromat ve selenat gideriminin Langmuir izotermine uyduğu ve maksimum kapasite değerlerinin ise sırası ile 16-24 mg/g ve 23-29 mg/g arasında değiştiğini, Anirudhan ve ark. (2008) tanin ile modifiye ettikleri Mg-Al ÇKH'ları ile Cu^{+2} , Zn^{+2} ve Cd^{+2} gideriminin Langmuir izotermine uyduğunu ve maksimum adsorpsiyon kapasitelerinin sırası ile 81,47 mg/g, 78,91 mg/g ve 74,97 mg/g olduğunu, Türk ve ark. (2010) laboratuvarında sentezledikleri Mg-Fe hidrotalsitleri ile arsenit giderim çalışmasının Langmuir izotermine uyduğu ve maksimum adsorpsiyon kapasitesinin 80,35 $\mu\text{g/g}$ olduğunu, Kuzawa ve ark. (2006), (Tomita Pharmaceutical Co. Ltd., Japan) firmasından temin ettikleri sentetik Mg-Al hidrotalsiti granüler (0,5-1,7 mm partikül çapı) ve toz formunda kullanarak fosfor gideriminin Langmuir izotermine uyduğunu, granüler hidrotalsit için maksimum kapasite değerinin 47,3 mg/g olduğunu, Drenkova-Tuhtan (2013) sentezledikleri Mg-Al, Mg-Al-Zr, Mg-Fe-Zr ve Mg-Fe hidrotalsitlerini süperparamanyetik partiküllere dönüştürerek yaptıkları çalışmada fosfor gideriminin Langmuir izotermine uyduğunu ve maksimum adsorpsiyon kapasitesi değerinin 35 mg/g olduğunu, Ferreira ve ark. (2006) Mg-Al (HTAl) ve Mg-Fe (HTFe) hidrotalsitlerini 105 μm partikül çapının altında olacak şekilde öğütürerek kullandıkları boron giderimi çalışmasında elde ettikleri verilerin Langmuir izotermine uyduğunu HTAl ve HTFe hidrotalsitleri için maksimum kapasite değerinin sırası ile 14 mg/g ve 3,6 mg/g olduğunu bildirmişlerdir.

4.2.5.3. Temkin İzotermi

Temkin eşitliği doğrudan adsorbant ile adsorbat arasındaki etkileşimin sorpsiyon izotermi üzerindeki etkisine dayanır ve bu etkileşimlerden dolayı yüzeyde adsorplanan tüm moleküllerin ısısındaki düşüş algoritmikten ziyade lineerdir. Bu araştırmada iki çeşit ÇKH kullanılarak yapılan çalışma ile tespit edilen fosfat giderim verileri ile hazırlanan Temkin izoterm grafikleri Mg-Fe ve Mg-Al ÇKH'ları için sırası ile EK-9 ve EK-10'da verilmiştir. EK-9 ve EK-10 incelendiği zaman Mg-Fe ÇKH'nın beş farklı partikül çapı dağılımı için izotermi ayrıca Temkin izotermine uyduğu anlaşılmaktadır. Mg-Al ÇKH'larının beş partikül boyutu dağılımı için fosfor gideriminin Temkin izotermi ile açıklanamayacağı görülmektedir.

4.2.5.4. Dubinin – Radushkevich İzotermi

Dubinin – Radushkevich (R-D) izoterm modeli Langmuir izoterminden farklı olarak homojen yüzey ve sabit sorpsiyon potansiyeli kabulü yapmaz. Ortalama sorpsiyon enerjisi için eşitlik aşağıdaki gibi yazılabilir:

$$E = \frac{1}{\sqrt{2\beta}}$$

E'nin değeri ortalama sorpsiyon enerjisini tahmin etmede güvenilir bilgi temin eder. Kimyasal adsorpsiyon 1 – 8 kJ/mol E değerlerinde ve fiziksel adsorpsiyon ise 8 kJ/mol den büyük E değerlerinde gerçekleşir (Chen ve ark, 2009). Bu çalışmada kullanılan Mg-Fe ve Mg-Al ÇKH'ları kullanılarak araştırılan fosfat giderimi verileri ile hazırlanan D-R grafikleri sırası ile Şekil EK-11 ve EK-12'de verilmiştir. Eklerde (EK-11 ve EK-12) görüldüğü gibi bu çalışmada sentezlenen Mg-Al ve Mg-Fe ÇKH'larının D-R izotermine uymadığı anlaşılmaktadır.

4.2.6. Çift Katmanlı Hidroksitler ile Partikül Boyutu ve Fosfor Konsantrasyonunun Değişimi

ÇKH kütlesi ile fosfor konsantrasyonu değişimini açıklamak için birinci dereceden reaksiyon hızlarının belirlenmesi için kullanılan konsantrasyonun zamanla değişimini veren yarı logaritmik eşitlikteki zaman parametresi yerine ÇKH kütlesinin eklenmesi ile değiştirilmiş aşağıdaki eşitlik önerilmektedir.

$$\frac{dC}{dm} = -KC \quad \text{Eşitlik 4.8}$$

Burada;

C = konsantrasyon (mg/L)

m = kütle (g)

K = kütle değişimine bağlı konsantrasyon değişimi ile ilgili sabit (mg/L.g)

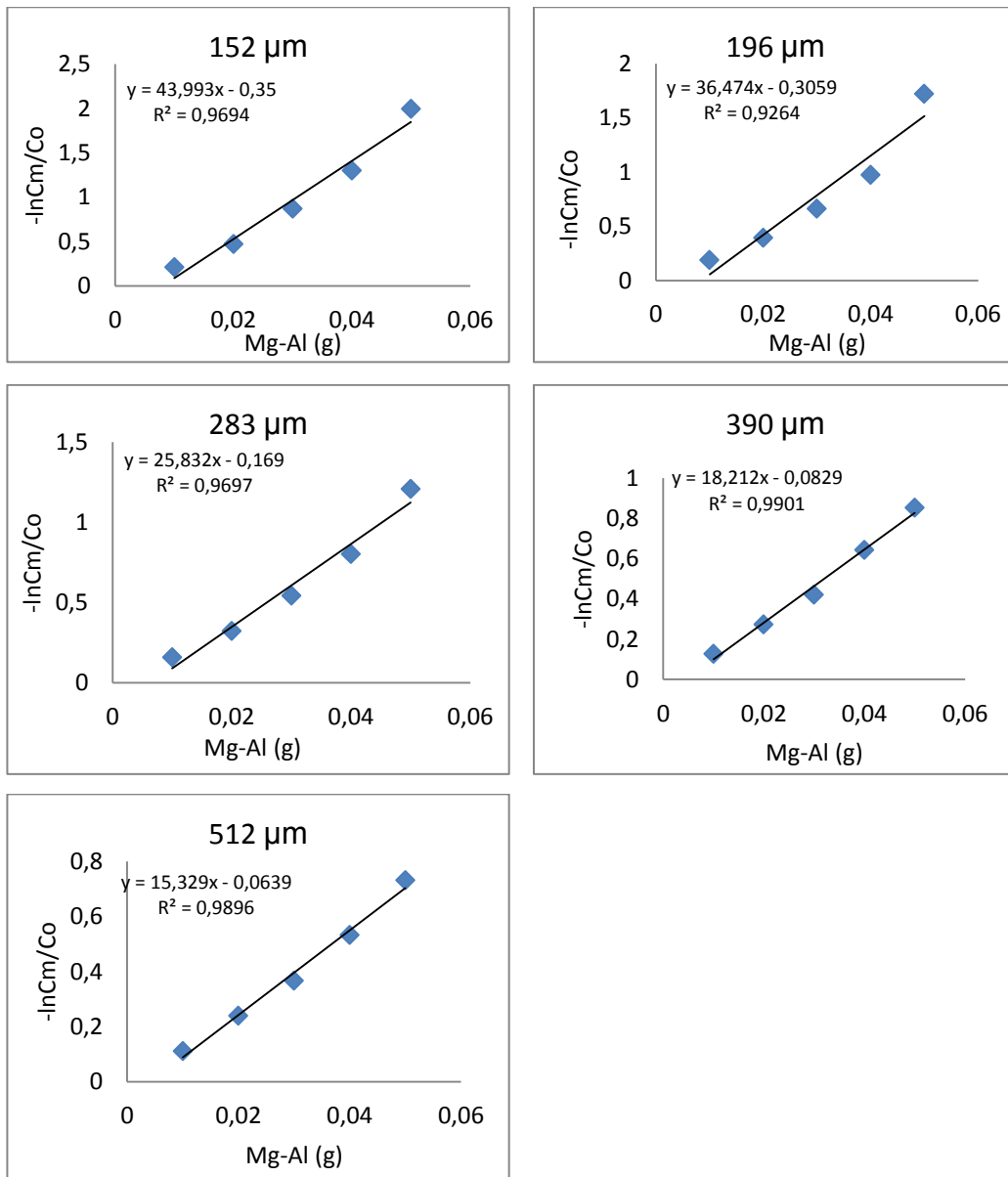
$$\int_{C_0}^{C_m} \frac{dC}{C} = -K \int_0^m dm \quad \text{Eşitlik 4.9}$$

$$-\ln \frac{C_m}{C_0} = -K m \quad \text{Eşitlik 4.10}$$

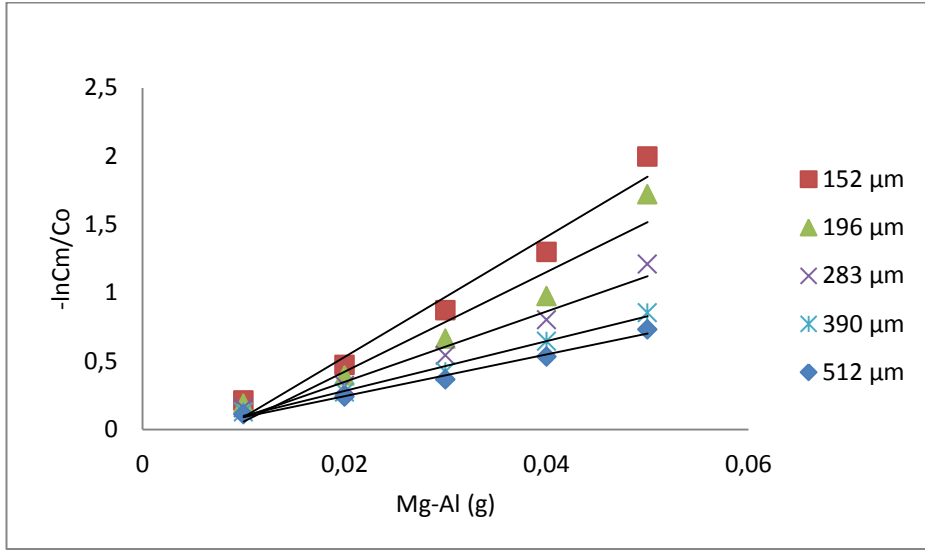
$-\ln C_m/C_0$ değerlerine karşı m değerleri grafiğe geçirilirse elde edilen doğrunun – eğimi ÇKH kütlesi değişimine bağlı fosfor giderimi ile ilgili bir sabit (K) verir. Ancak bu sabit sadece bir partikül boyutu için geçerlidir. Bu çalışmada beş farklı boyutta ÇKH kullanılmasından dolayı ÇKH kütlesine bağlı fosfor giderim grafikleri her boyut ÇKH için ayrı ayrı çizilmiştir. Şekil 4.13’de görülen bütün grafikler ÇKH kütlesine bağlı olarak değişen fosfor giderimlerinin önerilen eşitlik ile açıklanabileceğini göstermektedir.

Bu çalışmada kullanılan beş farklı ÇKH boyutlarının tamamında ÇKH kütlesi ile fosfor giderim ilişkisinin çok iyi olmasına rağmen ÇKH boyutlarının değişimi ile K sabiti değerinin değiştiği, Şekil 4.14’te görülmektedir.

Bundan dolayı ÇKH kütlesi ile fosfor gideriminin ilişkisi olan K sabitinin doğru kullanılabilmesi için mutlaka ÇKH boyutlarının etkisi de sayısal olarak belirlenmelidir. Bu çalışmada kullanılan beş farklı ÇKH boyutlarının tamamında ÇKH kütlesi ile fosfor giderim ilişkisinin çok iyi olmasına rağmen ÇKH boyutlarının değişimi ile K sabiti değerinin değiştiği, Şekil 4.14'te görülmektedir. Bundan dolayı ÇKH kütlesi ile fosfor gideriminin ilişkisi olan K sabiti belirli boyutla aralığında kullanılmalıdır.



Şekil 4.13. Farklı ÇKH boyutları için kütleye bağlı konsantrasyon değişim grafikleri



Şekil 4.14. Partikül boyutları değişimi ile K sabitinin değişimi

5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

Bu çalışmada laboratuvar ortamında birlikte çöktürme metodu kullanılarak sentezlenen Mg-Fe ve Mg-Al çift katmanlı hidroksitleri partikül çaplarına göre ayrılarak fosfor giderimi çalışılmıştır.

Mg-Fe ve Mg-Al ÇKH'ları için en küçük partikül çapı olan 125-180 µm partikül çapı dağılımında fosfor giderimlerinin sırası ile %84 ve %86 olduğu, en yüksek partikül çapı dağılımında ise sırası ile %36 ve %52 giderim gözlenmiştir. Partikül çapının küçülmesine bağlı olarak fosfor giderimi, kütle artışına bağlı giderimden daha yüksek olduğu tespit edilerek, her iki ÇKH için fosfor tutma kapasitelerinin sırası ile 3 mg/g ve 57,5 mg/g olduğu materyal ve metot bölümünde yer alan kesikli analizler ile belirlenmiştir.

Fosfor giderimi esnasında her iki ÇKH'ın da bünyesinde bulunan OH⁻ iyonlarının çözelti ortamına geçmesi ile pH değerinin arttığı belirlenmiştir. Ayrıca çözeltinin pH değerinin 7-8 arasında olduğu ve fosfat formlarından HPO₄⁻² ve H₂PO₄⁻ iyonlarının ÇKH'ın yapısına katıldığı düşünülmektedir.

ÇKH'ları kullanılarak giderimin adsorpsiyon/iyon değişimi şeklinde gerçekleştiği Mg-Fe ÇKH'ları için yapılan izoterm analizinde Freundlich izotermine, Mg-Al ÇKH'larının ise yapılan izoterm analizi ile Langmuir izotermine uyduğu belirlenmiştir.

ÇKH'ların sentezinin kolay ve uygulanabilir olması, düşük fosfor konsantrasyonlarında kullanılabilirliği, arıtma çamuru oluşmaması ve kimyasal madde ilavesi gerektirmemesi nedeniyle fosfor gibi oksianyonların gideriminde kullanılması önerilmektedir.

Bu çalışmada Mg-Al ÇKH'ları ile tespit edilen fosfat giderimleri ile ÇKH'ların partikül çaplarına göre kullanılan miktarları kullanılarak modelleme çalışması yapılmıştır. Adsorpsiyon çalışmalarında partiküler adsorbantın partikül çapının önemli olduğu bu çalışmada açıkça görülmektedir. Kullanılan adsorban ile giderimin açıklanabilmesi için belli bir standart prosedürün olmadığı ve bu yönde araştırmaların artırılarak matematiksel modellerin eksikliğinin kapatılması gerektiği düşünülmektedir.

KAYNAKLAR

- ANIRUDHAN, TS., SUCHITHRA, PS., 2008. Synthesis and characterization of tannin-immobilized hydrotalcite as a potential adsorbent of heavy metal ions in effluent treatments. *Applied Clay Science*, 214-223.
- BENAMMAR, L., MENASRIA, T., AYACHI, A., BENOUNIS, M., 2015. Phosphate removal using aerobic bacterial consortium and pure cultures isolated from activated sludge. *Process Safety and Environmental Protection*. 95, 237-246.
- BISH, D.L., 1980. Anion-exchange in talc: applications to other hydroxide minerals. *Bone Miner.* 103, 170–175.
- BRAVO-SUÁREZ, JJ., PÁEZ-MOZO, EA., OYAMA, ST., 2004. Models for the estimation of thermodynamic properties of layered double hydroxides: application to the study of their anion exchange characteristics. *Quim Nova*, 27,601.
- BRUNA, F., PAVLOVIC, I., BARRIGA, C., CORNEJO, J., ULIBARRI, MA., 2006. Adsorption of pesticides Carbetamide and Metamitron on organohydrotalcite. *Appl. Clay Sci.* 33 (2), 116–124.
- BRYAN, CR., WANG, Y., XU, H., BRATERMAN, PS., GAO, H., 2003. As, Se, and Re sorption by Mg–Al layered double hydroxides. In: *Proceedings of the Materials Research Society Symposium*, Boston, MA, USA, pp. 671–676.
- CARAVELLI, AH., CONTRERAS, EM., ZARITZKY, NE., 2010. Phosphorous removal in batch systems using ferric chloride in the presence of activated sludges. *Journal of Hazardous Materials*, 177.199-208.
- CAVANI, F., TRIFIRB, F., VACCARI, A., 1991. Hydrotalcite-type anionic clays: preparation, properties and applications. *Catal. Today*, 11, 173–301.

- CHEN, AH., CHEN, SM., 2009. Biosorption of azo dyes from aqueous solution by glutaraldehyde-cross linked chitosans, *J. Hazard. Mater.* 172, 1111-1121
- CHITRAKAR, R., TEZUKA, S., SONODA, A., SAKANE, K., OOI, K., HIROTSU, T., 2005. Adsorption of phosphate from seawater on calcined MgMn-layered double hydroxides. *J. Colloid Interf. Sci.* 290 (1), 45–51.
- CHOI, J., LEE, S., PARK, K., LEE, K., KIM, D., LEE, S., 2011. Investigation of phosphorous removal from wastewater through ion exchange of mesostructure based on inorganic material. *Desalination*, 266,281-285.
- CHOWDHURY, RW., MOORE, G., WEATHERLEY, AJ., ARORA, M., 2014. A review of recent substanceflow analyses of phosphorus to identify priority management areas at differentgeographical scales. *Recour Conserv Recycl*, 83:213–8.
- CHUBAR, N., 2011. New inorganic (an)ion exchangers based on Mg-Al hydrous oxides: (Alkoxide-free) sol-gel synthesis and characterisation. *Journal of Colloidal and Interface Science*, 357, 198-209.
- COOK, PJ., SHERGOLD, JH., BURNETT, WC. ve RIGGS, SR.,1990. Phosphorite research: a historical overview. In:A.J.G. Notholt and I. Jarvis (Editors). *Phosphorite Researchand Development*. Geol. Sot. Spec. Pub., 52: 1-22.
- CORMA, A., PALOMARES, AE., REY, F., MARQUEZ, F., 1997. Simultaneous catalytic removal of SO_x and NO_x with hydrotalcitederived mixed oxides containing copper, and their possibilities to be used in FCC units. *J. Catal.* 170 (1), 140–149.
- DAS, NN., KONAR, J., MOHANTA, MK., SRIVASTAVA, SC., 2004. Adsorption of Cr(VI) and Se(IV) from their aqueous solutions onto Zr⁴⁺-substituted ZnAl/MgAl-layered double hydroxides: effect of Zr⁴⁺ substitution in the layer. *J. Colloid Interf. Sci.* 270(1), 1–8.

- DAS, J., PATRA, BS., BALIARSINGH, N., PARIDA, KM., 2006. Adsorption of phosphate by layered double hydroxides in aqueous solutions. *Applied Clay Science*, 32. 252-260.
- DRENKOVA-TUHTAN, A., MANDEL, K., PAULUS, A., MEYER, C., HUTTER, F., GELLERMANN, C., SEXTL, G., FRANZREB, M., STEINMETZ, H., 2013. Phosphate recovery from wastewater using engineered superparamagnetic particles modified with layered double hydroxide ion exchangers. *Water Research*, 47, 5670-5677.
- EVANS, DG., DUAN, X., 2006. Preparation of layered double hydroxides and their applications as additives in polymers, as precursors to magnetic materials and in biology and medicine. *Chem. Commun.* (5), 485–496.
- FERREIRA, OP., MORAES, SG., DURAN, N., ALVES, OL., 2005. High efficiency removal of boron from water by hydrotalcite-like compounds. In: *Proceedings of the REWAS'04-Global Symposium on Recycling, Waste Treatment and Clean Technology*, Madrid, Spain, pp. 2867–2868.
- FERREIRA, OP., MORAES SG., DURAN N., CORNEJO, L., ALVES, OL, 2006. Evaluation of boron removal from water by hydrotalcite-like compounds. *Chemosphere*, 62, 80-88.
- FÖLLMI, KB., 1996. The phosphorus cycle, phosphogenesis and marine phosphate- rich deposits. *Earth Science Reviews*, 40,55-124.
- FREUNDLICH, HMF., 1906. Über die adsorption in lösungen, *Z. Phys. Chem.* 57, 385-470.
- GALINDO, R., LOPEZ-DELGADO, A., PADILLA, I., YATES, M., 2014. Hydrotalcite-like compounds: A way to recover a hazardous waste in the aluminum tertiary industry. *Applied Clay Science*, 95,41-49.
- GILLMAN, GP., 2006. A simple technology for arsenic removal from drinking water using hydrotalcite. *Sci. Total Environ.* 366 (2–3), 926–931.
- GOH, K., LIM, T., DONG, Z., 2008. Application of layered double hydroxides for removal of oxyanions: A review. *Water Research*, 42,1343-1368.

- GOSWAMEE, RL., SENGUPTA, P., BHATTACHARYYA, KG., DUTTA, DK., 1998. Adsorption of Cr(VI) in layered double hydroxides. *Applied Clay Science*, 13,21-34.
- GUSTAFSSON, JP., RENMAN, A., RENMAN, G., POLL, K., 2008. Phosphate removal by mineral-based sorbents used in filters for small-scale wastewater treatment. *Water Research*, 42, 189-197.
- GREENBURG, AE., LEVIN, G., KAUFFMAN, WJ., 1955. The effect of phosphorus removal on the activated sludge process. *Sewage. Ind Wastes*, 27:227.
- HE, J., Wei, M., Li, B., Kang, Y., Evans, DG., Duan, X., 2005. Preparation of Layered Double Hydroxides. *Struct Bond*, 113,89-119.
- HIBINO, T., OHYA, H., 2009. Synthesis of crystalline layered double hydroxides: Precipitation by using urea hydrolysis and subsequent hydrothermal reactions in aqueous solutions. *Applied Clay Science*, 45,123-132.
- KAIKA, M., 2003. The Water Framework Directive: A New Directive for a Changing Social, Political and Economic European Framework. *European Planning Studies*, 11(3),299-316
- KANNAN, S., 1998. Decomposition of nitrous oxide over the catalysts derived from hydrotalcite-like compounds. *Appl. Clay Sci.* 13 (5–6), 347–362.
- KOPPELAAR, RHEM., WEÏKARD, HP., 2013. Assessing phosphate rock depletion and phosphorus recycling options. *Global Environ Change*, 23:1454–66.
- KOVANDA, F., KOVACSOVA, E., KOLOUSEK, D., 1999. Removal of anions from solution by calcined hydrotalcite and regeneration of used sorbent in repeated calcination–rehydration–anion exchange processes. *Collect. Czech. Chem. C* 64 (9), 1517–1528.
- KOVANDA, F., JINDOVÁ, E., LANG, K., KUBÁT, P., SEDLÁKOVÁ, Z., 2010. Preparation of layered double hydroxides intercalated with organic

- anions and their application in LDH/poly (butyl methacrylate) nanocomposites. *Applied Clay Science*, 48, 260-270.
- KÕIV, M., LIIRA, M., MANDER, Ü., MÕTLEP, R., VOHLA, C., KIRSIMAE, 2010. Phosphorous removal using Ca-rich hydrated oil shale ash as filter material-The effect if different phosphorus loadings and wastewater compositions. *Water Research*, 44, 5232-5239.
- KUZAWA, K., JUNG, Y., KISO, Y., YAMADA, T., NAGAI, M., LEE, T., 2006. Phosphate removal and recovery with a synthetic hydrotalcite as an adsorbent. *Chemosphere*, 62, 45-52).
- LAZARIDIS, NK., KARAPANTSIOS, TD. VE GEORGANTAS, D., 2003. Kinetic analysis for the removal of a reactive dye from aqueous solution onto hydrotalcite by adsorption, *Water Research*, 37, 3023–3033.
- LAZARIDIS, NK., PANDI, TA., MATIS, KA., 2004. Chromium(VI) removal from aqueous solutions by Mg–Al–CO₃ hydrotalcite: sorption–desorption kinetic and equilibrium studies. *Ind. Eng. Chem. Res.* 43 (9), 2209–2215.
- LEVIN, GV., SHAPIRO, J., 1965. Metabolic uptake of phosphorus by wastewater organisms. *J Water Pollut Control Fed*, 37:800-821.
- 1965;37:800]821.
- LI, F., DUAN, X., 2005. Applications of layered double hydroxides. *Struct. Bond.* 119 (1), 193–223.
- LIU, Y., VILLALBA, G., AYRES, RU., SCHRODER, H., 2008. Global phosphorus flows and environmental impacts from a consumption perspective. *J Ind Ecol*, 12(2), 229–47.
- LIU, J., SONG, J., XIAO, H., ZHANG, L., QIN, Y., LIU, D., HOU, W., DU, N., 2014. Synthesis and thermal properties of ZnAl layered double hydroxide by urea hydrolysis. *Powder Technology*, 253, 41-45.
- NAMASIVAYAM C., SENTHILKUMAR, S., 1997. Recycling of industrial solid waste for the removal of mercury (II) by adsorption process, *Chemosphere* 24, 357-375.

- NEWMAN, SP., JONES, W., 1998. Synthesis, characterization and applications of layered double hydroxides containing organic guests. *New J. Chem.* 22 (2), 105–115.
- NUR, T., JOHIR, MAH., LOGANATHAN, P., NGUYEN, T., VIGNESWARAN, S., KANDASAMY, J., 2014. Phosphate removal from water using and iron oxide impregnated strong base anion exchange resin. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*. 20, 1301-1307.
- MORSE, GK., BREET, SW., GUY, JA., LESTER, JN., 1998. Review: Phosphorus removal and recovery technologies. *The Science of the Total Environment*. 212, 69-81.
- OGAWA M., KAIHO H., 2002. Homogeneous Precipitation of Uniform Hydrotalcite Particles. *Langmuir* 18:4240.
- OTHMAN, MR., HELWANI, Z., FERNANDO M., FERNANDO WJN, 2009. Synthetic hydrotalcites from different routes and their application as catalysts and gas adsorbents: a review. *Applied Organometallic Chemistry*, 23, 335-346.
- PALOMARES, AE., LOPEZ-NIETO, JM., LAZARO, F.J., LOPEZ, A., CORMA, A., 1999. Reactivity in the removal of SO₂ and NO_x on Co/Mg/Al mixed oxides derived from hydrotalcites. *Appl. Catal. B—Environ.* 20 (4), 257–266.
- PALOMARES, AE., PRATO, JG., REY, F., CORMA, A., 2004. Using the “memory effect” of hydrotalcites for improving the catalytic reduction of nitrates in water. *J. Catal.* 221 (1), 62–66.
- PEREZ-RAMIREZ, J., KAPTEIJN, F., MOULIJN, J.A., 1999. High activity and stability of the Rh-free Co-based ex-hydrotalcite containing Pd in the catalytic decomposition of N₂O. *Catal. Lett.* 60 (3), 133–138.
- PETRUCCI, RH., HERRING, FG., MADURA, JD., BISSONNETTE, C., 2010. *General Chemistry: Principles and Modern Applications with Mastering Chemistry*. Pearson Education, USA, Appendix.

- PROCHASKA, CA., ZOUBOULIS, AI, 2006. Removal of phosphates by pilot vertical-flow constructed wetlands using a mixture of sand and dolomite as substrate. *Ecological Engineering*, 26, 293-303.
- RAHMAN, MBA., BASRİ, M., HUSSEİN, MZ., IDRİS, MNH., RAHMAN, RNZRA., SALLEH, AB., 2004. Immobilisation of lipase from *Candida rugosa* on layered double hydroxides of Mg/Al and its nanocomposite as biocatalyst for the synthesis of ester. *Catal. Today* 93–95 (1), 405–410.
- RAO, MM., REDDY, BR., JAYALAKSMİ M., JAYA, VS., SRİDHAR B., 2005. Hydrothermal synthesis of Mg-Al hydrotalcites by urea hydrolysis. *Mater. Res. Bull.*, 40,347–359.
- REIJNDERS, L., 2014. Phosphorus resources, their depletion and conservation, a review. *Resources, Conservation and Recycling*, 93,32-49.
- ROY, A., FORANO, C., EL MALKİ, K., BESSE, J.P., 1992. In: Occelli, M.L., Robson, H. _Eds., *Expanded Clays and Other Microporous Solids, Synthesis of Microporous Materials*. Van Nostrand-Reinhold, New York, pp. 108–169.
- RIVES, V., ULIBARRI, MA., 1999. Layered double hydroxides (LDH) intercalated with metal coordination compounds and oxometales. *Coord. Chem. Rev.* 181, 61–120.
- RIVES, V., 2001. *Layered Double Hydroxides: Present and Future*. Nova Science Publishers, Inc., New York.
- SHANNON, IJ., MASCHMEYER, T., SANKAR, G., THOMAS, JM., OLDROYD, RD., SHEEHY, M., MADİLL, D., WALLER, AM., TOWNSEND, RP., 1997. A new cell for the collection of combined EXAFS/XRD data in situ during solid/liquid catalytic reactions. *Catal. Lett.* 44 (1–2), 23–27.
- SHILTON, AN., ELMETRI, I., DRIZO, A., PRATT, S., HAVERKAMP, RG., BILBY, SC., 2006. Phosphorus removal by an ‘active’ slag-filter-a decade of full scale experience. *Water Research*, 40, 113-180.

- RICE, EW., BAIRD, RB., EATON, AD., CLESCERI, LS., 2012. Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater, Washington.
- SRINATH EG., 1959. Rapid removal of phosphorus from sewage by activated sludge. *Experientia*, 15,339-345.
- SUH, S., YEE, S., 2011. Phosphorus use-efficiency of agriculture and the food system in the US. *Chemosphere*, 84:806–13.
- SZEKERES, M., SZECHENYI, A., STEPAN, K., HARASZTI, T. VE DEKANY, I., 2005. Layer-by-layer self-assembly preparation of layered double hydroxide/polyelectrolyte nanofilms monitored by surface plasmon resonance spectroscopy, *Colloid Polym Sci.*, 283, 937–945.
- TEZUKA, S., CHITRAKAR, R., SONODA, A., OOI, K., TOMIDA, T., 2005. Studies on selective adsorbents for oxo-anions, NO_3^- , Adsorptive properties of Ni-Fe layered double hydroxide in seawater. *Adsorption* 11 (Suppl. 1), 751–755.
- TORAISHI, T., NAGASAKI, S., TANAKA, S., 2002. Adsorption behavior of IO_3^- by CO_3^{2-} and NO_3^{2-} hydrotalcite. *Appl. Clay Sci.* 22 (1–2), 17–23.
- TÜRK, T., ALP, İ., 2010. Mg-Fe-Hidrotalsit (FeHT) Kullanılarak Sudan As(III) Adsorpsiyonu. *Ekoloji*, 17,74,77-88.
- ULIBARRI, MA., PAVLOVIC, I., BARRIGA, C., HERMOSIN, MC., CORNEJO, J., 2001. Adsorption of anionic species on hydrotalcite-like compounds: effect of interlayer anion and crystallinity. *Applied Clay Science*, 18,17-27.
- VACCARÌ, A., 1998. Preparation and catalytic properties of cationic and anionic clays. *Catal. Today* 41 (1–3), 53–71.
- VOGEL, AI., 1989. Quantitative Inorganic Chemical Analysis. 5th edn. Longman, Harlow, Essex, UK p 424.
- WANG, H., CHEN, J., CAI, Y., JI, J., LIU, L., TENG, HH., 2007. Defluoridation of drinking water by Mg/Al hydrotalcite-like compounds and their calcined products. *Applied Clay Science*, 35, 59-66.

- WANG, Y., TNG, KH., WU, H., LESLIE, G., WAITE, TD., 2014. Removal of phosphorus from wastewaters using ferrous salts – A pilot scale membrane bioreactor study. *Water Research*, 57, 140-150.
- XIE, J., LIN, Y., LI, C., WU, D., KONG, H., 2015. Removal and recovery of phosphate from water bu activated aluminum oxide and lanthanum oxide. *Powder Technology*. 269, 351-357.
- XIONG, JB., MAHMOOD, Q., 2010. Adsorptive removal of phosphate from aqueous media by peat. *Desalination*, 259, 59-64.
- XU, K., LI, J., ZHENG, M., ZHANG, C., XIE, T., WANG, C., 2015. The precipitation of magnesium potassium phosphate hexahydrate for P and K recovery from syntheetic urine. *Water Research*. 80, 71-79.
- YANG, L., SHAHRIVARI, Z., LIU, PKT., SAHIMI, M., TSOTSIS, TT., 2005. Removal of trace levels of arsenic and selenium from aqueous solutions by calcined and uncalcined layered double hydroxides (LDH). *Ind. Eng. Chem. Res.* 44 (17), 6804–6815.
- YANG, Z., ZHOU, H., ZHANG, J. VE CAO, W., 2007. Relationship between Al/Mg ratio and the stability of single-layer hydrotalcite, *Acta Phys. - Chim. Sin.*, 23, 795-800.
- YE, Y., YANG, SJ., ZHENG, LB., SHEN, ZY., JI, SS., HUANG, X., 2004. Comparison and discussion on the adsorption capacity of Article In Press *Water Research* 42 (2008) 1343 – 1368 1367 several compounds with layered structure. *Wuji Cailiao Xuebao/J. Inorg. Mater.* 19 (6), 1379–1385.
- YIN, H., YUN, Y., ZHANG, Y., FAN, C., 2011. Phosphate removal from wastewaters by a naturally occurring, calcium-rich sepiolite. *Journal of Hazardous Materials*, 198, 362-369.
- ZHANG, M., REARDON, EJ., 2003. Removal of B, Cr, Mo, and Se from wastewater by incorporation into hydrocalumite and ettringite. *Environ. Sci. Technol.* 37 (13), 2947–2952.

- ZHONG-LIANG, S., FU-MEI, L., SHU-HUA, Y., Adsorptive removal of phosphate from aqueous solutions using activated carbon loaded with Fe(III) oxide. *New Carbon Material*, 26(4), 299-306.
- Zeng, HY., Deng, X., Wang, YJ., Liao, KB., 2009. Preparation of Mg-Al hydrotalcite by urea method and its catalytic activity for transesterification. *Aiche Journal*, 5, 1229–1235.

ÖZGEÇMİŞ

1990 yılında Diyarbakır’da doğdu. İlk ve orta öğrenimi Diyarbakır’da tamamladı. 2008 yılında başladığı Çukurova Üniversitesi, Mühendislik-Mimarlık Fakültesi Çevre Mühendisliği Bölümü’nden 2012 yılında mezun oldu ve aynı yıl Çevre Mühendisliği Bölümü, Çevre Teknolojileri Anabilim Dalı’nda yüksek lisans eğitimine başladı.

EKLER

EKLER

EK-1

Partikül çapı dağılımlarına göre fosfor gideriminde kullanılacak olan ÇKH miktarları

Partikül çapı, µm	ÇKH miktarı, g									
	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5	0,01	0,02	0,03	0,04	0,05
125-180 Mg-Fe	X	X	X	X	X					
180-212 Mg-Fe	X	X	X	X	X					
212-355 Mg-Fe	X	X	X	X	X					
355-500 Mg-Fe	X	X	X	X	X					
500-600 Mg-Fe	X	X	X	X	X					
125-180 Mg-Al						X	X	X	X	X
180-212 Mg-Al						X	X	X	X	X
212-355 Mg-Al						X	X	X	X	X
355-425 Mg-Al						X	X	X	X	X
425-600 Mg-Al						X	X	X	X	X

X, partikül çapı dağılımlarına göre ayrılmış ÇKH'ların fosfor gideriminde kullanılan miktarını göstermektedir.

EK-2

Partikül çapı dağılımlarına göre ayrılmış ÇKH'lar için kullanılan fosfat çözeltilerinin konsantrasyonları

Mg-Fe		Mg-Al	
Partikül çapı, µm	Konsantrasyon, mg/L	Partikül çapı, µm	Konsantrasyon, mg/L
125-180	21,451	125-180	20,91
180-212	21,451	180-212	20,91
212-355	21,451	212-355	20,91
355-500	21,273	355-425	20,91
500-600	21,451	425-600	20,91

EK-3

Adsorpsiyon Denge İzotermi ve Lineer İfadeleri

İzoterm	Eşitlik	Lineer İfade	Plot	Parametreler
Freundlich	$q_e = K_f (C_e)^{1/n}$	$\ln q_e = \ln K_f + n^{-1} \ln C_e$	$\frac{\ln q_e}{e \text{ karşı}} \ln C_e$	$K_f = e^{KN}$ $1/n = E$
Langmuir	$q_e = \frac{q_m K_L C_e}{(1 + K_L C_e)}$	Tip (I) $C_e/q_e = (1/K_L q_m) + (C_e/q_m)$	$\frac{C_e/q_e}{e \text{ karşı}} C_e$	$q_m = E^{-1}$ $K_L = E/KN$
		Tip (II) $1/q_e = (1/K_L q_m C_e) + (1/q_m)$	$\frac{1/q_e}{e \text{ karşı}} 1/C_e$	$q_m = (KN)^{-1}$ $K_L = \frac{KN}{E}$
		Tip (III) $q_e = q_m - (1/K_L) q_e / C_e$	$\frac{q_e}{e \text{ karşı}} q_e / C_e$	$q_m = KN$ $K_L = E^{-1}$
		Tip (IV) $q_e / C_e = K_L q_m - K_L q_e$	$\frac{q_e / C_e}{e \text{ karşı}} q_e$	$q_m = \frac{KN}{E}$ $K_L = -E$
Temkin	$q_e = q_m \ln(K_T C_e)$	$q_e = q_m \ln K_T + q_m \ln C_e$	$\frac{q_e}{e \text{ karşı}} \ln C_e$	$q_m = E$ $K_T = e^{KN/E}$
D-R	$q_e = q_m e^{(-D \varepsilon^2)}$	$\ln q_e = \ln q_m - D \varepsilon^2$	$\frac{\ln q_e}{e \text{ karşı}} \varepsilon^2$	$q_m = e^{KN/E}$ $D = -E$

$$\varepsilon = RT \ln(1 + C_e)$$

KN= Kesim Noktası

E= Eğim

EK-4**125-180 µm Mg-Fe ÇKH Freundlich İzotermi Eşitliği Değerleri**

ÇKH kütlesi, g	x (C _o -C _e), mg	x/m	lnC _e	ln(x/m)
0,1	0,277	2,772	-0,228	1,019
0,2	0,500	2,504	-0,559	0,917
0,3	0,679	2,265	-0,933	0,817
0,4	0,813	2,034	-1,351	0,710
0,5	0,903	1,806	-1,775	0,591

180-212 µm Mg-Fe ÇKH Freundlich İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	x (C _o -C _e), mg	x/m	lnC _e	ln(x/m)
0,1	0,259	2,593	-0,207	0,953
0,2	0,458	2,291	-0,487	0,829
0,3	0,626	2,087	-0,806	0,736
0,4	0,742	1,856	-1,108	0,618
0,5	0,841	1,681	-1,461	0,520

212-355 µm Mg-Fe ÇKH Freundlich İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	x (C _o -C _e), mg	x/m	lnC _e	ln(x/m)
0,1	0,206	2,057	-0,143	0,721
0,2	0,372	1,860	-0,356	0,621
0,3	0,502	1,673	-0,561	0,515
0,4	0,608	1,520	-0,767	0,419
0,5	0,698	1,395	-0,981	0,333

355-500 µm Mg-Fe ÇKH Freundlich İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	x (C _o -C _e), mg	x/m	lnC _e	ln(x/m)
0,1	0,134	1,342	-0,073	0,294
0,2	0,251	1,256	-0,208	0,228
0,3	0,355	1,182	-0,344	0,167
0,4	0,447	1,118	-0,484	0,111
0,5	0,532	1,063	-0,631	0,061

500-600 µm Mg-Fe ÇKH Freundlich İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	x (C _o -C _e), mg	x/m	lnC _e	ln(x/m)
0,1	0,047	0,471	0,025	-0,754
0,2	0,098	0,492	-0,026	-0,710
0,3	0,162	0,540	-0,094	-0,616
0,4	0,243	0,606	-0,186	-0,500
0,5	0,392	0,783	-0,384	-0,244

125-180 μm Mg-Al ÇKH Freundlich İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	x (C_o-C_e), mg	x/m	$\ln C_e$	$\ln(x/m)$
0,01	0,198	19,785	-0,165	2,985
0,02	0,393	19,663	-0,427	2,979
0,03	0,608	20,262	-0,826	3,009
0,04	0,760	18,998	-1,253	2,944
0,05	0,903	18,060	-1,948	2,894

180-212 μm Mg-Al ÇKH Freundlich İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	x (C_o-C_e), mg	x/m	$\ln C_e$	$\ln(x/m)$
0,01	0,179	17,865	-0,143	2,883
0,02	0,340	16,980	-0,348	2,832
0,03	0,507	16,892	-0,619	2,827
0,04	0,651	16,275	-0,930	2,790
0,05	0,859	17,170	-1,677	2,843

212-355 μm Mg-Al ÇKH Freundlich İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	x (C_o-C_e), mg	x/m	$\ln C_e$	$\ln(x/m)$
0,01	0,152	15,180	-0,112	2,720
0,02	0,287	14,350	-0,276	2,664
0,03	0,422	14,075	-0,473	2,644
0,04	0,576	14,401	-0,756	2,667
0,05	0,733	14,661	-1,163	2,685

355-425 μm Mg-Al ÇKH Freundlich İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	x (C_o-C_e), mg	x/m	$\ln C_e$	$\ln(x/m)$
0,01	0,125	12,500	-0,083	2,526
0,02	0,250	12,475	-0,229	2,524
0,03	0,369	12,300	-0,392	2,510
0,04	0,496	12,400	-0,600	2,518
0,05	0,600	11,990	-0,809	2,484

425-600 μm Mg-Al ÇKH Freundlich İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	x (C_o-C_e), mg	x/m	$\ln C_e$	$\ln(x/m)$
0,01	0,110	11,000	-0,067	2,398
0,02	0,222	11,088	-0,195	2,406
0,03	0,321	10,690	-0,323	2,369
0,04	0,430	10,756	-0,487	2,375
0,05	0,542	10,832	-0,686	2,383

EK-5**125-180 μm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip1) İzotermi Eşitliği Değerleri**

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	C_e	C_e/q_e
0,1	0,795	2,772	0,795	0,287
0,2	0,572	2,504	0,572	0,228
0,3	0,393	2,265	0,393	0,173
0,4	0,259	2,034	0,259	0,127
0,5	0,169	1,806	0,169	0,094

180-212 μm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip1) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	C_e	C_e/q_e
0,1	0,813	2,593	0,813	0,314
0,2	0,614	2,291	0,614	0,268
0,3	0,447	2,087	0,447	0,214
0,4	0,330	1,856	0,330	0,178
0,5	0,232	1,681	0,232	0,138

212-355 μm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip1) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	C_e	C_e/q_e
0,1	0,867	2,057	0,867	0,422
0,2	0,701	1,860	0,701	0,377
0,3	0,571	1,673	0,571	0,341
0,4	0,464	1,520	0,464	0,306
0,5	0,375	1,395	0,375	0,269

355-500 μm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip1) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	C_e	C_e/q_e
0,1	0,930	1,342	0,930	0,693
0,2	0,812	1,256	0,812	0,647
0,3	0,709	1,182	0,709	0,600
0,4	0,617	1,118	0,617	0,551
0,5	0,532	1,063	0,532	0,501

500-600 μm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip1) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	C_e	C_e/q_e
0,1	1,026	0,471	1,026	2,180
0,2	0,974	0,492	0,974	1,981
0,3	0,911	0,540	0,911	1,686
0,4	0,830	0,606	0,830	1,369
0,5	0,681	0,783	0,681	0,870

125-180 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip1) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	C_e	C_e/q_e
0,01	0,848	19,785	0,848	0,043
0,02	0,652	19,663	0,652	0,033
0,03	0,438	20,262	0,438	0,022
0,04	0,286	18,998	0,286	0,015
0,05	0,143	18,060	0,143	0,008

180-212 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip1) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	C_e	C_e/q_e
0,01	0,867	17,865	0,867	0,049
0,02	0,706	16,980	0,706	0,042
0,03	0,539	16,892	0,539	0,032
0,04	0,395	16,275	0,395	0,024
0,05	0,187	17,170	0,187	0,011

212-355 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip1) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	C_e	C_e/q_e
0,01	0,894	15,180	0,894	0,059
0,02	0,759	14,350	0,759	0,053
0,03	0,623	14,075	0,623	0,044
0,04	0,469	14,401	0,469	0,033
0,05	0,312	14,661	0,312	0,021

355-425 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip1) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	C_e	C_e/q_e
0,01	0,920	12,500	0,920	0,074
0,02	0,796	12,475	0,796	0,064
0,03	0,676	12,300	0,676	0,055
0,04	0,549	12,400	0,549	0,044
0,05	0,446	11,990	0,446	0,037

425-600 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip1) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	C_e	C_e/q_e
0,01	0,935	11,000	0,935	0,085
0,02	0,823	11,088	0,823	0,074
0,03	0,724	10,690	0,724	0,068
0,04	0,615	10,756	0,615	0,057
0,05	0,503	10,832	0,503	0,046

125-180 μm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip2) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	$1/C_e$	q_e/C_e
0,1	0,795	2,772	1,257	0,361
0,2	0,572	2,504	1,749	0,399
0,3	0,393	2,265	2,545	0,441
0,4	0,259	2,034	3,864	0,492
0,5	0,169	1,806	5,905	0,554

180-212 μm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip2) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	$1/C_e$	q_e/C_e
0,1	0,813	2,593	1,230	0,386
0,2	0,614	2,291	1,628	0,436
0,3	0,447	2,087	2,239	0,479
0,4	0,330	1,856	3,028	0,539
0,5	0,232	1,681	4,311	0,595

212-355 μm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip2) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	$1/C_e$	q_e/C_e
0,1	0,867	2,057	1,154	0,486
0,2	0,701	1,860	1,428	0,538
0,3	0,571	1,673	1,752	0,598
0,4	0,464	1,520	2,153	0,658
0,5	0,375	1,395	2,666	0,717

355-500 μm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip2) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	$1/C_e$	q_e/C_e
0,1	0,930	1,342	1,076	0,745
0,2	0,812	1,256	1,231	0,796
0,3	0,709	1,182	1,410	0,846
0,4	0,617	1,118	1,622	0,895
0,5	0,532	1,063	1,879	0,941

500-600 μm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip2) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	$1/C_e$	q_e/C_e
0,1	1,026	0,471	0,975	2,125
0,2	0,974	0,492	1,026	2,034
0,3	0,911	0,540	1,098	1,851
0,4	0,830	0,606	1,205	1,649
0,5	0,681	0,783	1,468	1,277

125-180 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip2) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	$1/C_e$	q_e/C_e
0,01	0,848	19,785	1,180	0,051
0,02	0,652	19,663	1,533	0,051
0,03	0,438	20,262	2,285	0,049
0,04	0,286	18,998	3,501	0,053
0,05	0,143	18,060	7,018	0,055

180-212 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip2) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	$1/C_e$	q_e/C_e
0,01	0,867	17,865	1,154	0,056
0,02	0,706	16,980	1,417	0,059
0,03	0,539	16,892	1,856	0,059
0,04	0,395	16,275	2,535	0,061
0,05	0,187	17,170	5,348	0,058

212-355 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip2) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	$1/C_e$	q_e/C_e
0,01	0,894	15,180	1,119	0,066
0,02	0,759	14,350	1,318	0,070
0,03	0,623	14,075	1,604	0,071
0,04	0,469	14,401	2,130	0,069
0,05	0,312	14,661	3,201	0,068

355-425 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip2) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	$1/C_e$	q_e/C_e
0,01	0,920	12,500	1,087	0,080
0,02	0,796	12,475	1,257	0,080
0,03	0,676	12,300	1,479	0,081
0,04	0,549	12,400	1,821	0,081
0,05	0,446	11,990	2,245	0,083

425-600 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip2) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	$1/C_e$	q_e/C_e
0,01	0,935	11,000	1,070	0,091
0,02	0,823	11,088	1,215	0,090
0,03	0,724	10,690	1,381	0,094
0,04	0,615	10,756	1,627	0,093
0,05	0,503	10,832	1,986	0,092

125-180 μm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip3) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	q_e/C_e	q_e
0,1	0,795	2,772	3,485	2,772
0,2	0,572	2,504	4,380	2,504
0,3	0,393	2,265	5,764	2,265
0,4	0,259	2,034	7,861	2,034
0,5	0,169	1,806	10,667	1,806

180-212 μm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip3) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	q_e/C_e	q_e
0,1	0,813	2,593	3,188	2,593
0,2	0,614	2,291	3,729	2,291
0,3	0,447	2,087	4,673	2,087
0,4	0,330	1,856	5,618	1,856
0,5	0,232	1,681	7,248	1,681

212-355 μm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip3) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	q_e/C_e	q_e
0,1	0,867	2,057	2,372	2,372
0,2	0,701	1,860	2,656	2,656
0,3	0,571	1,673	2,931	2,931
0,4	0,464	1,520	3,273	3,273
0,5	0,375	1,395	3,720	3,720

355-500 μm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip3) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	q_e/C_e	q_e
0,1	0,930	1,342	1,443	1,342
0,2	0,812	1,256	1,546	1,256
0,3	0,709	1,182	1,666	1,182
0,4	0,617	1,118	1,813	1,118
0,5	0,532	1,063	1,998	1,063

500-600 μm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip3) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	q_e/C_e	q_e
0,1	1,026	0,471	0,459	0,471
0,2	0,974	0,492	0,505	0,492
0,3	0,911	0,540	0,593	0,540
0,4	0,830	0,606	0,731	0,606
0,5	0,681	0,783	1,150	0,783

125-180 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip3) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	q_e/C_e	q_e
0,01	0,848	19,785	23,341	19,785
0,02	0,652	19,663	30,146	19,663
0,03	0,438	20,262	46,297	20,262
0,04	0,286	18,998	66,518	18,998
0,05	0,143	18,060	126,737	18,060

180-212 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip3) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	q_e/C_e	q_e
0,01	0,867	17,865	20,609	17,865
0,02	0,706	16,980	24,054	16,980
0,03	0,539	16,892	31,353	16,892
0,04	0,395	16,275	41,255	16,275
0,05	0,187	17,170	91,818	17,170

212-355 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip3) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	q_e/C_e	q_e
0,01	0,894	15,180	16,986	15,180
0,02	0,759	14,350	18,919	14,350
0,03	0,623	14,075	22,583	14,075
0,04	0,469	14,401	30,677	14,401
0,05	0,312	14,661	46,923	14,661

355-425 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip3) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	q_e/C_e	q_e
0,01	0,920	12,500	13,587	12,500
0,02	0,796	12,475	15,682	12,475
0,03	0,676	12,300	18,195	12,300
0,04	0,549	12,400	22,587	12,400
0,05	0,446	11,990	26,914	11,990

425-600 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip3) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	q_e/C_e	q_e
0,01	0,935	11,000	11,765	11,000
0,02	0,823	11,088	13,468	11,088
0,03	0,724	10,690	14,759	10,690
0,04	0,615	10,756	17,497	10,756
0,05	0,503	10,832	21,518	10,832

125-180 µm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip4) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	x/m	q _e	q _e /C _e
0,1	0,795	2,772	2,772	3,485
0,2	0,572	2,504	2,504	4,380
0,3	0,393	2,265	2,265	5,764
0,4	0,259	2,034	2,034	7,861
0,5	0,169	1,806	1,806	10,667

180-212 µm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip4) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	x/m	q _e	q _e /C _e
0,1	0,813	2,593	2,593	3,188
0,2	0,614	2,291	2,291	3,729
0,3	0,447	2,087	2,087	4,673
0,4	0,330	1,856	1,856	5,618
0,5	0,232	1,681	1,681	7,248

212-355 µm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip4) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	x/m	q _e	q _e /C _e
0,1	0,867	2,057	2,057	2,372
0,2	0,701	1,860	1,860	2,656
0,3	0,571	1,673	1,673	2,931
0,4	0,464	1,520	1,520	3,273
0,5	0,375	1,395	1,395	3,720

355-500 µm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip4) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	x/m	q _e	q _e /C _e
0,1	0,930	1,342	1,342	1,443
0,2	0,812	1,256	1,256	1,546
0,3	0,709	1,182	1,182	1,666
0,4	0,617	1,118	1,118	1,813
0,5	0,532	1,063	1,063	1,998

500-600 µm Mg-Fe ÇKH Langmuir (Tip4) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	x/m	q _e	q _e /C _e
0,1	1,026	0,471	0,471	0,459
0,2	0,974	0,492	0,492	0,505
0,3	0,911	0,540	0,540	0,593
0,4	0,830	0,606	0,606	0,731
0,5	0,681	0,783	0,783	1,150

125-180 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip4) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	q_e	q_e/C_e
0,01	0,848	19,785	19,785	23,341
0,02	0,652	19,663	19,663	30,146
0,03	0,438	20,262	20,262	46,297
0,04	0,286	18,998	18,998	66,518
0,05	0,143	18,060	18,060	126,737

180-212 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip4) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	q_e	q_e/C_e
0,01	0,867	17,865	17,865	20,609
0,02	0,706	16,980	16,980	24,054
0,03	0,539	16,892	16,892	31,353
0,04	0,395	16,275	16,275	41,255
0,05	0,187	17,170	17,170	91,818

212-355 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip4) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	q_e	q_e/C_e
0,01	0,894	15,180	15,180	16,986
0,02	0,759	14,350	14,350	18,919
0,03	0,623	14,075	14,075	22,583
0,04	0,469	14,401	14,401	30,677
0,05	0,312	14,661	14,661	46,923

355-425 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip4) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	q_e	q_e/C_e
0,01	0,920	12,500	12,500	13,587
0,02	0,796	12,475	12,475	15,682
0,03	0,676	12,300	12,300	18,195
0,04	0,549	12,400	12,400	22,587
0,05	0,446	11,990	11,990	26,914

425-600 μm Mg-Al ÇKH Langmuir (Tip4) İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	q_e	q_e/C_e
0,01	0,935	11,000	11,000	11,765
0,02	0,823	11,088	11,088	13,468
0,03	0,724	10,690	10,690	14,759
0,04	0,615	10,756	10,756	17,497
0,05	0,503	10,832	10,832	21,518

EK-6**125-180 μm Mg-Fe ÇKH Temkin İzotermi Eşitliği Değerleri**

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	x/m	lnC _e	q _e
0,1	0,795	2,772	-0,229	2,772
0,2	0,572	2,504	-0,559	2,504
0,3	0,393	2,265	-0,934	2,265
0,4	0,259	2,034	-1,352	2,034
0,5	0,169	1,806	-1,776	1,806

180-212 μm Mg-Fe ÇKH Temkin İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	x/m	lnC _e	q _e
0,1	0,813	2,593	-0,207	2,593
0,2	0,614	2,291	-0,487	2,291
0,3	0,447	2,087	-0,806	2,087
0,4	0,330	1,856	-1,108	1,856
0,5	0,232	1,681	-1,461	1,681

212-355 μm Mg-Fe ÇKH Temkin İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	x/m	lnC _e	q _e
0,1	0,867	2,057	-0,143	2,057
0,2	0,701	1,860	-0,356	1,860
0,3	0,571	1,673	-0,561	1,673
0,4	0,464	1,520	-0,767	1,520
0,5	0,375	1,395	-0,981	1,395

355-500 μm Mg-Fe ÇKH Temkin İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	x/m	lnC _e	q _e
0,1	0,930	1,342	-0,073	1,342
0,2	0,812	1,256	-0,208	1,256
0,3	0,709	1,182	-0,344	1,182
0,4	0,617	1,118	-0,484	1,118
0,5	0,532	1,063	-0,631	1,063

500-600 μm Mg-Fe ÇKH Temkin İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	x/m	lnC _e	q _e
0,1	1,026	0,471	0,025	0,471
0,2	0,974	0,492	-0,026	0,492
0,3	0,911	0,540	-0,094	0,540
0,4	0,830	0,606	-0,186	0,606
0,5	0,681	0,783	-0,384	0,783

125-180 μm Mg-Al ÇKH Temkin İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	$\ln C_e$	q_e
0,01	0,848	19,785	-0,165	19,785
0,02	0,652	19,663	-0,427	19,663
0,03	0,438	20,262	-0,826	20,262
0,04	0,286	18,998	-1,253	18,998
0,05	0,143	18,060	-1,948	18,060

180-212 μm Mg-Al ÇKH Temkin İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	$\ln C_e$	q_e
0,01	0,867	17,865	-0,143	17,865
0,02	0,706	16,980	-0,348	16,980
0,03	0,539	16,892	-0,619	16,892
0,04	0,395	16,275	-0,930	16,275
0,05	0,187	17,170	-1,677	17,170

212-355 μm Mg-Al ÇKH Temkin İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	$\ln C_e$	q_e
0,01	0,894	15,180	-0,112	15,180
0,02	0,759	14,350	-0,276	14,350
0,03	0,623	14,075	-0,473	14,075
0,04	0,469	14,401	-0,756	14,401
0,05	0,312	14,661	-1,163	14,661

355-425 μm Mg-Al ÇKH Temkin İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	$\ln C_e$	q_e
0,01	0,920	12,500	-0,083	12,500
0,02	0,796	12,475	-0,229	12,475
0,03	0,676	12,300	-0,392	12,300
0,04	0,549	12,400	-0,600	12,400
0,05	0,446	11,990	-0,809	11,990

425-600 μm Mg-Al ÇKH Temkin İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C_e , mg	x/m	$\ln C_e$	q_e
0,01	0,935	11,000	-0,067	11,000
0,02	0,823	11,088	-0,195	11,088
0,03	0,724	10,690	-0,323	10,690
0,04	0,615	10,756	-0,487	10,756
0,05	0,503	10,832	-0,686	10,832

EK-7**125-180 μm Mg-Fe ÇKH D-R İzotermi Eşitliği Değerleri**

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	ε	ε^2	lnq _e
0,1	0,795	20,029	401,147	1,020
0,2	0,572	24,877	618,844	0,918
0,3	0,393	31,129	969,013	0,818
0,4	0,259	38,914	1514,278	0,710
0,5	0,169	47,533	2259,386	0,591

180-212 μm Mg-Fe ÇKH D-R İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	ε	ε^2	lnq _e
0,1	0,813	19,725	389,084	0,953
0,2	0,614	23,767	564,852	0,829
0,3	0,447	28,914	836,047	0,736
0,4	0,330	34,272	1174,549	0,618
0,5	0,232	41,078	1687,391	0,520

212-355 μm Mg-Fe ÇKH D-R İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	ε	ε^2	lnq _e
0,1	0,867	18,871	356,112	0,721
0,2	0,701	21,817	475,996	0,621
0,3	0,571	24,905	620,277	0,515
0,4	0,464	28,250	798,072	0,419
0,5	0,375	31,960	1021,440	0,333

355-500 μm Mg-Fe ÇKH D-R İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	ε	ε^2	lnq _e
0,1	0,930	17,967	322,816	0,294
0,2	0,812	19,739	389,644	0,228
0,3	0,709	21,640	468,300	0,167
0,4	0,617	23,713	562,326	0,111
0,5	0,532	26,016	676,835	0,061

500-600 μm Mg-Fe ÇKH D-R İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	ε	ε^2	lnq _e
0,1	1,026	16,744	280,350	-0,754
0,2	0,974	17,375	301,892	-0,710
0,3	0,911	18,232	332,395	-0,616
0,4	0,830	19,450	378,298	-0,500
0,5	0,681	22,228	494,089	-0,244

125-180 μm Mg-Al ÇKH D-R İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	ε	ε^2	lnq _e
0,01	0,848	19,168	367,426	2,985
0,02	0,652	22,865	522,801	2,979
0,03	0,438	29,258	856,025	3,009
0,04	0,286	37,008	1369,589	2,944
0,05	0,143	51,208	2622,275	2,894

180-212 μm Mg-Al ÇKH D-R İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	ε	ε^2	lnq _e
0,01	0,867	18,872	356,141	2,883
0,02	0,706	21,706	471,168	2,832
0,03	0,539	25,817	666,521	2,827
0,04	0,395	31,062	964,831	2,790
0,05	0,187	45,463	2066,854	2,843

212-355 μm Mg-Al ÇKH D-R İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	ε	ε^2	lnq _e
0,01	0,894	18,473	341,236	2,720
0,02	0,759	20,685	427,890	2,664
0,03	0,623	23,548	554,511	2,644
0,04	0,469	28,071	787,959	2,667
0,05	0,312	35,306	1246,519	2,685

355-425 μm Mg-Al ÇKH D-R İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	ε	ε^2	lnq _e
0,01	0,920	18,098	327,552	2,526
0,02	0,796	20,026	401,044	2,524
0,03	0,676	22,336	498,902	2,510
0,04	0,549	25,517	651,105	2,518
0,05	0,446	28,955	838,365	2,484

425-600 μm Mg-Al ÇKH D-R İzotermi Eşitliği Değerleri

ÇKH kütlesi, g	C _e , mg	ε	ε^2	lnq _e
0,01	0,935	17,892	320,123	2,398
0,02	0,823	19,560	382,588	2,406
0,03	0,724	21,337	455,281	2,369
0,04	0,615	23,757	564,381	2,375
0,05	0,503	26,915	724,409	2,383

EK-8125-180 μm Mg-Fe ÇKH İzoterm Sabitleri

İzoterm	Sabitler	Bağıntı Katsayıları
Freundlich	$K_F=2,934$ $n=3,656$	$R^2=0,9992$ $ARE=0,372$ $NSD=0,218$
Langmuir		
Tip 1	$q_m=3,245$ $K_L=6,541$	$R^2=0,9953$ $ARE=0,430$ $NSD=0,220$
Tip 2	$q_m=3,061$ $K_L=8,144$	$R^2=0,9726$ $ARE=1,030$ $NSD=0,503$
Tip 3	$q_m=3,098$ $K_L=7,831$	$R^2=0,9423$ $ARE=0,076$ $NSD=0,032$
Tip 4	$q_m=3,148$ $K_L=7,376$	$R^2=0,9423$ $ARE=0,591$ $NSD=0,208$
Temkin	$q_m=0,615$ $K_T=106,781$	$R^2=0,9930$ $ARE=0,026$ $NSD=0,012$
D-R	$q_m=2,903$ $D=0,0002$	$R^2=0,9635$ $ARE=0,037$ $NSD=0,015$

180-212 μm Mg-Fe ÇKH İzoterm Sabitleri

İzoterm	Sabitler	Bağıntı Katsayıları
Freundlich	$K_F=2,746$ $n=2,913$	$R^2=0,9945$ $ARE=0,010$ $NSD=0,004$
Langmuir		
Tip 1	$q_m=3,320$ $K_L=3,984$	$R^2=0,9906$ $ARE=0,005$ $NSD=0,002$
Tip 2	$q_m=3,102$ $K_L=4,868$	$R^2=0,9680$ $ARE=0,012$ $NSD=0,004$
Tip 3	$q_m=3,149$ $K_L=4,668$	$R^2=0,9249$ $ARE=0,084$ $NSD=0,027$
Tip 4	$q_m=3,234$ $K_L=4,318$	$R^2=0,9249$ $ARE=0,384$ $NSD=0,100$
Temkin	$q_m=0,718$ $K_T=42,078$	$R^2=0,9830$ $ARE=0,040$ $NSD=0,013$
D-R	$q_m=2,802$ $D=0,0003$	$R^2=0,9525$ $ARE=0,036$ $NSD=0,020$

212-355 μm Mg-Fe ÇKH İzoterm Sabitleri

İzoterm	Sabitler	Bağıntı Katsayıları
Freundlich	$K_F=2,191$ $n=2,134$	$R^2=0,9982$ $ARE=0,005$ $NSD=0,002$
Langmuir		
Tip 1	$q_m=3,273$ $K_L=1,899$	$R^2=0,9925$ $ARE=0,721$ $NSD=0,032$
Tip 2	$q_m=3,131$ $K_L=2,086$	$R^2=0,9885$ $ARE=0,007$ $NSD=0,004$
Tip 3	$q_m=3,171$ $K_L=2,032$	$R^2=0,9625$ $ARE=0,041$ $NSD=0,021$
Tip 4	$q_m=3,229$ $K_L=1,956$	$R^2=0,9625$ $ARE=0,083$ $NSD=0,041$
Temkin	$q_m=0,796$ $K_T=14,822$	$R^2=0,9914$ $ARE=0,034$ $NSD=0,024$
D-R	$q_m=2,430$ $D=0,0006$	$R^2=0,9750$ $ARE=0,020$ $NSD=0,017$

355-500 μm Mg-Fe ÇKH İzoterm Sabitleri

İzoterm	Sabitler	Bağıntı Katsayıları
Freundlich	$K_F=1,373$ $n=2,394$	$R^2=0,9950$ $ARE=0,005$ $NSD=0,002$
Langmuir		
Tip 1	$q_m=2,075$ $K_L=1,916$	$R^2=0,9928$ $ARE=0,005$ $NSD=0,001$
Tip 2	$q_m=2,018$ $K_L=2,049$	$R^2=0,9857$ $ARE=0,007$ $NSD=0,003$
Tip 3	$q_m=2,027$ $K_L=2,027$	$R^2=0,9591$ $ARE=0,018$ $NSD=0,007$
Tip 4	$q_m=2,062$ $K_L=1,944$	$R^2=0,9591$ $ARE=0,037$ $NSD=0,013$
Temkin	$q_m=0,498$ $K_T=15,466$	$R^2=0,9891$ $ARE=0,009$ $NSD=0,003$
D-R	$q_m=1,626$ $D=0,0006$	$R^2=0,9748$ $ARE=0,024$ $NSD=0,015$

500-600 μm Mg-Fe ÇKH İzoterm Sabitleri

İzoterm	Sabitler	Bağıntı Katsayıları
Freundlich	$K_F=0,480$ $n=-0,791$	$R^2=0,9986$ $ARE=1,001$ $NSD=0,007$
Langmuir		
Tip 1	$q_m=0,261$ $K_L=-2,165$	$R^2=0,9958$ $ARE=3,535$ $NSD=0,033$
Tip 2	$q_m=0,264$ $K_L=-2,193$	$R^2=0,9866$ $ARE=0,033$ $NSD=0,010$
Tip 3	$q_m=0,2682$ $K_L=-2,216$	$R^2=0,9977$ $ARE=0,005$ $NSD=0,001$
Tip 4	$q_m=0,267$ $K_L=-2,211$	$R^2=0,9977$ $ARE=1,183$ $NSD=0,013$
Temkin	$q_m=-0,7769$ $K_T=0,542$	$R^2=0,9910$ $ARE=0,00,00410$ $NSD=$
D-R	$q_m=0,241$ $D=-0,002$	$R^2=0,9970$ $ARE=2,845$ $NSD=0,011$

125-180 μm Mg-Al ÇKH İzoterm Sabitleri

İzoterm	Sabitler	Bağıntı Katsayıları
Freundlich	$K_F=20,313$ $n=18,761$	$R^2=0,7095$ $ARE=0,016$ $NSD=0,015$
Langmuir		
Tip 1	$q_m=20,161$ $K_L=82,7$	$R^2=0,9991$ $ARE=0,0003$ $NSD=0,0002$
Tip 2	$q_m=20,45$ $K_L=54,4$	$R^2=0,8360$ $ARE=0,0007$ $NSD=0,0005$
Tip 3	$q_m=20,423$ $K_L=54,645$	$R^2=0,7923$ $ARE=0,271$ $NSD=0,242$
Tip 4	$q_m=19,791$ $K_L=45,4$	$R^2=0,7923$ $ARE=15,643$ $NSD=7,276$
Temkin	$q_m=1,011$ $K_T=5,18E+08$	$R^2=0,6999$ $ARE=0,323$ $NSD=0,294$
D-R	$q_m=20,346$ $D=0,00004$	$R^2=0,8155$ $ARE=0,016$ $NSD=0,007$

180-212 μm Mg-Al ÇKH İzoterm Sabitleri

İzoterm	Sabitler	Bağıntı Katsayıları
Freundlich	$K_F=17,272$ $n=52,631$	$R^2=0,1162$ $ARE=0,025$ $NSD=0,014$
Langmuir		
Tip 1	$q_m=17,986$ $K_L=37,07$	$R^2=0,9955$ $ARE=0,0008$ $NSD=0,0002$
Tip 2	$q_m=17,153$ $K_L=291,5$	$R^2=0,0211$ $ARE=0,001$ $NSD=0,001$
Tip 3	$q_m=17,135$ $K_L=416,667$	$R^2=0,0143$ $ARE=0,412$ $NSD=0,331$
Tip 4	$q_m=23,919$ $K_L=6,0754$	$R^2=0,0143$ $ARE=30,497$ $NSD=5,704$
Temkin	$q_m=0,330$ $K_T=5,46E+22$	$R^2=0,1198$ $ARE=0,428$ $NSD=0,240$
D-R	$q_m=17,160$ $D=0,000009$	$R^2=0,0310$ $ARE=0,024$ $NSD=0,018$

212-355 μm Mg-Al ÇKH İzoterm Sabitleri

İzoterm	Sabitler	Bağıntı Katsayıları
Freundlich	$K_F=14,642$ $n=71,942$	$R^2=0,0413$ $ARE=0,022$ $NSD=0,012$
Langmuir		
Tip 1	$q_m=15,174$ $K_L=38,765$	$R^2=0,9918$ $ARE=0,001$ $NSD=0,0006$
Tip 2	$q_m=14,6$ $K_L=342,5$	$R^2=0,0057$ $ARE=0,001$ $NSD=0,0009$
Tip 3	$q_m=14,575$ $K_L=666,7$	$R^2=0,0020$ $ARE=0,315$ $NSD=0,221$
Tip 4	$q_m=35,283$ $K_L=1,3117$	$R^2=0,0020$ $ARE=9,263$ $NSD=6,423$
Temkin	$q_m=0,211$ $K_T=1,07E+30$	$R^2=0,0446$ $ARE=0,323$ $NSD=0,188$
D-R	$q_m=14,595$ $D=0,0000007$	$R^2=0,0075$ $ARE=0,142$ $NSD=0,036$

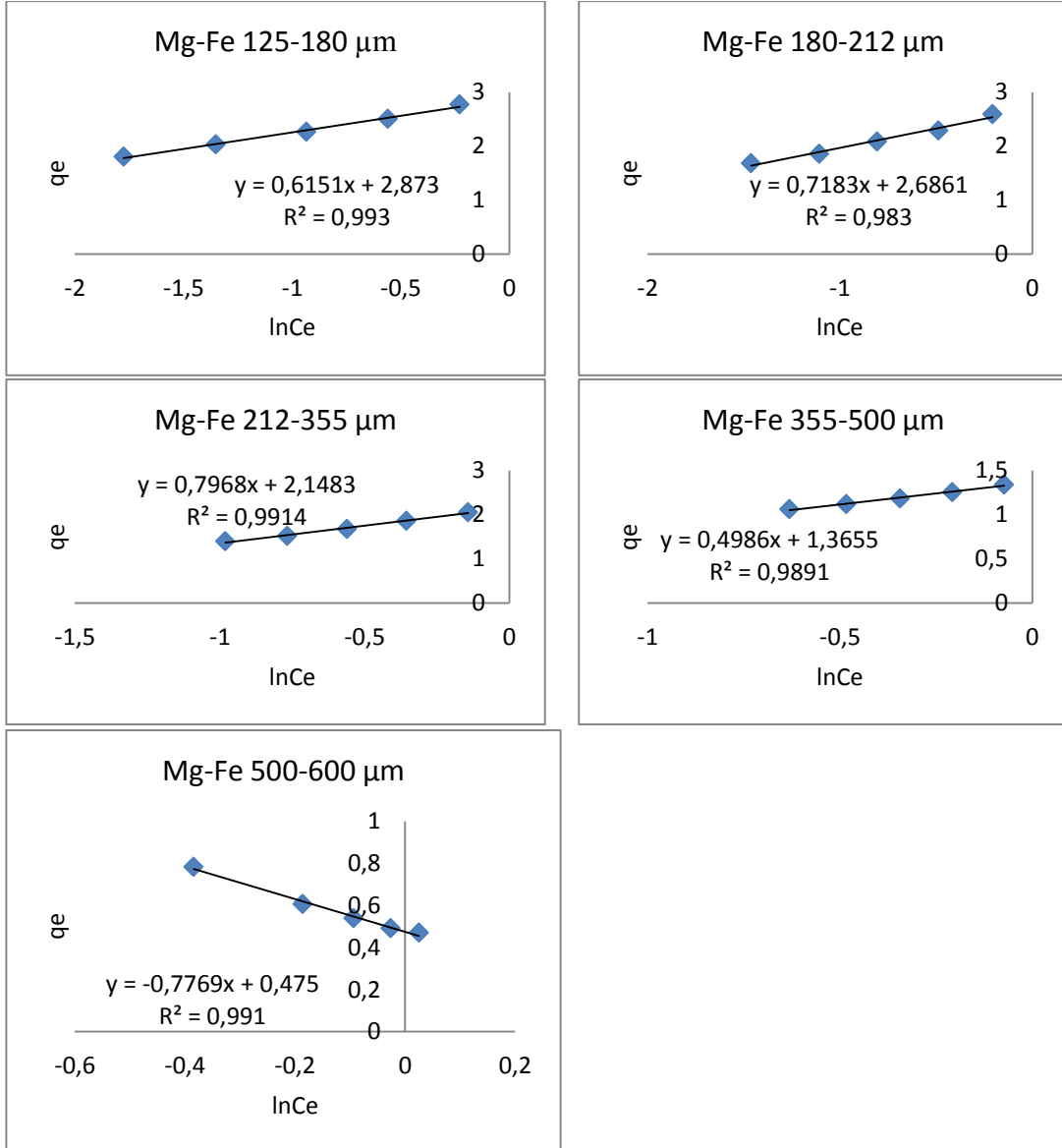
355-425 μm Mg-Al ÇKH İzoterm Sabitleri

İzoterm	Sabitler	Bağıntı Katsayıları
Freundlich	$K_F=12,503$ $n=21,739$	$R^2=0,7236$ $ARE=0,006$ $NSD=0,004$
Langmuir		
Tip 1	$q_m=12,919$ $K_L=32,25$	$R^2=0,9994$ $ARE=0,0002$ $NSD=0,0001$
Tip 2	$q_m=12,836$ $K_L=33,869$	$R^2=0,7698$ $ARE=0,0004$ $NSD=0,0003$
Tip 3	$q_m=12,788$ $K_L=36,900$	$R^2=0,7375$ $ARE=0,076$ $NSD=0,061$
Tip 4	$q_m=13,963$ $K_L=11,335$	$R^2=0,7375$ $ARE=1,815$ $NSD=1,866$
Temkin	$q_m=0,564$ $K_T=42 \times 10^{10}$	$R^2=0,7253$ $ARE=0,079$ $NSD=0,061$
D-R	$q_m=12,693$ $D=0,00006$	$R^2=0,7706$ $ARE=0,006$ $NSD=0,004$

425-600 μm Mg-Al ÇKH İzoterm Sabitleri

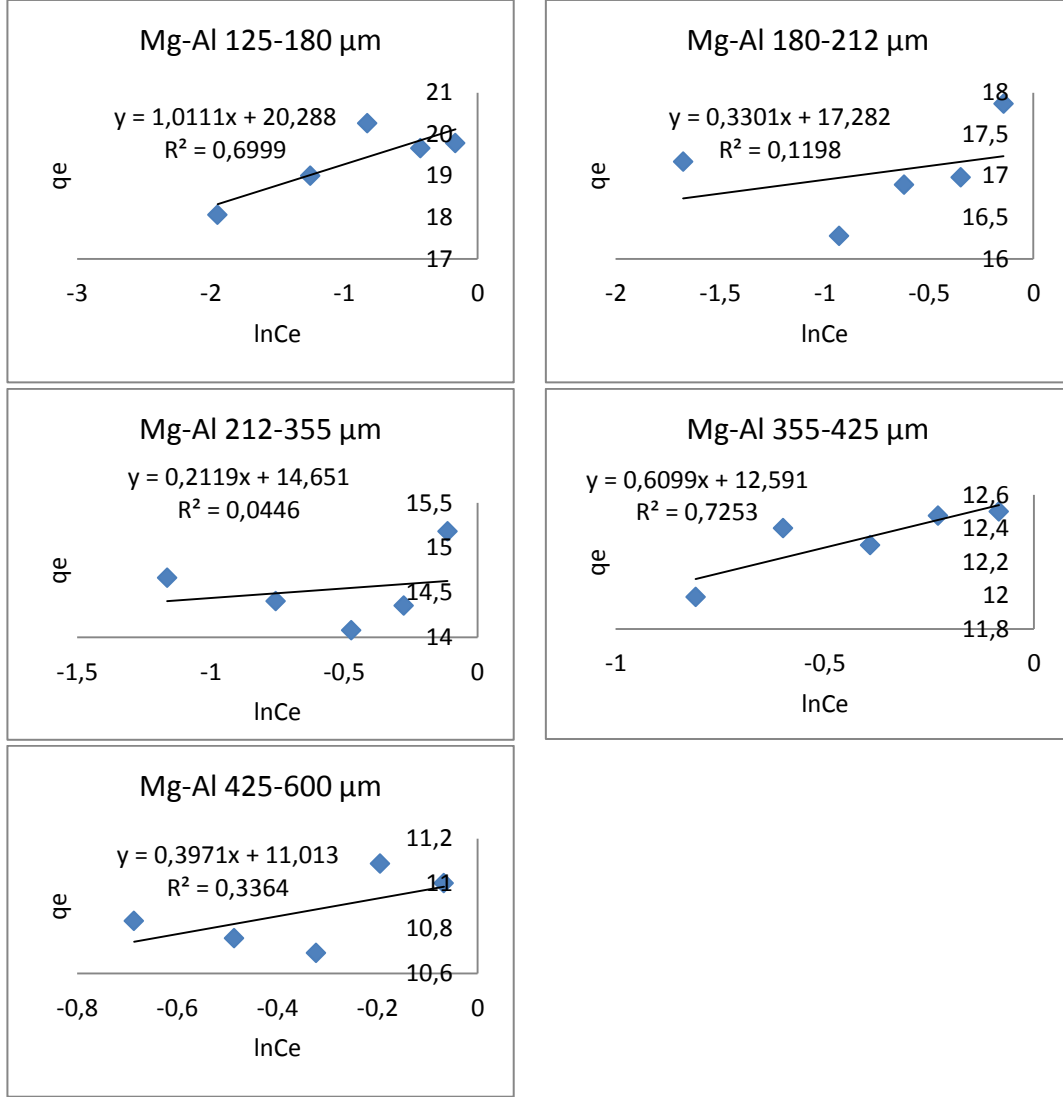
İzoterm	Sabitler	Bağıntı Katsayıları
Freundlich	$K_F=11,012$ $n=27,548$	$R^2=0,3341$ $ARE=0,009$ $NSD=0,006$
Langmuir		
Tip 1	$q_m=11,376$ $K_L=31,393$	$R^2=0,9967$ $ARE=0,0006$ $NSD=0,0004$
Tip 2	$q_m=11,236$ $K_L=42,381$	$R^2=0,2803$ $ARE=0,0009$ $NSD=0,0005$
Tip 3	$q_m=11,213$ $K_L=46,511$	$R^2=0,2431$ $ARE=0,114$ $NSD=0,068$
Tip 4	$q_m=12,270$ $K_L=11,31$	$R^2=0,2431$ $ARE=2,285$ $NSD=2,125$
Temkin	$q_m=0,397$ $K_T=1,11E+12$	$R^2=0,3364$ $ARE=0,103$ $NSD=0,071$
D-R	$q_m=11,145$ $D=0,00005$	$R^2=0,2800$ $ARE=0,010$ $NSD=0,006$

EK-9



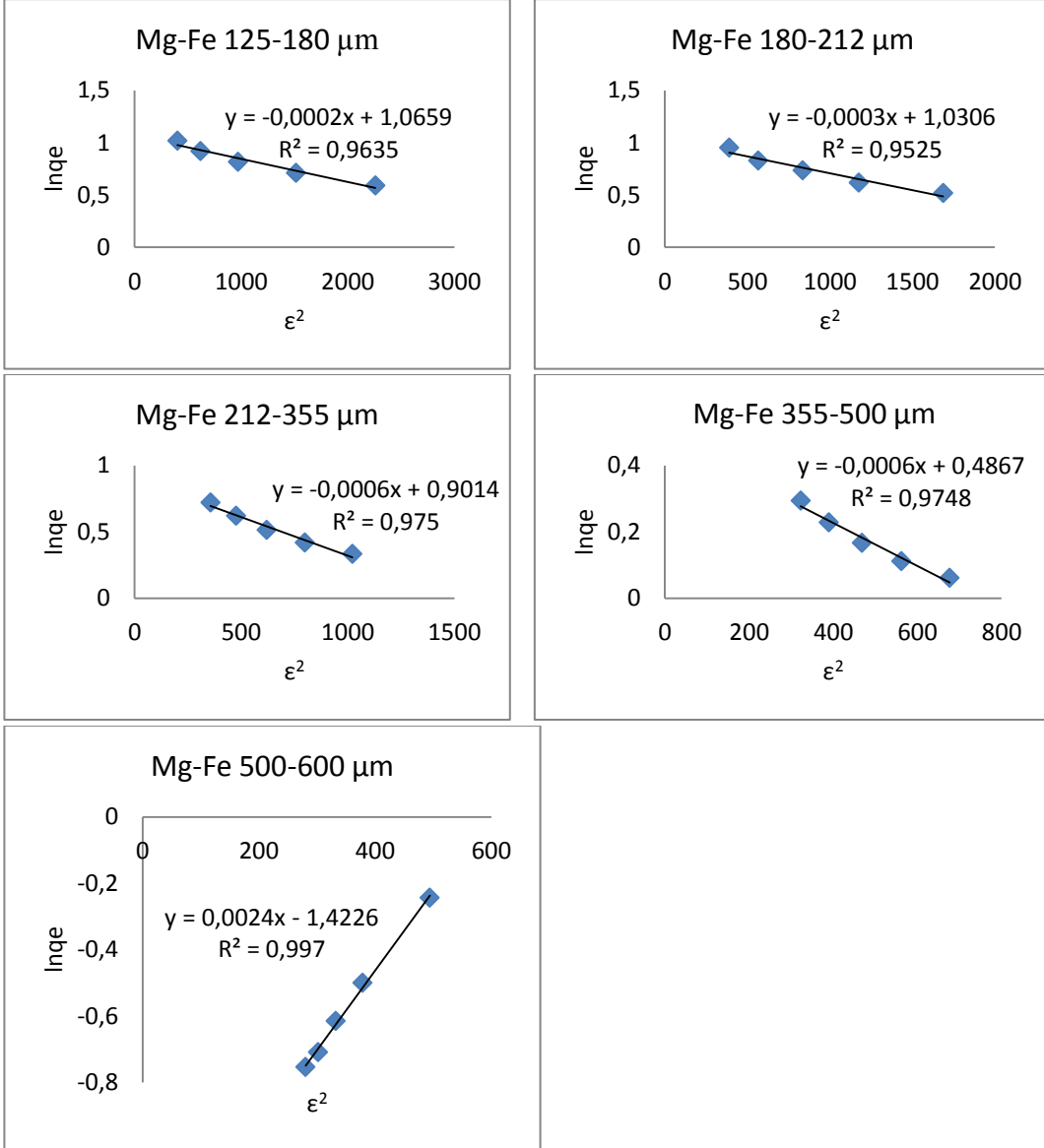
Mg-Fe ÇKH'ları Temkin İzoterm Grafikleri

EK-10



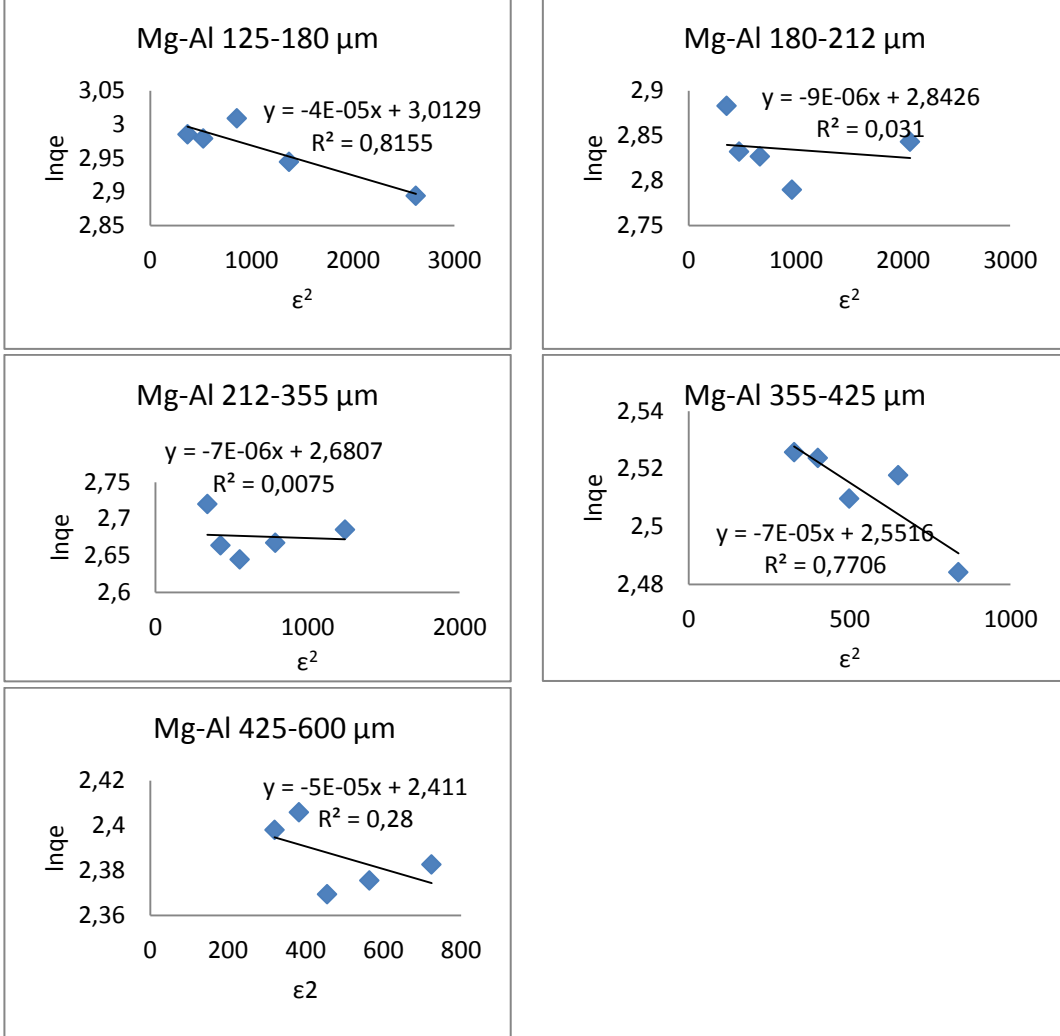
Mg-Al ÇKH'ları Temkin İzoterm Grafikleri

EK-11



Mg-Fe ÇKH'ları D-R İzoterm Grafikleri

EK-12



Mg-Al ÇKH'ları D-R İzoterm Grafikleri

EK-13

Fosforik asidin iyonlaşma dengesi, iyonlaşma sabitleri ve pH değerleri

İyonlaşma Dengeleri	İyonlaşma Sabiti	pH değeri
$H_3PO_4 + H_2O \leftrightarrow H_2PO_4^- + H_3O^+$	$K_{a1}=7,1 \times 10^{-3}$	2,15
$H_2PO_4^- + H_2O \leftrightarrow HPO_4^{2-} + H_3O^+$	$K_{a2}=6,3 \times 10^{-8}$	7,2
$HPO_4^{2-} + H_2O \leftrightarrow PO_4^{3-} + H_3O^+$	$K_{a3}=4,2 \times 10^{-13}$	12,38