

NANOPARTİKÜL TUTTURULMUŞ AKTİF KARBON İLE ORTAM HAVASINDA UÇUCU ORGANİK BİLEŞİK GİDERİMİNİN DEĞERLENDİRİLMESİ

Bihter OLGUN^{1(*)}, Ayça ERDEM¹, Meltem ASİLTÜRK², Güray DOĞAN¹

¹Akdeniz Üniversitesi Mühendislik Fakültesi, Çevre Mühendisliği Bölümü, Konyaaltı/Antalya

²Akdeniz Üniversitesi Mühendislik Fakültesi, Malzeme Bilimi ve Mühendisliği Bölümü, Konyaaltı/Antalya

ÖZET

Nanopartiküllerin son 10 yıllık süreçte hemen her alanda kullanım hızı artış göstermektedir. Nanopartiküllerin özellikle bazı kirletici maddeleri oksitleyerek giderimi konusundaki başarısı sebebiyle su arıtma tesislerinde uzun yıllardır kullanılmaktadır. Aktif karbon ise özellikle uçucu organik bileşikler gibi kirleticilerin kaynaktan emisyonunu engellemek için ya da ortam havasında bulunanları belirli bir süre tutmak için kullanılan bir malzemedir. Aktif karbon ile nanopartiküller bir süredir birlikte çeşitli laboratuvar ortamlarında kirletici konsantrasyonunu giderimi çalışmalarında kullanılmaktadırlar. Bu çalışmada ise geçmişte gerçekleştirilen çalışmalar ışığında aktif karbona tutturulmuş nanopartiküllerin ortam havasındaki uçucu organik bileşik giderimine olan katkısı incelenecek ve kullanım alanları irdelenecektir.

ANAHTAR SÖZCÜKLER

Nanopartikül, Aktif karbon, Uçucu organik bileşikler, Ortam havası

ABSTRACT

The usage of nanoparticles has increased in almost every field in the last decade. Nanoparticles have been used in water treatment plants due to the success of the removal of certain pollutants by oxidizing them. Activated carbon is a material used to inhibit emissions, especially volatile organic compounds (VOCs), from the pollutant source or to keep those in the ambient air for a certain period. Activated carbon and nanoparticles are used together to investigate pollutant concentration removal in various laboratory environments. In this study, in the light of past studies, the contribution of fixed nanoparticles in activated carbon will be investigated regarding the removal of VOCs in the ambient air and their application areas will be studied.

KEYWORDS

Nanoparticle, Activated carbon, Volatile organic compounds, Ambient air

(*) bihteerolgun@gmail.com

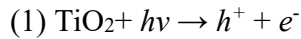
1. GİRİŞ

Uçucu organik bileşikler (UOB), atmosferik fotokimyasal reaksiyonlara katılan karbon monoksit, karbondioksit, karbonik asit, metalik karbürler veya karbonatlar ve amonyum karbonat hariç olmak üzere, EPA tarafından ihmal edilebilir fotokimyasal reaktifliğe sahip olduğu belirtilen herhangi bir karbon bileşiği anlamına gelir (USEPA). Sayısal olarak verilen tanımda uçucu organik bileşiklerin 25°C’de 10 Pa buhar basıncından daha yüksek buhar basıncında 15 veya daha az karbon atomuna sahip organik bileşikler olduğu belirtilmektedir(Koppman, 2007). Uçucu organik bileşiklerin farklı kaynakları bulunmaktadır. Dünya genelinde uçucu organik bileşik emisyonlarının 1347 milyon ton/yıl biyogenik kaynaklardan, 462 milyon ton/yıl da antropojenik kaynaklardan kaynaklandığı tahmin edilmektedir(Badajbo vd., 2007). Atmosferik Uçucu organik bileşiklerin antropojenik kaynakları; ulaşım için fosil yakıtların kullanımı, tüketim mallarının üretimi ve çeşitli endüstriyel proseslerdir(Koppman, 2007). Uçucu organik bileşiklerin doğal kaynakları ise; ağaçlar, bitkiler, vahşi hayvanlar, doğal orman yangınları ve bataklıklardaki anaerobik proseslerdir(Derwent, 1995). Çeşitli yollardan atmosfere salınan uçucu organik bileşiklerin çevre ve insan sağlığına birçok etkisi mevcuttur. Kapalı alanlardaki uçucu organik bileşikler için endişe konusu maruz kalındığında insan sağlığını olumsuz yönde etkilemesidir. Herhangi bir kapalı ortamda, olası bir uçucu organik bileşik kaynağı tüketici ve ticari ürünler, boya ve bunlarla ilgili malzemeler, yapıştırıcılar, döşeme malzemeleri, inşaat malzemeleri, yanma malzemeleri ve aletlerdir (Guo vd., 2000; Guo ve Murray, 2000, 2001). Uçucu organik bileşikler arasında taşıdıkları sağlık riskleri nedeniyle en fazla dikkat çekenler; benzen, toluen, etilbenzen, ksilen ve stiren olmaktadır (Lee vd., 2001). Hong Kong’da Guo ve arkadaşları (2004) farklı iç mekanlardaki günlük faaliyetler sırasında aşçıların ve gıda tedarikçileri, ofis çalışanları, ev hanımı ve çocuklarının, kapalı mekanlardaki uçucu organik bileşiklerle maruz kaldıkları yaşam boyu kanser riskleri değerlendirmiştir. En yüksek kanser riski grubu ev hanımları için olduğu belirlenmiş bunu gıda tedarikçileri, ofis çalışanları ve klimalı bir ortamdaki öğrenciler grubu izlemiştir. Uçucu organik bileşiklerin insan sağlığı üzerindeki etkilerini analiz etmek için Melhave ve arkadaşları (1985) tarafından yapılan çalışmada 62 sağlıklı insan denekten oluşan bir grup 2,75 saat boyunca kapalı hava kirleticileri olarak bilinen 22 uçucu organik bileşiğin karışımına maruz bırakılmıştır. Yapılan çalışma sonucunda genel hava kalitesi, koku, konsantre olma ve mukoza tahrişi ile ilgili sorular için maruz kalmanın önemli bir etkisi bulunmuştur. Uçucu organik bileşikler stratosfere ulaşmak için yeterince kararlıdır ve klor veya brom sübstitüentleri içeriyorsa, stratosferik fotoliz ve hidroksil radikal imha süreçleri ile aktif ozonu tahrip eden zincir taşıyıcıların salınmasına ve stratosferik ozon tabakasının tükenmesine ve Antarktika’da ‘ozon deliği’ oluşumunun daha fazla teşvik edilmesine neden olabilir (Derwent, 1995). Troposferde bulunan uçucu organik bileşik emisyonu güneş ışığı ve ortamdaki azot oksitler ile reaksiyona girerek ozon oluşumuna neden olur. Özellikle yüksek güneş ışığı altında uçucu organik bileşikler fotokatalitik olarak ayrışır ve nitrojenin daha düşük oksitleri ile reaksiyona girerek aldehit ve nitrojenin daha yüksek oksijenli ürünlerini verir. Daha ileri güneş ışınlarının daha sonradan ortaya çıkan etkileri nitrojenin düşük oksitlerinin bozulmasına ve ozon oluşumuna ve dolayısıyla ozon seviyesinin artmasına neden olur. Bu proses güneş ışığı altında ve daha fazla UOB olduğu takdirde sürekli olarak devam eder(Bayır,2013). Uzun ömürlü uçucu organik bileşikler troposferde birikir ve bu bileşiklerden herhangi biri kızılıötesi ışınımı absorbe ederek sera etkisine katkıda bulunabilir. Aynı zamanda yüksek molekül ağırlıklı organik bileşiklerin bazıları, sınır katmandaki oksidasyon ve uzaklaştırma süreçlerini atlarmaya yetecek kadar ısrarcıdır ve yağmurla uzaklaştırılmadan önce büyük mesafelere taşınabilir (Derwent, 1995). Çevresel olarak bakıldığında uçucu organik bileşik emisyonlarının kontrolü büyük önem arz etmektedir. UOB emisyonlarının

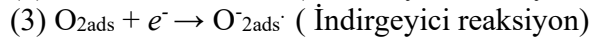
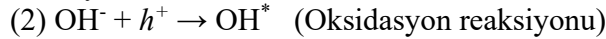
kontrolü için birçok teknik geliştirilmiştir. Bu teknikler; (i) proses ve ekipman modifikasyonu, (ii) kontrol teknikleri ekleme olarak iki sınıfa ayrılmıştır. Birinci grupta, UOB emisyonlarının kontrolü, proses ekipmanı, hammadde veya proses değişikliği değiştirilerek sağlanırken, diğer sınıfta emisyonların düzenlenmesi için ilave bir kontrol metodu uygulanmaktadır. İlave kontrol teknikleri yıkım ve geri kazanım olarak ikiye ayrılmaktadır. Yıkım aşamasında uçucu organik bileşikler, termal ve katalitik oksidasyon gibi farklı oksidasyon tipleri ve aerobik koşullar altında UOB'lerin mikroplar tarafından sindirilmesi (Biyofiltrasyon) ile giderilir. Geri kazanım aşamasında ise uçucu organik bileşik emisyonlarının giderimi yoğunlaştırma, absorpsiyon, adsorpsiyon ve membran ayırma işlemleri ile yapılır (Khan ve Groshal, 2000). Bu çalışmada uçucu organik bileşiklerin gideriminde kullanılan katalitik oksidasyon ve adsorpsiyon yöntemleri ile ilgili çalışmalar incelenecektir.

2. FOTOKATALİTİK OKSİDASYON

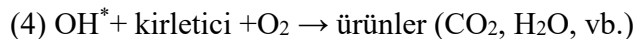
Katalitik oksidasyon sistemleri, uçucu organik bileşikleri doğrudan yakan sistemlerdir. Bu sistemlerde gelen gaz akışı ısıtılır ve katalizör ile kaplanmış bir destek yapısı içinden geçirilir. Katalizör sistemleri 1.000 ila 100.000 cfm kapasite ve UOB konsantrasyonu 100 ila 2.000 ppm aralığında olacak şekilde tasarlanabilir (Khan ve Groshal, 2000). Katalitik sistem, düşük konsantrasyonlu işlemler veya döngüsel olarak çalışan işlemler için çok uygundur. Genellikle akış oranlarının ve UOB içeriğinin değişken olduğu havalandırma kontrolleri için kullanılırlar (Patkar ve Laznow, 1992; Ruddy ve Carroll, 1993). Geleneksel teknolojilere kıyasla birtakım avantajlar sunan alternatif bir giderim teknolojisi, heterojen fotokatalitik oksidasyondur (PCO). Çevresel kirleticilerin fotokatalitik bozunması son otuz yıldır incelenmiştir. Bununla birlikte daha önceki çalışmalar atıksu arıtımını ele almıştır. Bu teknoloji, ofis binalarında, fabrikalarda, evlerde, arabalarda ve uzay araçlarında hava arıtımı için potansiyel olarak uygulanabileceğinden, havadaki organik kirleticileri gidermek için son zamanlarda önemli derecede ilgi görmüştür (Zhao ve Yang, 2003). Fotokatalitik oksidasyon reaksiyonunda, fotokatalistler olarak saf veya katkılı metal oksit yarı iletkenleri (örneğin TiO_2 , ZnO , CdS , $Fe(III)$ depolanmış TiO_2) yaygın olarak kullanılır. Hava veya oksijenin varlığında UV ışınlarına maruz bırakılmış TiO_2 birçok organik kirleticiyi tamamen yok edebilir (Zhao ve Yang, 2003). UV ışığı ile TiO_2 'in aktivasyonu şu şekilde yazılabilir:



Bu reaksiyonda h^+ ve e^- güçlü oksitleyici ve indirgeyici ajanlardır. Oksitleyici ve indirgeyici reaksiyonlar:



Organik bileşiklerin parçalanmasında, adsorbe edilen suyun veya adsorbe edilmiş OH^- 'in oksidasyonundan gelen hidroksil radikali (OH^*) birincil oksidandır. Tam bir fotokatalitik oksidasyon reaksiyonu için, final reaksiyonların ürünleri CO_2 ve H_2O 'dur.



Yapılan çalışmalarda TiO_2 fotokatalizörü yaygın olarak kullanılmaktadır. Bununla birlikte uçucu organik bileşiklerin gideriminde çeşitli molar oranlarda katalizör üzerine depolanmış metaller Ag-

TiO₂ (Peerakiatkhajorn vd.,2012), Ln⁺³-TiO₂, Nd⁺³-TiO₂, La⁺³-TiO₂ (Li vd., 2005), kullanılmıştır. Peerakiatkhajorn ve arkadaşları (2012), yaptıkları çalışmada benzen, toluen, etilbenzen ve ksilen (BTEX) gibi bazı tehlikeli hava kirleticilerinin görünür ışık altındaki fotokatalitik yaklaşımını sağlamayı amaçlamışlardır. Çeşitli molar oranlara (0.01, 0.05, 0.1 ve 0.2 mol) sahip gümüş katkılı titanyum dioksit (Ag/TiO₂) ince filmler, sol-jel yöntemi ile sentezlenmiş ve polivinil klorür (PVC) tabakasına daldırılarak kaplanmıştır. Ag/TiO₂ ince filmleri arasında 0,1 Ag/TiO₂ ince filmi, görünür ışık altında gaz BTEX bozunması için en iyi performansı sergilemiştir. Azami bozunma verimi, ksilen % 89, etilbenzen % 86, toluen %83 ve benzen %79 olmuştur. Zou ve arkadaşları (2006) tarafından tolüenin fotokatalitik bozunumu için yapılan çalışmada sol-jel yöntemi kullanılarak TiO₂-SiO₂ esaslı fotokatalistler sentezlenmiş ve iki tip palet, UV-siyah ışık lambası takılmış bir sabit yataklı reaktörde katalizör olarak kullanılmıştır. Deneyler, çok yüksek adsorptif kapasiteye sahip gözenekli fotokatalizörün daha sonraki fotokataliz reaksiyonlarını arttırdığını ve pozitif bir sinerjik etki yarattığını göstermiştir. UV ışınlama ve besleme gazı kesintisiz olduğunda, 20 saatlik bir sürede yaklaşık %25'lik bir giderim verimi elde edilmiştir. Sistem, adsorpsiyon/yenileme modunda tasarlandıktan ve çalıştırıldıktan sonra, yaklaşık %55 daha yüksek giderim verimi elde edilmiştir. Li ve arkadaşları (2005) tarafından yapılan çalışmada La⁺³-TiO₂ ve Nd⁺³-TiO₂ içeren iki tip lantanid iyonu katkılı titanyum dioksit (Ln⁺³-TiO₂) katalizörünün fotokatalitik etkinliği, gaz fazında benzen, toluen, etilbenzen ve ksilenin (BTEX) fotokatalitik bozunum deneylerinde araştırılmıştır. TiO₂ katalizörlerinin, lantanid iyonu katkılı fotokatalitik etkinliği, BTEX giderimini belirgin şekilde arttırılmıştır. %1,2 Ln⁺³-TiO₂ katalizörleri en yüksek fotokatalitik aktiviteyi göstermiştir. Tablo 1'de uçucu organik bileşiklerin nanopartiküller ile giderimi üzerine yapılan çalışmaların bir özeti sunulmuştur.

Tablo 1. Katalizörler İle Yapılan Literatür Çalışmaları Özeti

Katalizör	UOB	Konsantrasyon	Giderim Verimliliği (%)	Reaksiyon sıcaklığı (K)	Referans
TiO ₂ ,	Etilen	140 ⁽¹⁾	95	380	Fu vd., 1996
TiO ₂ /SiO ₂			84		
TiO ₂ /ZrO ₂			84		
TiO ₂ /SiO ₂	Tolüen	30-200 ⁽¹⁾	-	300	Mendez-Roman ve Cardona-Martinez., 1998
TiO ₂	Trikloroetilen	1.58 ⁽¹⁾	-	318	Kim ve Hong., 2002
	Aseton	0.7 ⁽¹⁾			
	Metanol	0.37 ⁽¹⁾			
	Tolüen	0.35 ⁽¹⁾			
Pd-TiO ₂	Tolüen	1200 ⁽²⁾	65	343-413	Belver vd., 2003

⁽¹⁾Ppm, ⁽²⁾Ppmv, ⁽³⁾Ppbv

Tablo 1. Katalizörler İle Yapılan Literatür Çalışmaları Özeti (devamı)

Katalizör	UOB	Konsantrasyon	Giderim Verimliliği (%)	Reaksiyon sıcaklığı (K)	Referans
$Ln^{+3}-TiO_2$	Benzen	23 ⁽³⁾	29.7		Li vd., 2005
	Toluen		58.4		
	Etilbenzen		70.4		
	Ksilen		78.8		
Cu/CeO_2	Tolüen	4000 ⁽²⁾	100	483	Wang vd., 2006
TiO_2/SiO_2	Tolüen	300 ⁽²⁾	55	-	Zou vd., 2006
$CuO-CeO_2$	Asetaldehit	100 ⁽²⁾	100	373	Hu vd., 2008
	Benzen	1000 ⁽²⁾		503	
		5000 ⁽²⁾		513	

⁽¹⁾Ppm, ⁽²⁾Ppmv, ⁽³⁾Ppbv

MnO_x-CeO_2	Etanol	1600(2)	100	473	Delimaris ve Ioannides., 2008
	Tolüen	600(2)			
	Etik asetat	1400(2)			
	Asetik asit	1400(2)			
TiO_2	Etilen, Propilen, Toluen	1000(1)	90	297	Hussain vd., 2011
$Ag-TiO_2$	Benzen, Toluen, Etilbenzen, ksilen	25(1)	89,86,83,79	373	Peerakiatkhajorn vd., 2012.
Mn_3O_4	Etilen	1000(2)	100	533-538	Piumetti vd., 2015
	Propilen	1000(2)			
	Tolüen	1000(2)			
	Karışım	1000(2)			

⁽¹⁾Ppm, ⁽²⁾Ppmv, ⁽³⁾Ppbv

3. AKTİF KARBON ADSORPSİYONU

Adsorpsiyon işlemi, adsorbat ile adsorban arasındaki etkileşime dayalı fiziksel adsorpsiyon ve kimyasal adsorpsiyon olmak üzere iki tipe sınıflandırılır. Fiziksel adsorpsiyon organik moleküller zayıf Van der Waals çekim kuvveti tarafından adsorbanın yüzeyinde ve gözeneklerinde tutulduğunda oluşur (Khan ve Groshal, 2000). Aktif karbon, çok geniş yüzey alanıyla yaygın olarak

kullanılan bir adsorbenttir. Kömür, ahşap ve hindistancevizi kabukları dahil olmak üzere çeşitli temel malzemelerden yapılabilir (Shepherd vd., 2001). Karbon adsorpsiyonu, uçucu organik bileşiklerin emisyon kontrolünde kullanılan çok yaygın bir yöntemdir. Uçucu organik bileşikler giriş havasından karbonun yüzeyine fiziksel adsorpsiyonla tutulur ve uzaklaştırılır. Sistem maksimum akışa ve beklenen konsantrasyona göre boyutlandırılır. (Khan ve Groshal, 2000). Uçucu organik bileşiklerin Aktif karbon adsorpsiyonunda önemli bazı parametreler vardır, bunlar: (i) uçucu organik bileşiklerin kaynama noktası, (ii) kritik sıcaklık, (iii) uçucu organik bileşiklerin kesit alanı ve dipol moment (Chiang vd, 2001), (iv) gazın hacmi, (v) gazın sıcaklığı, basıncı ve bağıl nemi, (vi) uçucu organik bileşiklerin bileşimi ve konsantrasyonları (Khan ve Groshal, 2000), (vii) aktif karbonun dözenek hacmi ve spesifik yüzey alanıdır (Chiang vd, 2001). Gallego ve arkadaşları (2013) gerçek hava örneklerinden uçucu organik bileşiklerin giderimi için ticari olarak elde edilebilen bir hindistan cevizi kabuğu aktif karbon filtrenin performansını değerlendirmişlerdir. Yapılan çalışmada uçucu organik bileşiklerin giderim verimleri % 51±19 - %78±22, %42±16 - %91±18 oranlarında değişmektedir. Cosnier ve arkadaşları (2006) , hindistan cevizi kabuğu aktif karbon üzerinde diklorometan ve trikloroetilen (klorlu UOB) adsorpsiyonunu araştırmıştır. Yapılan çalışmada, buhar aktivasyonu ile hazırlanan hindistancevizi kabuğu aktif karbonun, uçucu organik bileşiklerde yüksek adsorpsiyon kapasitesine sahip olduğunu göstermiştir. Tablo 2' de uçucu organik bileşiklerin aktif karbon adsorpsiyonu ile ilgili literatürde yapılan bazı çalışmaların özeti verilmiştir.

Tablo 2. Aktif Karbon Literatür Çalışmaları Özeti

Aktif Karbon	UOB	Konsantrasyon	Giderim Verimliliği (%)	Reaksiyon sıcaklığı(K)	Referans
Pt+ Karbon	Benzen	1000 ⁽²⁾	100	423	Torres vd., 2010
Pd+ Aktif Karbon	Tolüen	1000 ⁽²⁾	100	673	Bedia vd., 2010
Ticari Aktif Karbon	Metil tert-bütül eter	44.41-104.37 ⁽¹⁾	-	300	Gironi ve Piemonte., 2011
	Sikloheksan	126.10-127.11 ⁽¹⁾			
Hindistan Cevizi Kabuğu Aktif Karbon	Toplam UOB	0.18 ⁽¹⁾	61 - 59	290-306	Gallego vd., 2013

⁽¹⁾Ppm, ⁽²⁾Ppmv

4. NANOPARTİKÜL TUTTURULMUŞ AKTİF KARBON İLE UÇUCU ORGANİK BİLEŞİKLERİN GİDERİMİ

Aktif karbon ile nanopartiküller yapılan çalışmalarda uçucu organik bileşiklerin giderimi için birlikte kullanılmaktadırlar. Aktif karbon üzerine hareketsiz kılınmış nanopartiküller ile uçucu organik bileşiklerin gideriminin arttığı gözlenmiştir. Rezaee ve arkadaşları (2008), badem kabuğu aktif karbon üzerine kaplanmış TiO_2 nanopartikülleri ile gaz halindeki toluenin fotokatalitik ayrışmasını incelemişlerdir. Çalışmada tolüenin oksidasyon oranlarını belirlemek için 4w ve 8w UV lambaları (365 nm'de en yüksek dalga boyu) ile donatılmış bir sabit yataklı reaktör kullanılmıştır. Reaksiyon hızının ışık şiddeti ve katalizörün deaktivasyonu üzerindeki bağımlılığı belirlenmiştir. Sonuçlar UV ışınlamasının yoğunluğunun artmasıyla fotokatalitik sürecin hızının arttığını göstermiş ve UV-A lambaları kullanılarak toluen'in ayrışma oranı 20-450 mg/m^3 arasındaki farklı tolüen konsantrasyonlarında neredeyse %98 olarak bulunmuştur. Toluen'in fotokatalitik bozunumunda TiO_2 ve aktif karbon kullanıldığında bir sinerjik etki gözlemlenmiştir. Bu sinerjik etki, hem katı fazlar arasındaki ortak bir temas ara yüzünün oluşturulması ve hem de aktif karbon üzerinde adsorbe edilen toluen'in, hemen fotokatalitik olarak bozulan TiO_2 'e aktarılmasından kaynaklanmıştır. Geçmişte, kalış süresinin ve su buharının, TiO_2 'i kullanarak ppb seviyelerde kapalı hava kirleticilerin fotodegradasyonunu etkileyen hayati parametrelerden olduğu tespit edilmiştir. Su buharı varlığı, kirletici giderim oranını düşürerek, TiO_2 üzerindeki adsorbsiyon alanları için kirleticiler ile rekabet eder(Ao ve Lee, 2004). Aktif karbona TiO_2 hareketsizleştirilmesi ile yüksek su buharı seviyelerinde bile tatmin edici bir kirletici uzaklaştırma oranı elde edilmiştir. Örneğin Ao ve Lee (2004), yüksek su buharı seviyeleriyle birlikte diğer kirleticilerin varlığının, farklı nem seviyeleri altında fotokatalitik etkinlik üzerinde bir inhibisyon etkisine sahip olabileceğinden eşzamanlı olarak ikili kirleticilerin birlikte enjekte edilerek aktif karbona hareketsizleştirilen TiO_2 'in etkisini incemiştir. Aktif karbona hareketsiz kılınmış olan TiO_2 ve TiO_2 üzerindeki karşılıklı etkilerini araştırmak için, 200 ppb NO, 20 ppb BTEX (benzen, tolüen, etilbenzen, ksilen) ve 200 ppb SO_2 , farklı kalış süresi ve nem seviyeleri altında birlikte enjekte edilmiştir. Sonuçlar, aktif karbon üzerinde TiO_2 kullanımının, hem kirleticinin hem de su buharının TiO_2 üzerindeki rekabet etkisini azalttığını göstermiştir. BTEX ve SO_2 'nin NO dönüşümüne karşı inhibisyon etkisi, sadece TiO_2 ile karşılaştırıldığında TiO_2 'nin aktif karbona hareketsizleştirilmesi durumunda önemli ölçüde düştüğü gözlenmemiştir. Daha uzun ikamet süresince aktif karbona hareketsiz hale getirilen TiO_2 ve TiO_2 arasında önemli bir kirletici uzaklaştırma farkının olmadığını gözlemlenmiştir. Bununla birlikte, değerlendirilen nem seviyelerinde, önemli ölçüde farklı kirletici uzaklaştırma oranı gözlemlenmiştir. Tao ve arkadaşları (2006), TiO_2 /aktif karbon kompozit fotokatalistini nemli hava akımlarından metanol giderimi için kullanmışlardır. 39 ppm'lik bir giriş metanol konsantrasyonunda %40'lık bir uzaklaştırma verimi sağlanmıştır. Yapılan bir çok çalışmada aktif karbon ile birlikte TiO_2 nanopartikülü yaygın olarak kullanılmıştır(Jiang vd., 2011). TiO_2 ile birlikte başka katalizörlerde aktif karbon ile uçucu organik bileşiklerin gideriminde kullanılmıştır. Zabihi ve arkadaşları (2015), bakır oksit katalizörlerinin badem kabuğu esaslı aktif karbon ile havadaki toluen oksidasyonu için bir çalışma yapmışlardır. 150-300°C arasındaki reaksiyon sıcaklıklarında yapılan bakır oksitle desteklenmiş aktif karbon deneylerinde havadaki tolüenin oksidasyonu için kullanılan giriş tolüen konsantrasyonu 5.000-20.000 ppm arasındadır. Tüm deneyler 166 ml/dakika giriş besleme akış hızında ve 1g katalizörde reaktöre yüklenmiştir. Sonuçlar, artan reaksiyon sıcaklığı ile toluen dönüşümünün arttığını göstermiştir. Ayrıca yapılan çalışmada farklı kalsinasyon sıcaklıkları ve 11 farklı yoğunlukta metal yüklemesi yapılan

katalizörlerde Tolüen'in uzaklaştırma verimi karşılaştırılmıştır. 11 deney seti için giderim verimleri sırasıyla 0.76, 0.31, 0.32, 0.27, 0.52, 0.51, 0.50, 0.51, 0.99, 0.99, 0.99 olarak bulunmuştur. Katalizör aktivitesinin hem reaksiyon sıcaklığının artışı hem de metal yüklemesiyle birlikte arttığı gözlemlenmiştir. Uçucu organik bileşiklerin giderimi için literatürde yapılan çalışmalarda birçok nanoparçacık kullanılmıştır. Tablo 3'de aktif karbona tutturulmuş nanopartiküllerle uçucu organik bileşiklerin giderimi ile ilgili yapılan bazı çalışmalar özetlenmiştir.

Tablo 3. Nanopartikül Tutturulmuş Aktif Karbon Literatür Çalışmaları Özeti

Katalizör Bileşimi	UOB	Konsantrasyon	Giderim Verimliliği (%)	Reaksiyon sıcaklığı(K)	Referans
TiO ₂ + Aktif Karbon	Benzen, Toluen, Etilbenzen, ksilen	2100 ⁽²⁾	60	298	Ao ve Lee ., 2003
TiO ₂ + Aktif Karbon	Metanol	39 ⁽¹⁾	40	328	Tao vd., 2006
TiO ₂ + Aktif Karbon	Tolüen	25-400 ⁽¹⁾	98	298	Razae vd., 2008
TiO ₂ + Aktif Karbon	Formaldehit	1 ⁽¹⁾	≥ 70	-	Lu vd., 2010
TiO ₂ + Aktif Karbon	Benzen	12 ⁽⁴⁾	5.56-14.78	273-973	Jiang vd., 2011
Ag+ Aktif Karbon	Tolüen	0.5 ⁽¹⁾	-	297	Pei vd., 2013
TiO ₂ + Aktif Karbon	Propen	100 ⁽²⁾	5 - 60	298	Ouzzine vd., 2014

⁽¹⁾Ppm, ⁽²⁾Ppmv, ⁽³⁾Ppbv, ⁽⁴⁾w/10⁻⁶

CuO + Aktif Karbon	Tolüen	5000-20000 ⁽¹⁾	76-99	523	Zabihi vd., 2015
Pt/CeO ₂ + Aktif Karbon	Etanol, Tolüen	1000 ⁽²⁾	100	453	Abdelouahab-Reddam vd., 2015
Ag + Aktif Karbon	Formaldehit	100, 200, 300, 500, 750, 1000 ⁽¹⁾	-	-	Rengga vd., 2017

⁽¹⁾Ppm, ⁽²⁾Ppmv, ⁽³⁾Ppbv, ⁽⁴⁾w/10⁻⁶

5. SONUÇ VE DEĞERLENDİRME

Uçuşu organik bileşiklerin oksidasyon ve adsorpsiyon ile giderimine dair bir literatür incelemesi yapılmıştır. Literatürde yüksek oksidasyon özelliğine sahip fotokatalizörlerin ve yüksek adsorpsiyon özelliğine sahip olan aktif karbonun uçucu organik bileşiklerin gideriminde oldukça etkili olduğu görülmektedir. TiO_2 , ZnO , CuO , SiO_2 gibi metal oksit ve Ln , Li , Pt , Pd , Ag , Cu gibi metal katalizörler kapalı ve açık ortamdaki uçucu organik bileşiklerin gideriminde başarılı bulunmuştur. Aktif karbon ise uçucu organik bileşiklerin tutulmasında etkili bir malzemedir. Yapılan literatür çalışmalarında kullanılan nanopartikül ile desteklenmiş aktif karbon çeşitlerinin konfigürasyonları uçucu organik bileşiklerin gideriminde sadece nanopartikül veya aktif karbona kıyasla daha fazla giderim sağladığı gözlemlenmiştir.

KAYNAKLAR

- US EPA. Indoor Air Quality (IAQ), Technical Overview of Volatile Organic Compounds, General Definition and Classifications 2017. <https://www.epa.gov/indoor-air-quality-iaq/technical-overview-volatile-organic-compounds>, Erişim Tarihi: 11.10.2017
- Koppmann, R., 2007. Volatile Organic Compounds in the Atmosphere: Blackwell Publishing, Germany, pp 1,33.
- Badjagbo, K., Moore, S., Sauve, S., 2007. Real time continuous monitoring methods for airborne VOCs. *Trends in Analytical Chemistry* 26, 931.
- Derwent, R.G., Harrison, R.M., Hester, R.E., 1995. Sources, distributions, and fates of VOCs in the atmosphere: Royal Society of Chemistry, Cambridge, UK, pp 2,3,5.
- Guo, H., Murray, F., 2000. Characterisation of total volatile organic compound emissions from paints. *Clean Product and Process* 2, 28–36.
- Guo, H., Murray, F., Wilkinson, S., 2000. Evaluation of total volatile organic compound emissions from adhesives based on chamber tests. *Journal of the Air Waste Management Association* 50, 199–206.
- Guo, H., Murray, F., 2001. Determination of total volatile organic compound emissions from furniture polishes. *Clean Products Processes* 3, 42–48.
- Lee, S.C., Lam, S., Kin Fai, H., 2001. Characterization of VOCs, ozone, and PM10 emissions from office equipment in an environmental chamber. *Building and Environment* 36, 837-842.
- Guo, H., Lee, S.C., Chan, L.Y., Li, W.M., 2004. Risk assessment of exposure to volatile organic compounds in different indoor environments. *Environmental Research* 94, 57–66.
- Melhave, L., Bach, B., Pedersen, O. F., 1985. Human Reactions To Low Concentrations Of Volatile Organic Compounds. *Environment International* 12, 167-175.

- Bayır, S., 2013. *Dış Ortam Havasındaki Uçucu Organik Bileşiklerin Uzun Süreli Pasif Örnekleme Yöntemi İle İzlenebilirliğinin Değerlendirilmesi*, Yüksek Lisans Tezi, Gebze İleri teknoloji Enstitüsü Mühendislik ve Fen Bilimleri Enstitüsü, Gebze, Türkiye.
- Khan, I.F., Ghoshal, A.Kr., 2000. Removal of Volatile Organic Compounds from polluted air. *Journal of Loss Prevention in the Process Industries* 13, 527–545.
- Patkar, A. N., Laznow, J., 1992. Hazardous air pollutant control technologies. *Hazmat World* 2, 78.
- Ruddy, E. N., Carroll, L. A., 1993. Select the best VOC control strategy. *Chemical Engineering Progress* 7, 28.
- Zhao, J., Yang, X., 2003. Photocatalytic oxidation for indoor air purification: a literature review. *Building and Environment* 38, 645 – 654.
- Peerakiatkhajorn, P., Chawengkiwanich, C., Onreabroy, W., Chiarakorn, S., 2012. Novel Photocatalytic Ag/TiO₂ Thin Film on Polyvinyl Chloride for gaseous BTEX Treatment. *Materials Science Forum* 712, 133-145.
- Li, F.B., Li, X.Z., Ao, C.H., Lee, S.C., Hou, M.F., 2005. Enhanced photocatalytic degradation of VOCs using Ln³⁺-TiO₂ catalysts for indoor air purification. *Chemosphere* 59, 787–800.
- Zou, L., Luob, Y., Hooper, M., Hu, E., 2006. Removal of VOCs by photocatalysis process using adsorption enhanced TiO₂-SiO₂ catalyst. *Chemical Engineering and Processing* 45, 959–964.
- Shepherd, A., P.E., C.I.H., 2001. Activated Carbon Adsorption For Treatment Of VOC Emissions. *13th Annual EnviroExpo*, May 2001, Boston Massachusetts.
- Chiang, Y., Chiang, P., Chang, E.E., 2001. Effects Of Surface Characteristics Of Activated Carbons On Voc Adsorption. *Journal Of Environmental Engineering* 127,54-62.
- Gallego, E., Roca, F.J., Perales, J.F., Guardino, X., 2013. Experimental evaluation of VOC removal efficiency of a coconut Shell activated carbon filter for indoor air quality enhancement. *Building and Environment* 67, 14-25.
- F, Cosnier., A, Celzard., G, Furdin., D, Bégin., J.F. Marêché., 2006. Influence of water on the dynamic adsorption of chlorinated VOCs on active carbon: Relative humidity of the gas phase versus pre-adsorbed water. *Adsorption Science and Technology* 24,215–228.
- Rezaee, A., Pourtaghi, Gh.H., Khavanin, A., Mamooory, R. S., Ghaneian, M.T., Godini, H., 2008. Photocatalytic Decomposition Of Gaseous Toluene By TiO₂ Nanoparticles Coated On Activated Carbon. *Iranian Journal of Environmental Health Science & Engineering* 4, 305-310.

- Ao, C.H., Lee, S.C., 2004. Combination Effect Of Activated Carbon With TiO₂ For The Photodegradation Of Binary Pollutants At Typical Indoor Air Level. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry* 161, 131–140.
- Tao, Y., Wu, C., Mazyck D.W., 2006. Microwave-Assisted Preparation of TiO₂/Activated Carbon Composite Photocatalyst for Removal of Methanol in Humid Air Streams. *Industrial Engineering Chemistry Research* 45, 5110-5116.
- Jiang, Z., Zheng-hong, H., Yong, X., Fei-yu K., 2011. Carbon-Coated TiO₂ Composites For The Photocatalytic Degradation Of Low Concentration Benzene. *New Carbon Materials* 26, 63–70.
- Zabihi, M., Shayegan, J., Fahimirad, M., Khorasheh, F., 2015. Preparation, Characterization And Kinetic Behavior Of Supported Copper Oxide Catalysts On Almond Shell-Based Activated Carbon For Oxidation Of Toluene In Air. *J Porous Mater* 22, 101–118.
- Wang, C.H., Lin, S.S., Chen, C.H., Weng, H.S., 2006. Performance of the supported copper oxide catalysts for the catalytic incineration of aromatic hydrocarbons. *Chemosphere* 64, 503–509.
- Hua, C., Zhu, Q., Jiang, Z., Zhang, Y., Wang, Y., 2008. Preparation and formation mechanism of mesoporous CuO–CeO₂ mixed oxides with excellent catalytic performance for removal of VOCs. *Microporous and Mesoporous Materials* 113, 427–434.
- Delimaris, D., Ioannides, T., 2008. VOC oxidation over MnO_x–CeO₂ catalysts prepared by a combustion method. *Applied Catalysis B: Environmental* 84, 303–312.
- Piumetti, M., Fino, D., Russo, N., 2015. Mesoporous manganese oxides prepared by solution combustionsynthesis as catalysts for the total oxidation of VOCs. *Applied Catalysis B: Environmental* 163, 277–287.
- Belver, C., López-Muñozb, M.J., Coronado, M.J., Soria, J., 2003. Palladium enhanced resistance to deactivation of titanium dioxide during the photocatalytic oxidation of toluene vapors. *Environmental* 46, 497–509.
- Fu, X.Z., Clark, L.A., Yang, Q., Anderson, M.A., 1996a. Enhanced photocatalytic performance of titania-based binary metal oxides: TiO₂/SiO₂ and TiO₂/ZrO₂. *Environmental Science & Technology* 30, 647–653.
- Mendez-Roman, R., Cardona-Martinez, N., 1998. Relationship between the formation of surface species and catalyst deactivation during the gas-phase photocatalytic oxidation of toluene. *Catalysis Today* 40, 353–365.

- Kim, S.B., Hong, S.C., 2002. Kinetic study for photocatalytic degradation of volatile organic compounds in air using thin film TiO₂ photocatalyst. *Applied Catalysis B: Environmental* 35, 305–315.
- Hussain, M., Russoa, N., Saraccaa, G., 2011. Photocatalytic abatement of VOCs by novel optimized TiO₂ nanoparticles. *Chemical Engineering Journal* 166, 138–149.
- Gironi, F., Piemonte, V., 2011. VOCs removal from dilute vapour streams by adsorption onto activated carbon. *Chemical Engineering Journal* 172, 671– 677.
- Morales-Torres, S., Maldonado-Hódar, F.J., Pérez-Cadenas, A.F., Carrasco-Marín, F., 2010. Design of low-temperature Pt-carbon combustioncatalysts for VOC's treatments. *Journal of Hazardous Materials* 183, 814–822.
- Bedia,J., Rosas, J.M., Rodri'guez-Mirasol, J., Cordero, T., 2010. Pd supported on mesoporous activated carbons with high oxidation resistance as catalysts for toluene oxidation. *Applied Catalysis B: Environmental* 94, 8–18.
- Abdelouahab-Reddama, Z., El Mail, R., Colomaa, F Sepúlveda-Escribanoa, A., 2015. Platinum supported on highly-dispersed EE on activated carbon for the total oxidation of VOCs. *Applied Catalysis A: General* 494, 87–94.
- Pei, L., Zhou, J., Zhang, L., 2013. Preparation and properties of Ag-coated activated carbon nanocomposites for indoor air quality control. *Building and Environment* 63, 108-113.
- Ao, C.H., Lee, S.C., 2003. Enhancement effect of TiO₂ immobilized on activated carbon filter for the photodegradation of pollutants at typical indoor air level. *Applied Catalysis B: Environmental* 44, 191–205.
- Ouzzine, M., Romero-Anaya, A.J., Lillo-Ro'denas, M.A., Linares-Solano, A., 2014. Spherical activated carbon as an enhanced support for TiO₂/AC photocatalysts. *Carbon* 67, 104 –118.
- Rengga, W.D.P., Chafidz, A., Sudibandriyo, M., Nasikin, M., Abasaheed, A.E., 2017. Silver nano-particles deposited on bamboo-based activated carbon for removal of formaldehyde. *Journal of Environmental Chemical Engineering* 5, 1657–1665.