

**MİKROBİYAL SELÜLOZUN BOYA GİDERİMİNDE
KULLANIMININ ARAŞTIRILMASI**

**INVESTIGATION ON THE USE OF MICROBIAL
CELLULOSE FOR DYE DECOLORIZATION**

MERİÇ BİRBEN

PROF. DR. İŞİL SEYİS BİLKAY
Tez Danışmanı

Hacettepe Üniversitesi
Lisansüstü Eğitim-Öğretim ve Sınav Yönetmeliğinin
Biyoloji Anabilim Dalı için Öngördüğü
YÜKSEK LİSANS TEZİ olarak hazırlanmıştır.

2019

MERİÇ BİRBEN'İN hazırladığı "MİKROBİYAL SELÜLOZUN BOYA GİDERİMİNDE KULLANIMININ ARAŞTIRILMASI" adlı bu çalışma aşağıdaki jüri tarafından BİYOLOJİ ANABİLİM DALI'nda YÜKSEK LİSANS TEZİ olarak kabul edilmiştir.

Prof. Dr. Sumru ÇITAK

Başkan

.....


Prof. Dr. Işıl SEYİS BİLKAY

Danışman

.....


Prof. Dr. Nilüfer CİHANGİR

Üye

.....


Prof. Dr. Aysun ERGENE

Üye

.....


Prof. Dr. Hikmet KATIRCIOĞLU

Üye

.....


Bu tez Hacettepe Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü tarafından YÜKSEK LİSANS TEZİ olarak / / tarihinde onaylanmıştır.

Prof. Dr. Menemşe GÜMÜŞDERELİOĞLU

Fen Bilimleri Enstitüsü Müdürü

ETİK

Hacettepe Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, tez yazım kurallarına uygun olarak hazırladığım bu tez çalışmada,

- tez içindeki bütün bilgi ve belgeleri akademik kurallar çerçevesinde elde ettiğimi,
- görsel, işitsel ve yazılı tüm bilgi ve sonuçları bilimsel ahlak kurallarına uygun olarak sunduğumu,
- başkalarının eserlerinden yararlanması durumunda ilgili eserlere bilimsel normlara uygun olarak atıfta bulunduğumu,
- atıfta bulunduğum eserlerin tümünü kaynak olarak gösterdiğimi,
- kullanılan verilerde herhangi bir değişiklik yapmadığımı,
- ve bu tezin herhangi bir bölümünü bu üniversite veya başka bir üniversitede başka bir tez çalışması olarak sunmadığımı

beyan ederim.

01 / 07 / 2019



MERİÇ BİRBEN

YAYINLANMA FİKRİ MÜLKİYET HAKLARI BEYANI

Enstitü tarafından onaylanan lisansüstü tezimin/raporumun tamamını veya herhangi bir kısmını, basılı (kağıt) ve elektronik formatta arşivleme ve aşağıda verilen koşullarla kullanıma açma iznini Hacettepe Üniversitesine verdiğimi bildiririm. Bu izinle üniversiteye verilen kullanım hakları dışındaki tüm fikri mülkiyet haklarım bende kalacak, tezimin tamamının ya da bir bölümünün gelecekteki çalışmalarda (makale, kitap, lisans ve patent vb.) kullanım hakları bana ait olacaktır.

Tezin kendi orijinal çalışmam olduğunu, başkalarının haklarını ihlal etmediğimi ve tezimin tek yetkili sahibi olduğumu beyan ve taahhüt ederim. Tezimde yer alan telif hakkı bulunan ve sahiplerinden yazılı izin alınarak kullanması zorunlu metinlerin yazılı izin alarak kullandığımı ve istenildiğinde suretlerini üniversiteye teslim etmeyi taahhüt ederim.

Yükseköğretim Kurulu tarafından yayınlanan "**Lisansüstü Tezlerin Elektronik Ortamda Toplanması, Düzenlenmesi ve Erişime Açılmasına İlişkin Yönerge**" kapsamında tezim aşağıda belirtilen koşullar haricince YÖK Ulusal Tez Merkezi / H. Ü. Kütüphaneleri Açık Erişim Sisteminde erişime açılır.

- Enstitü / Fakülte yönetim kurulu kararı ile tezimin erişime açılması mezuniyet tarihimden itibaren 2 yıl ertelenmiştir.
- Enstitü / Fakülte yönetim kurulu gerekçeli kararı ile tezimin erişime açılması mezuniyet tarihimden itibaren ay ertelenmiştir.
- Tezim ile ilgili gizlilik kararı verilmiştir.

01 / 07 / 2019



MERİÇ BİRBEN

ÖZET

MİKROBİYAL SELÜLOZUN BOYA GİDERİMİNDE KULLANIMININ ARAŞTIRILMASI

Meriç BİRBEN

Yüksek Lisans, Biyoloji Bölümü

Tez Danışmanı: Prof. Dr. Işıl SEYİS BİLKAY

Haziran 2019, 85 sayfa

Bu çalışmada, Kombucha çayında bulunan mikroorganizmaların izole edilerek tanımlanması, Kombucha kültürü ile mikrobiyal selüloz üretimi, elde edilen selülozun karakterizasyonu ve bu mikrobiyal selülozun çeşitli boyaların gideriminde kullanımı amaçlandı. Selüloz üreten bakteri olan *Komagataeibacter saccharivorans* LN886705 ile birlikte aynı cinse ait olan *Brettanomyces anomalus* KY103303 ve *Brettanomyces bruxellensis* MH393498 mayaları Kombucha karışık kültüründen izole edildi. Kombucha karışık kültürü kullanılarak siyah çay ortamında mikrobiyal selüloz üretimi yapıldı. Üretilen mikrobiyal selüloz, SEM (Taramalı Elektron Mikroskopu) görüntüsü ve FTIR (Fourier Dönüşümlü Kızılötesi Spektroskopisi), TGA (Termogravimetrik Analiz), XRD (X-Işını Difraksiyon) analizleri ile değerlendirildi. Elde edilen mikrobiyal selüloz ile Malahit Yeşilli, Bromfenol Mavisi, Bismark Kahverengisi Y, Oranj G, Reaktif Mavi 221, Akridin Turuncusu, Trifan Mavisi, Reaktif Yeşil 19 ve Indigo Karmin boyar maddelerinin giderimleri araştırıldı. En yüksek boya giderimi Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu boyalarında görüldü. Çalışmamızın devamında adsorban madde olan mikrobiyal selüloz ile Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu boyalarının giderimine önemli çevresel faktörler olan başlangıç pH'sının, adsorban madde miktarının, boya konsantrasyonunun ve temas süresinin etkileri saptandı ve boya giderimi için uygun koşullar belirlendi. Anyonik

bir boya olan Trifan Mavisi boyasının mikrobiyal selüloz ile gideriminin en fazla pH 4'de, 50 ppm konsantrasyonda ve %2 adsorban madde miktarı ile olduğu tespit edildi. Katyonik bir boya olan Akridin Turuncu boyasının gideriminin ise pH 10 değerinde, 75 ppm boya konsantrasyonunda ve %1,5 adsorban madde miktarı ile olduğu belirlendi. Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu boyalarının mikrobiyal selüloz ile giderim oranlarının sırasıyla yarım saatte %75 ve %79, bir saatte %89 ve %80 ve 24 saatte %99 ve %93 olduğu belirlendi. Mikrobiyal selülozun kısa sürede boyar maddelerin büyük kısmını giderdiği görüldü. 24 saatlik inkübasyon sonucunda Trifan Mavisi boyasının mikrobiyal selüloz kullanılarak pH 3 ile 8 arasındaki değerlerde %94'ün üzerinde giderildiği, Akridin Turuncusu boyasının ise pH 7 ile 11 arasındaki değerlerde %90'nın üzerinde giderildiği tespit edildi. %0,5 gibi düşük miktarda mikrobiyal selüloz kullanımı ile 4 saat sonunda her iki boya için %90'a varan giderim olduğu, selüloz miktarında artış ile bu oranın daha da yükseldiği belirlendi. Ek olarak, 150 ppm gibi yüksek konsantrasyonlarda Trifan Mavisi içeren ortamlarda 24 saat sonunda %94'lük giderim oranına, aynı koşullarda Akridin Turuncusu içeren ortamda ise %80'lik giderim oranına ulaşıldı. Elde edilen sonuçlar, Kombucha kültürünün çay besiyerinde düşük maliyetli mikrobiyal selüloz üretimi için uygun olduğunu ve üretilen mikrobiyal selülozun Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu boyalarının giderimini etkili bir şekilde gerçekleştirdiğini göstermiştir.

Anahtar Kelimeler: Mikrobiyal Selüloz, Kombucha Kültürü, Boya Giderimi, Trifan Mavisi, Akridin Turuncusu

ABSTRACT

INVESTIGATION ON THE USE OF MICROBIAL CELLULOSE FOR DYE DECOLORIZATION

Meriç Birben

Master of Science, Department of Biology

Supervisor: Prof. Dr. Işıl SEYİS BİLKAY

June 2019, 85 pages

In this study, isolation of microorganisms in Kombucha tea and their identification, production of microbial cellulose with Kombucha culture, characterization of the cellulose that was obtained and use of microbial cellulose for removal of various dyes were aimed. *Komagataeibacter saccharivorans* LN886705 which is cellulose-producing bacterium, *Brettanomyces anomalus* KY103303 and *Brettanomyces bruxellensis* MH393498, both belonging to the same genus, were isolated from Kombucha mixed culture. Microbial cellulose production was performed in a black tea medium using the Kombucha mixed culture. The microbial cellulose produced was evaluated by SEM (Scanning Electron Microscopy) image and FTIR (Fourier Transform Infrared Spectroscopy), TGA (Thermogravimetric analysis), XRD (X-ray diffraction analysis) analyzes. The removal rates of Malachite Green, Bromophenol Blue, Bismark Brown Y, Orange G, Reactive Blue 221, Acridine Orange, Trypan Blue, Reactive Green 19, and Indigo Carmine dyestuffs were investigated with the produced microbial cellulose. The highest dye removal was observed in Trypan Blue and Acridine Orange dye. Later in our study, the effects of the initial pH, adsorbent dosage, dye concentration and contact time, which are important environmental factors for the removal of Trypan Blue and Acridine Orange dyes with adsorbent microbial cellulose, were determined and suitable conditions were identified for dye

removal. It was established that Trypan Blue dye, an anionic dye, had the highest removal with microbial cellulose at pH 4, 50 ppm concentration and 2% adsorbent dosage. The removal rates of Trifan Blue and Acridine Orange dyes with microbial cellulose were 75% and 79% in half an hour, 89% and 80% in one hour and 99% and 93% in 24 hours, respectively. It was observed that microbial cellulose removed a large amount of dyes in a short amount of time. After 24 hours of incubation, 94% of Trypan Blue dye was removed by using microbial cellulose at pH 3 to 8, and Acridine Orange dye was removed above 90% at pH 7 to 11. After 4 hours with microbial cellulose use as low as 0.5%, it was determined that the ratio of dye decolorization was up to 90% for both dyes and this ratio increased with the increase in the amount of cellulose. In addition, the removal rate of 94% at the end of 24 hours was reached in the environment containing Trypan Blue in high concentrations such as 150 ppm, the rate of 80% was reached in the environment containing Acridine Orange under the same conditions. The results demonstrate that the Kombucha culture is suitable for low-cost microbial cellulose production in tea culture and that the microbial cellulose produced removes Trypan Blue and Acridine Orange dyes effectively.

Keywords: Microbial Cellulose, Kombucha Culture, Dye Removal, Trypan Blue, Acridine Orange

TEŞEKKÜR

Lisans ve yüksek lisans öğrenimim boyunca bilgi birikimini bana aktaran, tez çalışmalarım sırasında beni yönlendirerek her açıdan bana destek olan değerli hocam ve tez danışmanım sayın Prof. Dr. Işıl SEYİS BİLKAY'a,

Lisans ve yüksek lisans öğrenimim boyunca engin bilgi ve deneyimleri ile yanımda olan değerli hocalarım Prof. Dr. Nilüfer CİHANGİR ve Prof. Dr. Nilüfer AKSÖZ'e,

Tez çalışmam boyunca bilgi, tecrübe ve manevi destekleri ile her an yanımda olan Dr. Hande ÜRKMEZ hocama,

Varlıkları ve manevi destekleri ile her anımda yanımda olan hocalarım Dr. Gülcan ŞAHAL ÖZBAKIR, Dr. Sezen BİLEN ÖZYÜREK, Kübra ERKAN TÜRKMEN, Hasan AKYIL ve Hamideh HAMMAMCHI'ye,

Bu tezin tamamlanmasında FHD-2017-16379 numaralı proje ile maddi destek sağlayan Hacettepe Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Koordinasyon Birimi'ne

Deneylerim sırasında bana büyük yardımları dokunan çalışma arkadaşım Cansu SEVİM'e ve karşılaştığım zorluklarda bana yol göstererek destek olan tüm lisansüstü çalışma arkadaşlarıma,

Hayatımın her anında yanımda olan, maddi ve manevi destekleri ile bu günlere gelmemi sağlayan aileme,

Hayatıma girdiği andan itibaren bana şans getiren, zorlandığım anlarda beni teşvik eden ve yanımda olan arkadaşım Gizem BAYRAM'a

Sonsuz teşekkürlerimi sunarım...

İÇİNDEKİLER

ÖZET	i
ABSTRACT	iii
TEŞEKKÜR.....	v
İÇİNDEKİLER.....	vi
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	ix
ÇİZELGELER DİZİNİ.....	xi
SİMGELER VE KISALTMALAR	xii
1. GİRİŞ	1
2. GENEL BİLGİLER	4
2.1. Selüloz.....	4
2.1.1. Mikrobiyal Selüloz Yapısı ve Özellikleri.....	4
2.1.2. Mikrobiyal Selüloz Üreten Organizmalar	6
2.2. Kombucha Çayı ve Özellikleri.....	9
2.3. Mikrobiyal Selülozun Kullanım Alanları.....	10
2.3.1. Mikrobiyal Selülozun Medikal Alanlarda Kullanımı	10
2.3.2. Kağıt Endüstrisinde Mikrobiyal Selüloz Kullanımı	13
2.3.3. Gıda Endüstrisinde Mikrobiyal Selüloz Kullanımı	15
2.3.4. Mikrobiyal Selülozun Diğer Kullanım Alanları.....	17
2.4. Boyalar	18
2.4.1. Sentetik Boya Çeşitleri	19
2.4.1.1. Boyaların Uygulama Yöntemlerine Göre Sınıflandırılması	19
2.4.1.2. Boyaların Kimyasal Yapılarına Göre Sınıflandırılması	22
2.4.1.3. Boyaların İyon Yüklerine Göre Sınıflandırılması	23
2.4.2. Çalışmada Kullanılan Boyar Maddeler	23
2.5. Boyaların Sucul Ortamlardan Giderimleri	27
2.5.1. Biyolojik Yollarla Boya Giderimi	29
2.5.2. Kimyasal Yollarla Boya Giderimi	31
2.5.3. Fiziksel Yollarla Boya Giderimi.....	32
2.5.3.1. Membran Filtrasyonu.....	32
2.5.3.2. Adsorpsiyon.....	34

3. DENEYSEL ÇALIŞMALAR	36
3.1.Çalışmada Kullanılan Mikroorganizmaların İzolasyonu, Tanımlanması ve Muhafaza Edilmesi	36
3.2.Mikroorganizmaların Ekim ve Üretim Koşulları	36
3.2.1.Zenginleştirme Besiyerine Ekim ve Üretim.....	36
3.2.2.Mikrobiyal Selüloz Üretimi.....	36
3.3.Mikrobiyal Selülozun Karakterizasyonu	37
3.4.Mikrobiyal Selüloz Kullanımı ile Boyaların Gideriminin Araştırılması	37
3.4.1.Trifan Mavisini ve Akridin Turuncusu Boyalarının Gideriminin Belirlenmesi	38
3.5.Mikrobiyal Selüloz ile Trifan Mavisini ve Akridin Turuncusu Boyalarının Gideriminde Farklı Fizyolojik Koşulların Etkisinin Saptanması.....	39
3.5.1.Farklı Başlangıç pH Değerlerinin Mikrobiyal Selüloz ile Trifan Mavisini ve Akridin Turuncusu Boyalarının Giderimine Etkisinin Saptanması.....	39
3.5.2.Farklı Mikrobiyal Selüloz Miktarlarının Trifan Mavisini ve Akridin Turuncusu Boyalarının Giderimine Etkisinin Saptanması	39
3.5.3.Farklı Başlangıç Boya Konsantrasyonlarının Mikrobiyal Selüloz ile Trifan Mavisini ve Akridin Turuncusu Boyalarının Giderimine Etkisinin Saptanması..	40
3.5.4.Farklı Temas Sürelerinin Mikrobiyal Selüloz ile Trifan Mavisini ve Akridin Turuncusu Boyalarının Giderimine Etkisinin Saptanması	40
4. SONUÇLAR VE TARTIŞMA	41
4.1.Çalışmada Kullanılan Mikroorganizmaların İzolasyonu ve Tanımlanması..	41
4.2.Mikrobiyal Selülozun Üretimi ve Karakterizasyonu	45
4.3.Mikrobiyal Selüloz Kullanımı ile Boya Gideriminin Araştırılması	49
4.4.Mikrobiyal Selüloz ile Trifan Mavisini ve Akridin Turuncusu Boyalarının Gideriminde Farklı Fizyolojik Koşulların Etkisinin Saptanması.....	51
4.4.1.Farklı Başlangıç pH Değerlerinin Trifan Mavisini ve Akridin Turuncusu Boyalarının Mikrobiyal Selüloz ile Giderimine Etkisinin Saptanması	52
4.4.2.Farklı Başlangıç Selüloz Miktarlarının Trifan Mavisini ve Akridin Turuncusu Boyalarının Mikrobiyal Selüloz ile Giderimine Etkisinin Saptanması.	55
4.4.3.Farklı Başlangıç Boya Konsantrasyonunun Mikrobiyal Selüloz ile Trifan Mavisini ve Akridin Turuncusu Boyalarının Giderimine Etkisinin Saptanması..	59
4.4.4.Farklı Temas Sürelerinin Trifan Mavisini ve Akridin Turuncusu Boyalarının Mikrobiyal Selüloz ile Giderimi Üzerine Etkisinin Saptanması.....	63

5. YORUM	67
6. KAYNAKLAR	71
EKLER	83
EK 1 – Spektrumlar.....	83
ÖZGEÇMİŞ	85

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 2.1. Selülozun kimyasal yapısı.....	4
Şekil 2.2. Mikrobiyal selüloz fibrillerinin şematik olarak gösterimi.....	5
Şekil 2.3. <i>Acetobacter xylinum</i> bakterileri tarafından sentezlenen selüloz ağının temsili şekli.....	8
Şekil 2.4. <i>Komagataeibacter</i> tarafından gerçekleştirilen selüloz sentezi.....	9
Şekil 2.5. Kombucha çayı.....	10
Şekil 2.6. Yara tedavisinde mikrobiyal selülozun kullanımı.....	11
Şekil 2.7. Diş eti ve diş implantında kullanılan mikrobiyal selüloz.....	11
Şekil 2.8. AgNO ₃ ile modifiye edilmiş mikrobiyal selülozun antibakteriyel aktivitesi.....	12
Şekil 2.9. Mikrobiyal selüloz ile yapay kan damarı eldesi.....	13
Şekil 2.10. Mikrobiyal selüloz ile üretilmiş kağıt.....	14
Şekil 2.11. Mikrobiyal selülozdan elde edilen market poşeti.....	14
Şekil 2.12. Nata de Coco.....	15
Şekil 2.13. Kombucha çayı.....	16
Şekil 2.14. Dondurmada yağ yerine kullanılan mikrobiyal selüloz fiberleri.....	16
Şekil 2.15. Mikrobiyal selülozun diyafram olarak kullanılması.....	17
Şekil 2.16. Mikrobiyal selüloz ile üretilen bazı tekstil ürünleri.....	17
Şekil 2.17. Reaktif Kırmızı 198.....	19
Şekil 2.18. Direkt Kırmızı 2.....	20
Şekil 2.19. Dispers Kırmızısı 8.....	21
Şekil 2.20. Vat Mavisi 6.....	21
Şekil 2.21. Sudan Siyahı B.....	22
Şekil 2.22. İyonik yüklerine göre boya sınıfları.....	23
Şekil 2.23. Malahit Yeşili boyası.....	24
Şekil 2.24. Bromfenol Mavisi boyası.....	24
Şekil 2.25. Bismark Kahverengisi boyası.....	24
Şekil 2.26. Oranj G boyası.....	25
Şekil 2.27. Reaktif Mavi 221 boyası.....	25
Şekil 2.28. Akridin Turuncusu boyası.....	25
Şekil 2.29. Trifan Mavisi boyası.....	26

Şekil 2.30. Reaktif Yeşili 19 boyası.....	26
Şekil 2.31. İndigo Karmin boyası.....	27
Şekil 2.32. Geleneksel atıksu arıtım sistemi.....	28
Şekil 3.1. Trifan Mavisi boyası standart eğri grafiği.....	38
Şekil 3.2. Akridin Turuncusu boyası standart eğri grafiği.....	39
Şekil 4.1. <i>Komagataeibacter saccharovorans</i> LN886705.....	42
Şekil 4.2. <i>Brettanomyces bruxellensis</i> MH393498.....	43
Şekil 4.3. <i>Brettanomyces anomalus</i> KY103303.....	44
Şekil 4.4. Çalışma sonucunda üretilen mikrobiyal selüloz.....	45
Şekil 4.5. Mikrobiyal selülozun taramalı elektron mikroskobu görüntüsü.....	46
Şekil 4.6. Mikrobiyal selüloz kristalizasyonunun XRD ile analizi.....	47
Şekil 4.7. Mikrobiyal selülozun Fourier Dönüşümlü Kızılötesi Spektroskopisi (FTIR).....	48
Şekil 4.8. Mikrobiyal selülozun TGA Analizi.....	49
Şekil 4.9. Mikrobiyal selüloz ile çeşitli boyaların gideriminin belirlenmesi.....	50
Şekil 4.10. McIlvane tamponunda hazırlanmış çeşitli boyaların mikrobiyal selüloz ile giderimlerinin belirlenmesi.....	51
Şekil 4.11. Farklı başlangıç pH değerlerinin mikrobiyal selüloz ile Trifan Mavisi boyası giderimi üzerine etkisi.....	54
Şekil 4.12. Farklı başlangıç pH değerlerinin mikrobiyal selüloz ile Akridin Turuncusu boyası giderimi üzerine etkisi.....	54
Şekil 4.13. Farklı mikrobiyal selüloz miktarlarının Trifan Mavisi boyasının mikrobiyal selüloz ile giderimi üzerine etkisi.....	57
Şekil 4.14. Farklı mikrobiyal selüloz miktarlarının Akridin Turuncusu boyasının mikrobiyal selüloz ile giderimi üzerine etkisi.....	58
Şekil 4.15. Başlangıç boya konsantrasyonunun mikrobiyal selüloz ile Trifan Mavisi boyasının giderimi üzerine etkisi.....	61
Şekil 4.16. Başlangıç boya konsantrasyonunun mikrobiyal selüloz ile Akridin Turuncusu boyasının giderimi üzerine etkisi.....	63
Şekil 4.17. Temas süresinin mikrobiyal selüloz ile Trifan Mavisi boyasının giderimi üzerine etkisi.....	65
Şekil 4.18. Temas süresinin mikrobiyal selüloz ile Akridin Turuncusu boyasının giderimi üzerine etkisi.....	66

ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 2.1. Bitkisel selüloz ile mikrobiyal selüloz arasındaki bazı farklar	7
Çizelge 2.2. Uygulama yöntemlerine göre boya türleri	20
Çizelge 2.3. Biyolojik yolla boya giderim yöntemleri	31
Çizelge 2.4. Kimyasal boya giderim yöntemleri	33

SİMGELER VE KISALTMALAR

Simgeler

°C	Santigrat Derece
®	Tescilli
AgNO ₃	Gümüş Nitrat
HCl	Hidroklorik Asit
NaOH	Sodyum Hidroksit
Na ₂ HPO ₄	Disodyum Fosfat
C	Karbon
H	Hidrojen
O	Oksijen
N	Azot

Kısaltmalar

GPa	Gigapaskal
SEM	Taramalı Elektron Mikroskopu
TGA	Termogravimetrik Analiz
FTIR	Fourier Dönüşümlü Kızılötesi Spektroskopisi
XRD	X-Işını Difraksiyonu
UDPG	Üridin Difosfat Glukoz
OD	Optik Dansite
HS	Hestrin – Schramm
PDA	Patates Dekstroz Agar
MYP	Mannitol Yumurta Sarısı Polimiksin
rRNA	Ribozomal RNA
rpm	Dakikada Devir Sayısı
ppm	Millyonda Bir
mm	milimetre
nm	nanometre
gr	Gram
L	Litre
ml	Mililitre

gr/L	Gram/Litre
M	Molar
BS	Bakteriyel Selüloz
MS	Mikrobiyal Selüloz

1. GİRİŞ

Selüloz dünyada en bol bulunan ve endüstride en fazla kullanılan doğal polimerlerden birisi olduğundan çok büyük bir ekonomik öneme sahiptir. Bitkilerin hücre duvarlarının temel yapı taşı olan selüloz, fotosentez yolu ile üretilen glukozların birleştirilmesi ile sentezlenir. Özellikle pamuk ve odunun yapısında fazla miktarda bulunan selüloz, günümüzde büyük oranda bu kaynakların işlenmesi ile endüstriyel boyutlarda elde edilir. Ancak dünyada insan nüfusunun artması ve tarımsal faaliyetlerin sonucunda ormanların daralması ile son yıllarda alternatif yollar kullanılarak selüloz üretme arayışına girilmiştir [1].

Mikrobiyal selüloz kelimesi ilk olarak 1886 yılında, sirke fermantasyonu çalışması sırasında Brown tarafından kullanılmış ve “asetik asit bakterilerinin besiyeri yüzeyinin üst kısmında oluşturduğu beyaz jelatinimsi zar” olarak tanımlamıştır [1]. Daha sonraki yıllarda, başta bakteri türleri olmak üzere çeşitli fungus ve alg türlerinin de selüloz sentezledikleri saptanmış ve mikrobiyal selüloz üretim çalışmaları başlamıştır.

Acetobacter cinsi tarafından sentezlenen mikrobiyal selülozun yapısı bitkisel selüloz ile benzer kimyasal yapılar göstermekte ancak bazı özellikler ile birbirlerinden ayrılmaktadırlar. Bitkiler tarafından sentezlenen selüloz fibrilleri hücre duvarında lignin, pektin ve hemiselüloz ile birlikte bulunur [2]. Bu nedenle bitkisel selülozun kullanımdan önce saflaştırılması gerekmektedir. Bunun için çeşitli kimyasal işlemler uygulanmakta ve bu işlemler maliyeti artırmaktadır. Ancak mikrobiyal selüloz fibrilleri bu yapıları içermez ve üretim sonunda tamamen saf halde selüloz elde edilir. Bunun yanında, ekstraselüler olarak sentezlenen mikrobiyal selüloz, kristallenme ve polimerleşme değerleri bakımından da farklılık göstermektedir. Aynı zamanda yüksek gerilme gücüne ve yüksek su tutma kapasitesine sahiptir. Çözücülerin çoğunda çözünmeyerek yapısını korumakta ve bitkisel selüloz fibrillerinden 100 kat daha ince olması nedeniyle iyi şekil alabilme özelliği göstermektedir [3]. Termal olarak oldukça stabildir [4]. Tüm bu özellikleri mikrobiyal selüloza olan ilginin giderek artmasına neden olmuştur.

Mikrobiyal selüloz, günümüzde biyomedikal, kozmetik, tarım, gıda, elektronik, kağıt endüstrilerinde kullanılmakta, çevresel kirliliklerin giderilmesi çalışmalarında uygulanmakta ve yeni alanlarda kullanımı her geçen gün artmaktadır. Günümüzde mikrobiyal selüloz, yara ve yanık tedavi malzemeleri, ilaç kapsülleme, damar içi, damar dışı, özefagus ve üretra kaplamaları gibi biyomedikal uygulamalarda kullanılmaktadır [5–7]. Mikrobiyal selüloz gıda endüstrisinde de karşımıza çıkmakta ve mikrobiyal selülozdan yapılan yiyecekler yüksek lif içeriği ve yumuşak dokusu nedeniyle Filipinler ile çevre ülkelerde oldukça fazla tüketilmektedir. Jelleştirme ve koyulaştırma özellikleri nedeniyle dondurmalara ve pasta kremalarına katkı maddesi olarak ilave edilmektedir [8]. Literatürde aynı zamanda mikrobiyal selülozun adsorpsiyon kapasitesinin oldukça yüksek olduğu görülmüş ve söz konusu materyalin laboratuvar ölçeğinde yapılan çalışmalarda kullanımı ile, çevre kirleticilerinin kısa sürelerde yüksek verimle ortamdaki uzaklaştırdığı belirlenmiştir. Ancak yapılan çalışmalarda üretimi için sentetik besiyeri kullanımının yaygın olduğu mikrobiyal selülozun, bu alanda ticari olarak kullanılabilmesi için üretim maliyetlerinin en aza indirilmesi gerekmektedir.

Boyalar bir yüzeye uygulandığında onlara renk kazandıran maddeler olarak tanımlanabilir. Sanayileşmenin artması ile birlikte boyar madde sayısı ve çeşidi de hızla artmış, bu maddeler tekstil boyamacılığı, ilaç, gıda, kozmetik, plastik, renkli fotoğrafçılık ve kağıt baskısı endüstrilerinde yaygın olarak kullanılmaya başlanmıştır [9]. Fabrikalarda kullanıldıktan sonra atılan az miktarda boyar madde kalmakta ve fabrika atık suları ile birlikte doğaya bırakılmaktadır. Birçoğu geleneksel arıtma sistemlerinden arıtılmadan geçmekte, sıcaklığa, sülfektanlara ve biyolojik yıkıma dirençli olduklarından doğada giderek artan boyar madde birikimi ortaya çıkmaktadır [10,11]. Sucul ortamlarda neden oldukları estetik problemlerin yanı sıra boyaların varlığı, ışık penetrasyonunu azaltmakta ve sudaki fotosentetik aktivite ve oksijen üretkenliğini düşürmektedir. Bunun yanı sıra boyalar, su sedimentlerinde yaşayan balıklar ve diğer su organizmaları üzerinde birikerek toksik etkilere neden olmaktadır. İnsanlar üzerinde kısa vadede alerjik reaksiyon ve doku tahrişlerine, uzun vadede ise kanserojenik ve mutajenik etkilere yol açmaktadırlar [12]. Bu bağlamda, söz konusu zararlı kimyasal bileşiklerin doğadan hızlı bir şekilde uzaklaştırılmasının etkin şekilde gerçekleştirilmesini adsorpsiyon yoluyla sağlamak mümkündür.

Çalışmamızda kullanılmış olan Kombucha çayı Doğu Avrupa ve Asya'da geleneksel olarak tüketilen fermente siyah çaydır. İçeceğin, antimikrobiyal, antioksidan, antikanserojenik, antidiyabetik özelliklerinin yanı sıra mide ülseri ve yüksek kolesterol tedavilerinde başarılı etkileri görülmüş ve bu nedenle son yıllarda ülkemizde ve tüm dünyada popüler olmuştur [13–16].

Çevresel kirliliği azaltmak için mikrobiyal selülozun uygulanması günümüzde oldukça sınırlıdır ve bu alanda yapılacak araştırmalara ihtiyaç vardır. Çalışmamızda, Kombucha kültüründen mikroorganizmalar izole edildi. Kombucha kültürü içerisinde selüloz üreten bakteri türü ile çayın fermantasyonunu sağlayan maya türleri tanımlandı. Kombucha karışık kültürü ve çay besiyeri kullanılarak mikrobiyal selüloz üretimi gerçekleştirildi ve üretilen selülozun SEM görüntüsü çekirildi, TGA, FTIR ve XRD kimyasal analizleri yaptırıldı. Söz konusu mikrobiyal selüloz kullanımı ile çeşitli boya giderimleri belirlenerek çalışmamızın devamında kullanılmak üzere en verimli boya giderimi sağlanan anyonik ve katyonik olmak üzere iki farklı türden boya (Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu) seçildi. Çevresel faktörlerin adsorpsiyon verimi üzerinde önemli etkilerinin olduğu bilinmektedir. Bu bağlamda, başlangıç pH'sı, adsorbant miktarı, boya konsantrasyonu ve temas süresi çevresel faktörlerinin mikrobiyal selüloz ile Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu boya giderimine etkilerine bakıldı ve optimizasyon işlemleri gerçekleştirildi.

Sonuçta, çalışmamızda mikrobiyal selüloz üretimi için elverişli olduğu bilinen Kombucha çayı kullanıldı ve elde edilen selüloz ile çevreye çeşitli zararları olduğu bilinen boyalar başarılı şekilde giderildi. Anyonik olan Trifan Mavisi ve katyonik olan Akridin Turuncusu boya giderimlerinin buldukları ortamlardan giderimlerinde mikrobiyal selülozun etkili bir adsorbant madde olduğu bulundu. Bunun yanında sağlıklı içecek eldesi de sağlandı.

2. GENEL BİLGİLER

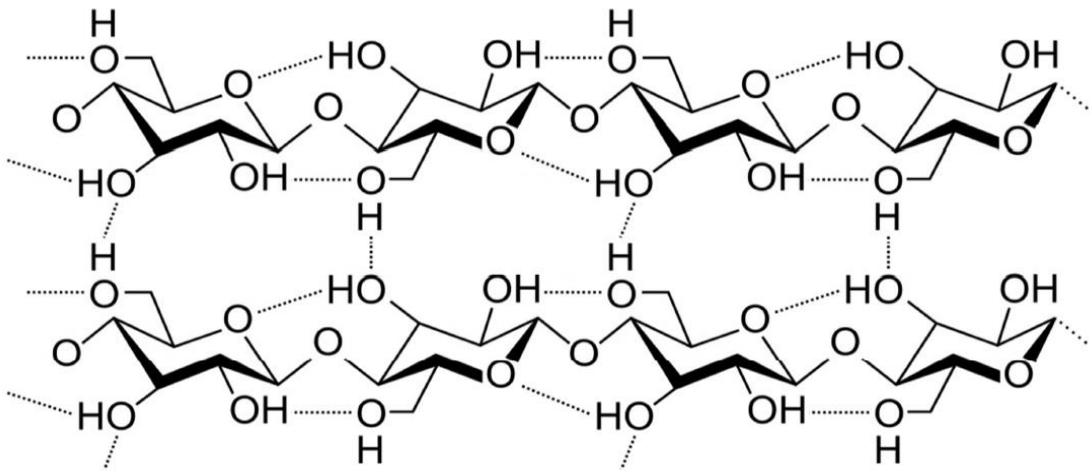
2.1. Selüloz

Günümüzde yenilenebilir ürünlerin geliştirilmesi ve bu ürünler üzerinde yapılan araştırmalar büyük önem kazanmıştır. Bu eğilimi karşılayabilmek için sürdürülebilir kaynaklardan yararlanılması gerekmektedir. Selüloz dünya üzerinde bulunan bol, ucuz ve sürekli olarak oluşturulan polisakkaritlerden birisidir.

Son yıllarda nanomateryal ve nanoteknoloji konularına ilgi giderek artarken, selülozik nanomateryal araştırmalarına da daha fazla destek sağlanmaktadır [17]. Materyali oluşturan fiber yapıların boyutları atomik ölçeğe doğru küçüldükçe malzemelerin özellikleri yeni kabiliyetler ve iyileştirmeler kazanacak şekilde değiştirilmektedir. Bu bağlamda, çok işlevli özelliklere sahip selüloz bazlı ürünlerin geliştirilmesi için yapılan araştırmalar önem kazanmaktadır. Bunlara ilave olarak, ürünün mevcut mekanik özelliklerini geliştirmek için takviye malzemesi olarak kullanımı giderek yaygınlaşmaktadır [18].

2.1.1. Mikrobiyal Selüloz Yapısı ve Özellikleri

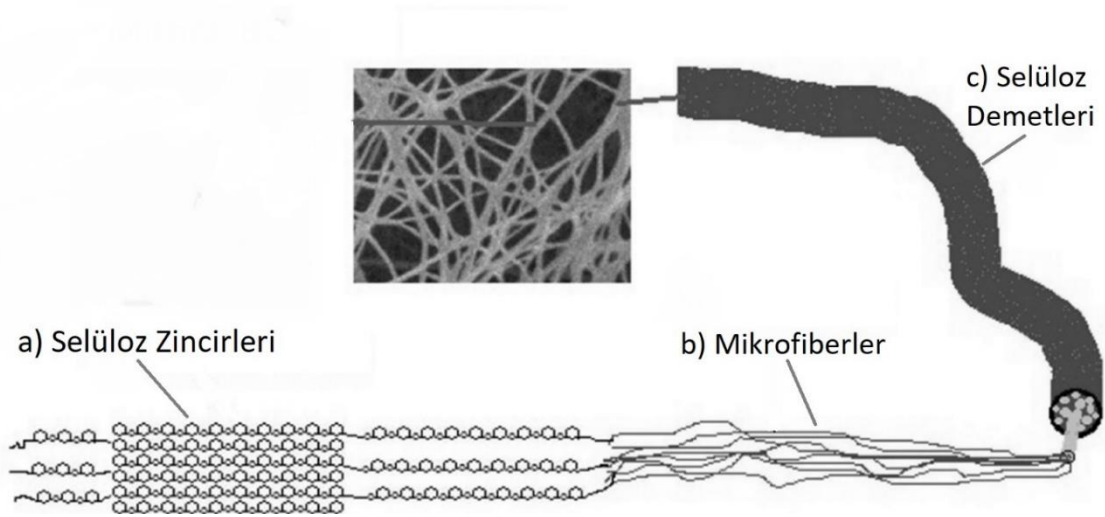
Mikrobiyal selüloz, $(C_6H_{10}O_5)_n$ kimyasal formülüne sahip, $\beta(1\rightarrow4)$ glikozidik bağları ile birbirine bağlanarak düz bir zincir oluşturmuş 3000 veya daha fazla β -D-glukoz biriminden oluşan kompleks bir organik bileşik ve bir homopolimerdir (Şekil 2.1).



Şekil 2.1. Selülozun kimyasal yapısı [26]

İki glukoz molekülünün birbirlerine 180°'lik dönüş açısı yaparak bağlanması ile polimer sentezinin tekrar eden birimleri olan sellobiyoz adlı moleküler yapılar oluşur [19]. Zincirdeki monomer sayısı arttıkça mikrobiyal selülozun moleküler ağırlığı ve polimerizasyon derecesi de artmaktadır [20].

Mikrobiyal selüloz zincirleri toplanarak, yaklaşık 1,5 nm kalınlığındaki alt fibrilleri oluşturur. Mikrobiyal selüloz alt fibrilleri ilk olarak mikrofibrillere ve bunlar da daha sonra demetlere kristalleştirilir (Şekil 2.2). Fibril ve demetlerin boyutları selüloz sentezleyici organizmaya göre değişkenlik göstermektedir. Mikrobiyal selülozu oluşturan fiber ağı hem çalkalamalı inkübasyonda hem statik inkübasyonda rastgele oluşmaktadır [19].



Şekil 2.2. Mikrobiyal selüloz fibrillerinin şematik olarak gösterimi.

Doğada selüloz karasal ve sucul bitkiler tarafından ya da bakteri, fungus, alg ve fitoplankton gibi mikroorganizmalar tarafından sentezlenmektedir. Mikrobiyal selüloz ile bitkisel selüloz β -1,4-glukan yapıda olmaları nedeniyle kimyasal olarak birbirlerine benzerdirler ancak bazı fiziksel özellikleri ile birbirlerinden ayrılmaktadırlar. Mikrobiyal selüloz (MC), bitki selülozuna göre yaklaşık 100 kat daha ince olan, 20-100 nm fiber çaplı, üç boyutlu fiber ağı ürettiği için günümüzde önem kazanmakta ve ilgi odağı olmaktadır. Bakteriyel selüloz %60'ın üzerinde yüksek kristallik indeksine sahiptir ve bu değer bitkisel selüloza oranla oldukça yüksektir [21]. Bitkisel selülozun polimerizasyon derecesi 13000-14000 arasında iken bakteriyel selülozun polimerizasyon derecesi 2000-8000 arasındadır [22]. Bakteriyel selülozun aynı zamanda yüksek gerilme gücü, çözücülerin çoğunda

çözünmeme ve iyi şekil alabilme özelliklerine sahip olduğu da bilinmektedir. Mikrobiyal selülozun tipik Young modül değeri 15 ile 35 GPa, gerilme kuvveti ise 200 ile 300 GPa arasındadır. Bu değerler polipropilen (PP) ile karşılaştırılacak olursa, PP'nin 30-45 GPa arasında gerilme kuvveti ve 1-1,5 Young modülü değeri vardır [23]. Su tutma kapasitesi ise kendi ağırlığının 100 katına ulaşmaktadır ve bu oran bitkisel selüloza göre 300 kat daha fazladır [3,24]. Mikrobiyal selüloz, bitkisel selülozun yapısında bulunan lignin, hemiselüloz ve diğer bazı bileşikleri içermediğinden yüksek saflığa sahiptir.

2.1.2. Mikrobiyal Selüloz Üreten Organizmalar

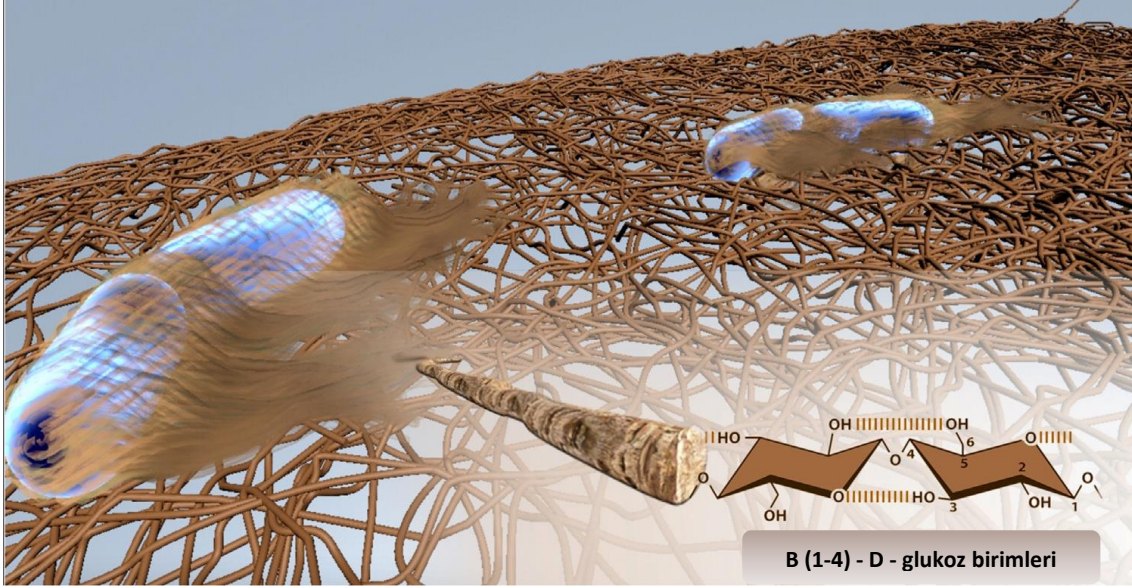
Geleneksel olarak selüloz, fotosentez yolu ile glukoz üreten ve bunları selüloz olarak birleştiren bitkilerden elde edilir. Bitki hücre duvarının temel yapısal bileşeni olan selüloz, genel olarak bitki içeriğinin %33'ünü, pamuk içeriğinin %94 kadarını ve odunun %50'sinden fazlasını oluşturur. Pamuk ve odun, kağıt, tekstil, inşaat malzemeleri gibi selüloz ürünlerin yanı sıra selofan, suni ipek ve selüloz asetat gibi selüloz türevi ürünleri için temel kaynaklardır [3,4]. Bununla birlikte, bitkilerin fotosentezde kullandığı aynı karbondioksit fiksasyonunu kullanan fitoplanktonlar ve *Vallonia* gibi algler de okyanuslarda selüloz üretmektedir [25]. Çizelge 2.1'de bitkisel selüloz ve mikrobiyal selüloz arasındaki bazı farklar belirtilmektedir.

Bakteri tarafından oluşturulan selüloz ilk defa Adrian Brown tarafından 1886 yılında rapor edilmiştir. Brown, sirke fermantasyonu sırasında yüzeyde oluşan jelatinsi yapıyı gözlemlemiş ve yapılan analizler bu yapının selüloz olduğunu göstermiştir. Daha sonrasında yapılan çalışmalar fungusların, alglerin veya bakterilerin de selüloz sentezlediklerini ortaya koymuştur. Bu tür selüloz bakteriyel selüloz (BC) ya da mikrobiyal selüloz (MC) adını almaktadır [18]. Mikrobiyal selüloz biyosentezi *Saprolegnia*, *Dictyostelium discoideum* gibi funguslarda ya da *Acetobacteraceae* familyasına ait *Gluconacetobacter*, *Achromobacter*, *Aerobacter*, *Agrobacterium*, *Pseudomonas*, *Rhizobium*, *Sarcina*, *Alcaligenes*, *Zoogloea* gibi bakteri cinsleri tarafından gerçekleştirilir [6]. Yakın zamanda 16S rRNA analizine göre yapılan yeniden sınıflandırma ile *Komagataeibacter* cinsi *Gluconacetobacter* cinsinden ayrılmış ve ayrı bir kolda sınıflandırılmaya başlanmıştır [23].

Çizelge 2.1. Bitkisel selüloz ile mikrobiyal selüloz arasındaki bazı farklar [17]

Kriter	Bitkisel Selüloz	Mikrobiyal Selüloz
Üretim Süresi	Bitki türüne göre değişmekle birlikte yıllar sürebilir.	Bakteri türüne göre değişmekle birlikte günler içerisindeydir.
İçerik	Temel odun içeriği; Selüloz, lignin ve hemiselüloz	Bakteri hücreleri uzaklaştırıldıktan sonra saf selüloz
Enerji ihtiyacı	Kütüklerin kesimi, taşınması ve öğütülmesi, hamur haline getirilme süreci ve ligninden temizlenmesi	Besiyeri sterilizasyonu ve inkübatör gibi üretim ekipmanları
İşlem basamakları	Boyut küçültme gibi fiziksel, mekaniksel ve kimyasal basamaklar	Bakteri hücreleri tarafından şekerin kullanımı, fiberlerin oluşumu ve selülozun hücrelerden temizlenmesi
Çevresel etkileri	Kağıt ve kağıt hamuru fabrikalarından çıkan katı atık, kullanılan kimyasallardan dolayı hava ve su kirliliği	Biyolojik üretim ile düşük seviyelerde hava ve su kirliliği
Ticari değer	Günümüzde endüstriyel selüloz büyük oranda bu yöntemle üretilmektedir.	Bazı gıda ürünleri endüstriyel boyutta üretilir ve satılır. Yara tedavi malzemesi ve biyomedikal malzeme olarak mikrobiyal selüloz üretilir. Üretimin yaygınlaşması için maliyetin düşmesi ve sürecin geliştirilmesi gerekmektedir.

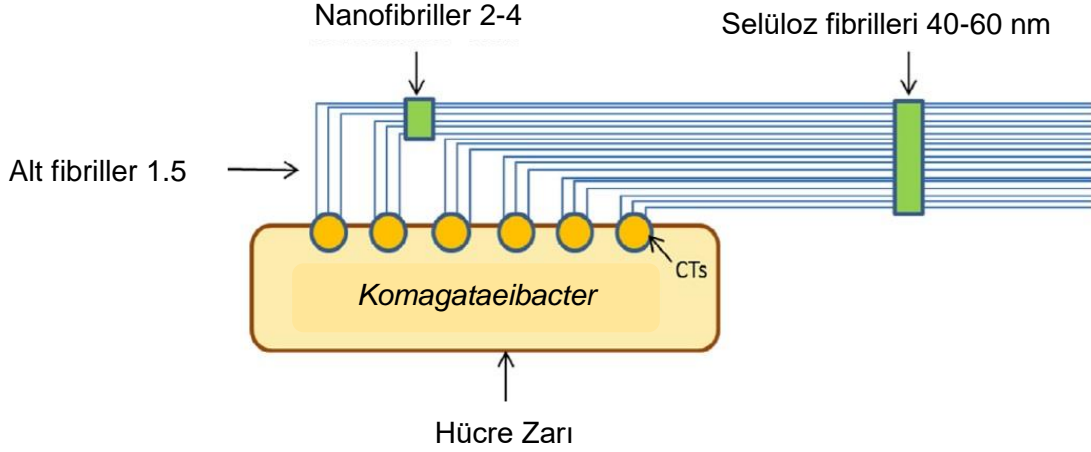
Mikrobiyal selüloz üretiminde en avantajlı mikroorganizma genel olarak sirke bakterisi olarak anılan *Komagataeibacter* (eski adı ile *Acetobacter*) cinsidir [25]. Zorunlu aerobik olan bu bakteri Gram negatifir ve gelişimi için karbonhidrat içeren besiyerine ihtiyaç duyar. Bu bakteri cinsi 25-30°C arasında ve pH 3-7 değerlerinde statik olarak inkübe edildiğinde, glukoz, sükröz, fruktoz, gliserol ve benzeri organik substratları kullanarak sıvı-hava temas yüzeyinde jelatin membran yapısında olan ekstraselular selüloz üretme yeteneğine sahiptir (Şekil 2.3). Oluşan bu selüloz yüzeyden kolaylıkla toplanabilir ve patojen karakter göstermez [20].



Şekil 2.3. *Acetobacter xylinum* bakterileri tarafından sentezlenen selüloz ağının temsili şekli [27]

Statik koşullardaki selüloz üretimi besiyerinin içerisinde bulunduğu yüzey alanı ile doğru orantılı olarak artarken, oluşum sıvı yüzeyinde görüldüğünden, besiyeri miktarı ve kabın derinliğinin selüloz üretimine etkisi bulunmamaktadır [28]. Su yüzeyinde oluşan yapının asıl amacı, içerisinde gömülü olarak bulunan ve zorunlu aerob olan *Komagataeibacter* cinsinin hava ile yakın temasta kalmasını sağlamaktır. Bunun yanında besiyeri içerisine dışarıdan gelen kontaminasyonları engellemekte ve opak yapısı sayesinde UV ışığının negatif etkilerine karşı selüloz üreten bakterileri korumaktadır [29].

Bakteriyel selüloz sentezi çok sayıda enzim ve protein kompleksi içeren senkronik ve regüle edilmiş işlem basamaklarına dayanır. Selüloz üretimi basamakları, hücre dışından hücre içerisine karbon kaynağının alınmasını, glukoz-6-fosfat ve glukoz-1-fosfattan üridin difosfoglukoz (UDPG) sentezini ve son olarak selüloz sentaz enzimi ile UDPG zincirlerinin polimerizasyonunu içerir. Sonrasında, yeni oluşan 1,5 nm çapındaki alt fibriller hücre zarı üzerinde bulunan 3,5 nm çapındaki kompleks terminallerden (CT) dışarıya çıkartılır. Tek bir *Komagataeibacter* hücresi, selülozun hücre zarından çıkarılması için 50 ila 80 kompleks terminallere sahiptir. Alt fibriller 40-60 nm genişliğinde ve 3-8 nm kalınlığındaki şeritlere birleşirler (Şekil 2.4) [23].



Şekil 2.4. *Komagataeibacter* tarafından gerçekleştirilen selüloz sentezi [23].

2.2. Kombucha Çayı ve Özellikleri

Fermente edilmiş yiyecekler uluslararası alanda binlerce yıldır kullanılmaktadır. Ancak Kombucha çayı son yıllarda dünyada popüler hale gelmeye başlamıştır. Kökeninin M.Ö. 220 yıllarına dayandığı ve kuzeybatı Çin'de geleneksel bir içecek olduğu bilinmektedir. 410'lu yıllarda Japonya'da da içilmeye başlanmış, buradan ticaret yolları ile Rusya ve Doğu Avrupa'ya yayılmış [30], 2. Dünya Savaşı'ndan sonra ise tüm dünyada bilinen bir içecek haline gelmiştir. 2016 yılında büyüyen Kombucha pazarını fark eden PepsiCo Kombucha meşrubat üreticisi olan KeVita'yı satın alarak bünyesine katmıştır (Şekil 2.5a). Günümüzde Kombucha tüketiminin düşük alkollü fermente içecekler arasında en hızlı büyüyen ürün olduğu bilinmektedir [31].

Kombucha çayı, bakterilerden (*Komagataeibacter* sp., *Gluconacetobacter* sp., *Oenococcus* sp., *Lactobacillus* sp...) ve mayalardan (*Saccharomyces* sp., *Schizosaccharomyces* sp., *Zygosaccharomyces* sp., *Torulaspota* sp., *Brettanomyces* sp...) oluşan karışık kültür tarafından fermente edilen, Mançuryan kökenli tatlı bir siyah çay içeceğidir [32,33]. Kombucha fermantasyonu sırasında, flavonoidler, amino asitler ve fenolik asitler gibi siyah çay bileşikleri sükröz ile birlikte maya ve bakteri etkisiyle bir dönüşüm geçirir [34]. C, B1, B2, B12 vitaminleri, glukuronik asit ve asetik asit, etanol gibi bir çok kompleks molekül mikrobiyal konsorsiyum tarafından üretilir. Üretilen bu metabolitler sayesinde Kombucha çayının sinir sistemi bozukluklarını, ülseri, çeşitli kanser tiplerini önleme, kan

basıncını düşürme ve antioksidan aktivitesi gibi özellikleri bulunmaktadır ve bu yararları sayesinde sağlıklı bir gıda haline gelmektedir [35].

Çayın fermantasyonu sırasında oluşan metabolitlerin yanı sıra, *Komagataeibacter* ve *Gluconacetobacter* cinsi bakterilerin aktiviteleri sonucu sıvı yüzeyinde katı polimerik bir yapı olan mikrobiyal selüloz oluşmaktadır (Şekil 2.5b). Fermantasyon süresi arttıkça oluşan selülozik biyofilm gelişmeye devam eder ve 7-14 gün sonunda 8-12 mm arasında bir kalınlığa ulaşır. Fermantasyon işlemi statik koşullarda gerçekleştirilir. Sıcaklık, pH, oksijen miktarı, şeker tipi, fermantasyon süresi gibi parametreler oluşan selüloz kalınlığını ve elde edilen fermente içeceğin tadını etkileyen başlıca parametrelerdir [36].



Şekil 2.5. Kombucha çayı

*a. Kevita marka Kombucha çayı, b. Fermantasyon sonucu oluşan mikrobiyal selüloz

2.3. Mikrobiyal Selülozun Kullanım Alanları

2.3.1. Mikrobiyal Selülozun Tıbbi Alanlarda Kullanımı

Islak halde iken gösterdiği yüksek mekanik direnci, sıvılar ve gazlara karşı yüksek geçirgenliği ve ciltte herhangi bir tahriş yapmaması, jelatinimsi bir yapıya sahip olan mikrobiyal selülozun geçici olarak yaraların kapatılmasında yapay deri olarak kullanılmasını uygun kılmaktadır. Biofill® ve Gengiflex® ticari olarak üretilen ve geniş uygulamalara sahip mikrobiyal selüloz ürünleridir. Biofill® ikincil ve üçüncül derece yanıkların (Şekil 2.6) veya ülser gibi hastalıkların oluşturduğu yaralarda yapay deri olarak başarılı bir şekilde kullanılmıştır. 300'den fazla hasta üzerinde yapılan çalışmada mikrobiyal selülozun yara üzerine yapışarak yarayı tamamen kapattığı,

enfeksiyon oranını düşürdüğü, ışık geçirgenliği sayesinde yarayı görmeyi kolaylaştırdığı, tedavi süresini ve maliyeti azalttığı bulunmuştur [37]. Bir diğer ürün olan Gengiflex® ise diş eti ve diş implantlarında hızlı bir iyileşme için kullanılmaktadır (Şekil 2.7)



Şekil 2.6. Yara tedavisinde mikrobiyal selülozun kullanımı

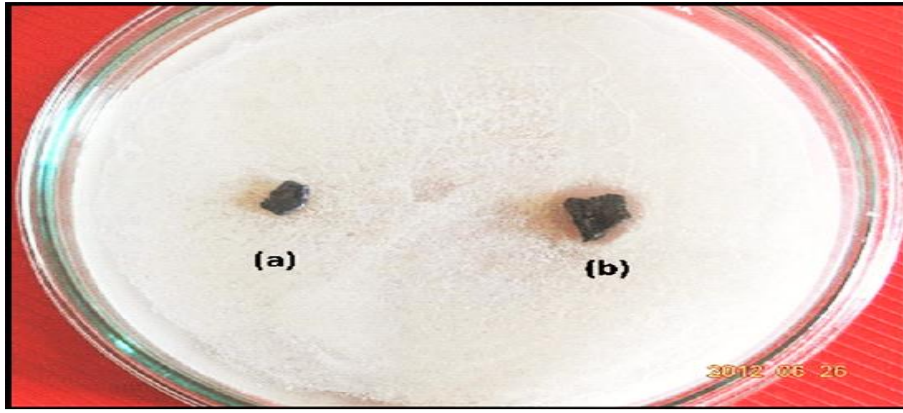
Bunun yanında pansuman malzemesi veya yara bandı olarak da kullanılan mikrobiyal selüloz yaraların nefes almasını sağlar ve içerdiği yüksek sıvı oranı ile yaraların kurumasını önlerken yara izi bırakmadan tedavi sağlar. Aynı zamanda mikrobiyal selülozun antibakteriyel bir etkisi olmamasına rağmen, gümüş nanopartikül ($AgNO_3$) gibi ajanlar ile modifiye edilen mikrobiyal selülozun antibakteriyel etki gösterdiği bulunmuş ve yara tedavilerinde daha etkili hale gelmeleri sağlanmıştır (Şekil 2.8) [38].



Şekil 2.7. Diş eti ve diş implantında kullanılan mikrobiyal selüloz

Kalbin etrafındaki koroner damarlar atardamarların sertleşmesinin bir sonucu olarak tıkanabilmekte ve bu damarlara bypass yapılması gerekebilmektedir. Bakteriler tarafından üretilen selüloz, günümüzde kullanılan sentetik materyallerden daha düşük kan pıhtılaşması riski taşıdığından yapay kan damarları yerine kullanılabilir.

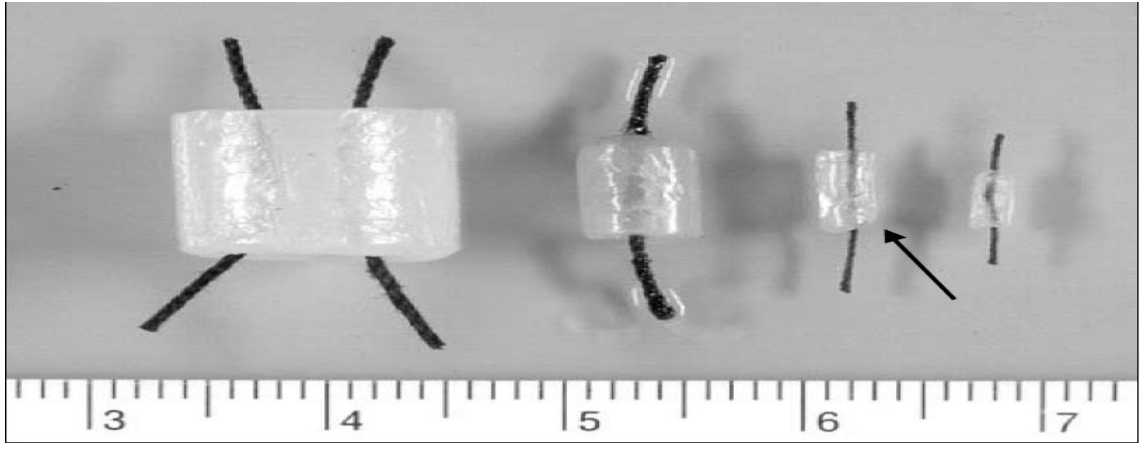
Bununla birlikte, kan damarı yerine kullanılacak olan malzemenin ameliyat öncesi hazırlık aşamasındaki ve ameliyat sürecindeki gerilmelere, daha sonrasında ise canlı vücudundaki kan basıncına dayanması gerekmektedir. Doğal mikrobiyal selüloz, birçok sentetik malzemeden daha üstün şekil alma ve yırtılma direncine sahiptir. Aynı zamanda vücut içerisine eklenen yapay kan damarının burada sindirilmeden ve parçalanmadan kalması gerekmektedir ve memelilerde selüloz zincirleri üzerinde etkili olan β -glukanohidrolazlar bulunmadığı için kan damarı olarak kullanılan mikrobiyal selülozun vucüt içerisinde bozulmadığı görülmüştür [25].



Şekil 2.8. AgNO₃ ile modifiye edilmiş mikrobiyal selülozun antibakteriyel aktivitesi [38]

*a. Saf mikrobiyal selüloz, b. AgNO₃ içeren mikrobiyal selüloz

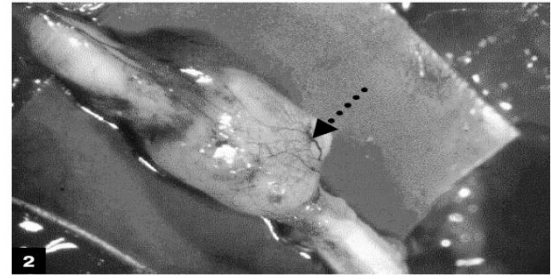
Klemm ve ark.'ı cam tüpler tasarlamışlar ve bu düzenekleri Hestrin-Schramm besiyerinde inkübasyona bırakarak damar şeklinde selülozlar elde etmişlerdir. BASYC® adını verdikleri bu tüplerin iç çapları 1 mm, uzunlukları 5 mm ve çeper kalınlıkları 0,7 mm olarak ölçülmüştür (Şekil 2.9a). Bu selüloz yapıları besiyeri kalıntılarından temizlenerek fizyolojik serum içerisinde 6 hafta kadar 4°C'de saklanabilmiştir. Daha sonra BASYC® tüplerini fare koroner damarlarında denemişler (Şekil 2.9b) ve mikrobiyal selüloz ile yapılan yapay damarın vücuda başarılı bir şekilde adapte olduğunu bulmuşlardır (Şekil 2.9c) [2].



(a)



(b)



(c)

Şekil 2.9. Mikrobiyal selüloz ile yapay kan damarı eldesi [2]

*a. Cam tüpler arasında elde edilen selüloz damarlar, b. Mikrobiyal selüloz damarının fareye uygulanması, c. 10 hafta sonunda faredeki mikrobiyal selüloz damar görüntüsü

2.3.2. Kağıt Endüstrisinde Mikrobiyal Selüloz Kullanımı

Mikrobiyal selüloz kağıtlarda bağlayıcı madde olarak araştırılmış ve mikrobiyal selülozun mikro-iplikçik kümelerinden oluşması nedeniyle kağıt hamuruna eklendiğinde kağıdın dayanıklılığına katkıda bulunduğu görülmüştür (Şekil 2.10). Mitsubishi Paper markası, Ajinomoto firması ile birlikte aktif olarak mikrobiyal selülozdan kağıt geliştirme üzerine çalışmaktadırlar ve bu çalışmalar ile patentleri (JP patent 63295793) bulunmaktadır. Basta ve ark.'ı, %5 oranında mikrobiyal selülozun odun hamuru ile birleştirilmesi sonucu elde edilen kağıdı normal kağıt ile karşılaştırmışlar, mikrobiyal selüloz içeren kağıdın yüksek gerilme kuvvetlerine ve ateşe karşı çok daha dayanıklı olduğunu bulmuşlardır [39].

Bakteriler tarafından üretilen mikrobiyal selüloz hasarlı kağıtların korunması ve güçlendirilmesi için de iyi bir alternatiftir. Yapılan bir çalışmada, içerisinde *Komagataeibacter sucrofermentans* bakterisi olan ortamın yüzeyine hasarlı kağıt eklenmiş, 7 günlük inkübasyon sonucunda kağıt yüzeyinde 10 µm kalınlığında, şeffaf mikrobiyal selüloz tabakası oluşmuştur [40].



Şekil 2.10. Mikrobiyal selüloz ile üretilmiş kağıt [40]

Plastik poşetler günümüzde oldukça yaygın olarak kullanılmakta, özellikle market alışverişi sonrası alınan poşetler kullanımlarından sonra doğaya atılmaktadır. Büyük bir çoğunluğu tek kullanımlık olan bu poşetlerin doğada 100 yılı geçen bozunma süreleri bulunmaktadır ve büyük bir çoğunluğu biyolojik olarak oldukça zor parçalanmaktadır. Plastik kökenli poşet kullanımı yerine biyolojik olarak bozunabilir hammadde yapılan poşetlerin kullanımı hem daha uzun ömürlü olmakta (3 ay ile 1 yıl) hem de kullanım ömürleri bittiğinde doğada kısa sürelerde bozunabilmektedirler. Mikrobiyal selüloz ile üretilen poşetler (Şekil 2.11) de plastik poşetlere alternatif bir ürün olarak karşımıza çıkmaktadır [40].

Tüm bu kullanımların yanında, mikrobiyal selüloz oldukça esnek, hafif, kolay taşınabilir ve yüksek ışık geçirme kabiliyeti olmasından dolayı elektronik kağıt uygulamalarında ve OLED (ışık yayan organik diyotlar) ekran teknolojilerinde kullanılabilecek potansiyel bir malzemedir [41,42].



Şekil 2.11. Mikrobiyal selülozdan elde edilen market poşeti

2.3.3. Gıda Endüstrisinde Mikrobiyal Selüloz Kullanımı

1992 yılında Amerikan Gıda ve İlaç Dairesi'nin (FDA: Food and Drug Administration), mikrobiyal selülozu güvenli şekilde kullanılabilir bir madde (GRAS) olarak göstermesi ile gıdalarda mikrobiyal selüloz kullanımı artmış ve geleneksel olan bazı ürünler tüm dünyada popüler olmaya başlamıştır [43].

Mikrobiyal selülozun gıda alanındaki ilk uygulamalarından biri, Filipinler'de uzun yıllardır tatlı bir yiyecek olarak tüketilmekte olan Nata de Coco'dur. Kolesterol düşürücü etkisinden dolayı kardiyovasküler hastalıklar, obezite ve diyabet gibi bazı patolojik hastalıkları engellediği bilinen Nata de Coco'nun belirgin şekilde yumuşak bir dokusu ve yüksek oranda lif içeriği vardır [25]. *Acetobacter xylinum*'un hindistan cevizi suyu ile yüksek miktarda sükröz içeren ortamda statik fermentasyonu sonucu oluşan mikrobiyal selüloz tabakasının steril edildikten sonra küp şeklinde parçalara ayrılması ile elde edilir. Son yıllarda meyve salatalarının, diyet içeceklerinin ve dondurmaların içerisine eklenmesiyle (Şekil 2.12a) ve çeşitli aromalar ile tatlandırılması sonucu (Şekil 2.12b) tüm dünyada çok sevilen bir tatlı haline gelmiştir [44].



Şekil 2.12. Nata de Coco

*Dondurma üzerine eklenen Nata de Coco parçaları, b. Çilek aroması ile tatlandırılan ve ticari olarak satılan Nata de Coco

Benzer şekilde, sükröz içeren siyah veya yeşil çayın çeşitli maya ve *Acetobacter* cinsi bakterilerden oluşan karışık kültür tarafından statik ortamda fermente edilmesi ile oldukça sağlıklı bir içecek olan Kombucha ya da Mançurya çayı olarak

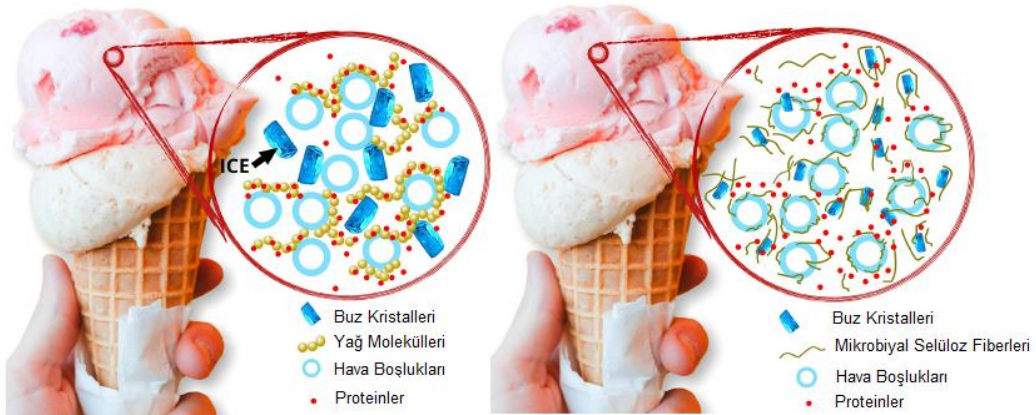
adlandırılan iecek elde edilir. İki haftalık bir srenin ardından, yzeydeki selloz membran ıkarılır ve sıvı faz (Şekil 2.13) imeye hazır hale gelir [45]. Bazı kanser trlerine karşı koruyucu olduėu dşnlen bu iecek dnyada giderek yayılmaya ve ierisine eşitli tatlandırıcıların eklenmesi ile daha fazla tketime bařlamıřtır [46].



Şekil 2.13. Kombucha ayı

Mikrobiyal sellozun *Monascus* tr kf zt ile kombinasyonu sonucu doėal kırmızı pigmentli ve tadı doėal ete benzeyen vejetaryen et hazırlanabilir. Bu et, diyet kısıtlaması olan bazı tketiciler iin hayvansal bazlı rnlerin yerine kullanılabilir ve aynı zamanda dřk kalorili ve yksek lif ierikli besin elde edilir [47].

Tm bunların yanında kimyasal olarak saf olan mikrobiyal selloz, eşitli iřlenmiř gıdalarda ve dondurmalarda kıvam arttırıcı olarak kullanılmaktadır ve rnlerin erime srelerini uzatmaktadır (Şekil 2.14).



Şekil 2.14. Dondurmada yaė yerine kullanılan mikrobiyal selloz fiberleri

2.3.4. Mikrobiyal Selülozun Diğer Kullanım Alanları

Mikrobiyal selülozun diğer bir kullanım alanı elektronik aletlerde karşımıza çıkmaktadır. Mikrobiyal selüloz hoparlör diyaframı olarak denenmiş (Şekil 2.15a) ve Sony ilk olarak MDR-R10 modelini (Şekil 2.15b) 1989 yılında piyasaya sürmüştür. Bu kulaklık çok net tiz ses ve çok kuvvetli bas sesler vermesi sayesinde yüksek bir satış başarısı elde etmiş ve Sony firması ilerleyen yıllarda mikrobiyal selüloz içeren farklı kulaklık modelleri üretmiştir (MDR-CD1700, MDR-CD2000).



(a)



(b)

Şekil 2.15. Mikrobiyal selülozun diyafram olarak kullanılması

*a. Hoparlöre bağlanan mikrobiyal selüloz, b. Sony tarafından üretilen MDR-R10 model kulaklık

Gözenekli bir yapıda olması, gerilmelere karşı dirençli bir yapıda olması nedeniyle son zamanlarda mikrobiyal selüloz tekstil endüstrisinde sıklıkla kullanılmaya başlanmıştır. Suzan Lee ve ekibi yürüttükleri BioCouture projesinde, Kombucha kültüründen elde ettikleri mikrobiyal selüloz ile ayakkabıdan gömlek ve cekete kadar birçok farklı tekstil ürünü elde etmişlerdir (Şekil 2.16).



Şekil 2.16. Mikrobiyal selüloz ile üretilen bazı tekstil ürünleri

2.4. Boyalar

Organik bir renklendiricinin ilk bilinen kullanımı M.Ö. 4000 yıllarına dayanmaktadır ve Mısır mezarlarında bu tarihe ait mavi renkte mumya sargıları bulunmuştur [48]. O dönemlerde boyalar bitkilerden, böceklerden ve hayvanlardan elde edilmekte ve çevresel açıdan sorun teşkil etmeyecek şekilde kullanılmaktalardı [49]. O zamandan itibaren boyaların estetik ve sanatsal açılardan tekstilde, boyamada ve daha birçok alanda kullanılmaları ile boyar madde talepleri artmıştır. Ancak doğal olarak sentezlenen boyaların talepleri karşılayamaması, üretilmelerinin maliyetli olması ve fazla kalıcı olmamaları nedeniyle alternatif arayışına gidilmiş ve boyalar laboratuvar ortamında sentetik olarak elde edilmeye başlanmıştır. Günümüzde 100.000'den fazla boyar madde çeşidi bulunmakta ve her yıl 0,7 milyon tondan fazla boyar madde tekstil, kağıt, kozmetik, gıda ve ilaç endüstrilerinde kullanılmak üzere üretilerek piyasaya sunulmaktadır [50]. Ancak dünyada üretilen bu sentetik boyaların %11'inden fazlası üretim ve uygulama işlemleri sırasında atık sulara bulaşmakta, bu atık sular hiç arıtılmadan veya yeterince arıtım işlemi uygulanmadan doğaya verilmektedir [51].

Teknolojinin gelişmesi ile birlikte boyar maddelerin de özellikleri gelişmekte, ışık ile solmayan, boyadığı yüzey üzerinden uzun süre çıkmayan boyar maddeler elde edilmektedir. Ancak bu durum hem çevre estetiği açısından hem de su ekosistemi ve insan sağlığı açısından tehditleri beraberinde getirmektedir [50]. İlk olarak, boyalar sucul çözeltilerinde düşük konsantrasyonlarda dahi suyun rengini değiştirebilmektedirler. Özellikle tekstil endüstrisi fabrikalarından çıkan atıksular yüksek miktarda boyar madde içermekte ve arıtılmadan deşarj edilmeleri halinde çevrelerinde bulunan su kaynaklarını önemli ölçüde kirletmektedirler ve bu durum estetik açıdan da istenmeyen bir durumdur [52,53]. Buna ek olarak, doğal su kaynaklarına karışan ve onları boyayan boyar maddeler güneş ışığının su içerisindeki geçişini engelleyerek sucul ortamlardaki fotosentez verimini azaltmaktadırlar [54]. Üçüncü ve en önemli etkisi ise, bazı boyaların mikroorganizmalarca parçalanmaları durumunda toksik, kanserojenik ve mutajenik olan aromatik aminlerin ortaya çıkmasıdır [55].

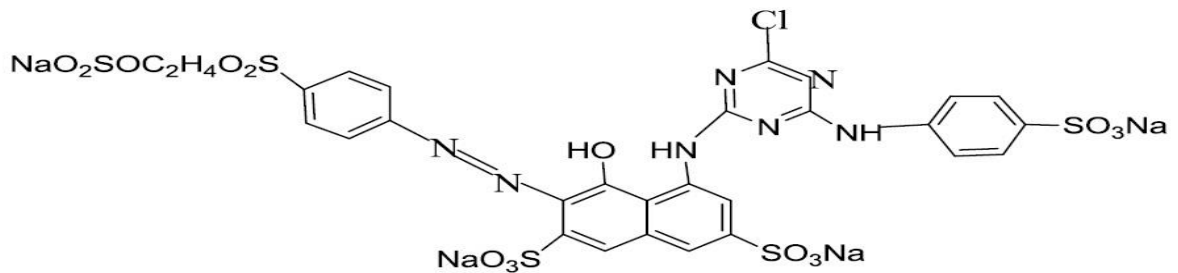
2.4.1. Sentetik Boya Çeşitleri

Günümüzde çoğu alanda doğal boyaların yerini alan sentetik boyalar literatürde pek çok farklı şekillerde sınıflandırılmaktadırlar.

2.4.1.1. Boyaların Uygulama Yöntemlerine Göre Sınıflandırılması

Literatürde sentetik boyalar için kullanılan gruplandırmalardan birisi, boyaların endüstriyel alanlardaki uygulanma yöntemlerine göre, Çizelge 2.2'de uygulama yöntemlerine göre yapılan boya sınıflandırılması verilmiştir.

Reaktif boyalar, oldukça çeşitli ve canlı renklere sahip olan boyalardır. Bu boyalar, reaktif gruplarının (Şekil 2.17) kovalent bağlar vasıtasıyla tekstil elyaflarına bağlanma kabiliyetlerinden dolayı, tekstil endüstrisinde yaygın olarak kullanılmaktadır. İlk olarak 1956'da ticari olarak piyasaya sunulan bu boya sınıfının kullanımı, tekstil ürünlerine olan talebin artmasıyla birlikte, dünya çapındaki her geçen yıl hızla artmaktadır [56]. İlk başlarda selüloz temelli ürünlerde kullanılan reaktif boyaların kullanım alanları genişlemiş ve yün ile naylon temelli ürünlerde de kullanılmaya başlanmıştır [57]. Ancak Reaktif boyaların kullanımıyla ilişkili problem, fiksasyon etkinliğinin %60 ile %90 arasında kalması ve bu nedenle için boyama işlemindeki kayıplarıdır [58]. Yüksek miktarlarda kullanılması ve yaşanan kayıplardan dolayı boyama banyosu sonucu oluşan atık sularda fazla miktarda reaktif boya kalmakta ve bu boyalar atık sular ile birlikte doğaya salınmaktadır. Bu boyalar sucul ortamlarda yaşayan canlılar üzerinde mutajenik ve kanserojenik etki göstermektedir. Söz konusu suların insanlar tarafından tüketilmeleri halinde ise karaciğer, sindirim sistemi ve merkezi sinir sisteminde kalıcı hasarlar oluşabilmektedir [59]. Bu bağlamda, boyaların kullanımında çevresel problemler karşımıza çıkmaktadır.

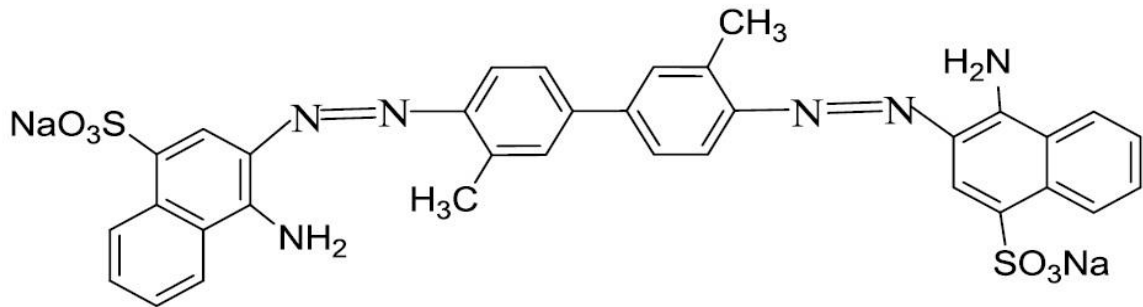


Şekil 2.17. Reaktif Kırmızı 198 [48]

Çizelge 2.2. Uygulama yöntemlerine göre boya türleri [56]

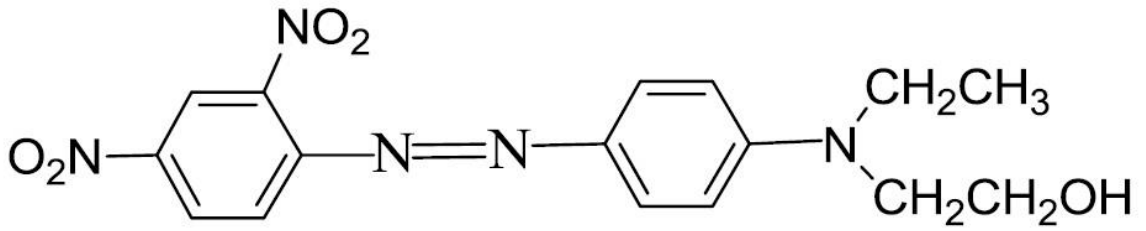
Boya Türü	Uygulanan Yüzey	Uygulama Metodu
Reaktif Boyalar	Pamuk, yün, ipek, naylon	Boyada bulunan reaktif bölge ısı ve pH etkisi ile lif üzerindeki fonksiyonel gruba kovalent olarak bağlanır.
Direkt Boyalar	Pamuk, suni ipek, kağıt, deri naylon	İlave elektrolit içeren nötr banyolarda uygulanır.
Dispers Boyalar	Polyester, Selüloz asetat, Akrilik, Naylon	Sulu çözeltilerde boya yüzey üzerine yüksek basınç ve sıcaklık ile uygulanır.
Vat Boyalar	Pamuk, Yün, Suni ipek	Önce çeşitli maddeler ile indirgenir ve suda çözdürülerek madde boyanır. Sonrasında yeniden okside edilir ve suda çözünmez duruma gelir.
Asit Boyalar	Naylon, İpek, Yün, Kağıt, Deri	Asidik su banyolarında uygulanır

Direkt boyalar (Şekil 2.18.) suda çözünebilen ve doğada anyonik halde bulunan boyalardır. Sulu çözeltilerdeki elektrolitlerin varlığında selülozik elyaflar için yüksek bir afiniteye sahiptir. Temel kullanım alanları pamuk, kağıt, deri ve az oranlarda naylondur. Çok fazla renk skalasına sahiptirler ve çok kolay şekilde malzemeye uygulanabilmektedirler. Ancak bu tür boyalar yüzeye H bağları ve Wan der Waals kuvvetleri ile bağlandıklarından dolayı yıkanmaları durumunda boyar maddeler yüzeyden ayrılmakta ve suya karışmaktadır [56,60]. Bu nedenle, yüzeye kendilerinden çok daha iyi tutunabilen reaktif boyalar kullanılmaktadır [48]. Günümüzde çoğu zaman evsel halılar gibi daha az yıkamaya maruz kalan selülozik liflere uygulanır.



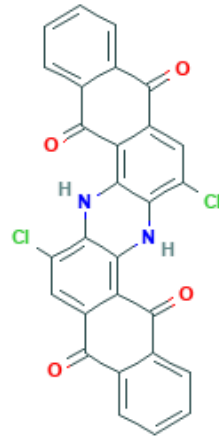
Şekil 2.18. Direkt Kırmızı 2 [48]

Dispers boyalar (Şekil 2.19) suda çözünmeyen ya da çok az miktarlarda çözünen ve iyonik olmayan boyalardır. Çoğunlukla hidrofobik olan polyester liflerinin ve az da olsa naylon, selüloz asetat veya akrilik liflerin boyanmasında kullanılırlar. Tekstil endüstrisinde kullanılan boyaların %20 kadarını [61] ve aynı zamanda fotoğrafçılıkta ve baskı alımında kullanılan mürekkeplerin çok büyük kısmını oluştururlar [56]. Genellikle büyük miktarlarda kullanılırlar ve boyama işlemlerinde yer alan su banyosunda kalan boyanın yüksek oranda olması nedeniyle fazla miktarlarda atık su üretilebilirler [48].



Şekil 2.19. Dispers Kırmızısı 8 [56]

Normalde suda çözünmeyen vat boyalar (Şekil 2.20), bir alkalın banyosunda sodyum hidrojen sülfid ile indirgendiikten sonra çözünen löko tuzları haline gelirler. Selüloz kumaş löko tuzlarını içeren boya solüsyonunda boyandıktan sonra sabunlama işlemine tabi tutulur ve löko formundaki tuzlar suda çözünmeyen formları olan keto formlarına dönerler. Bu sayede kumaş üzerinde yıkamalara dayanıklı kalıcı bir boyama işlemi gerçekleştirilir [56]. Vat boyaları kanserojenik etkilerle sahip olduğundan ve boyama işlemi sırasında yüksek miktarlarda atık su ortaya çıktığından çevreye büyük zararlar verebilmektedirler.



Şekil 2.20. Vat Mavisi 6 [115]

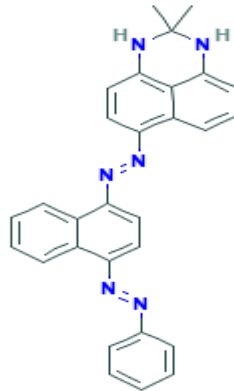
2.4.1.2. Boyaların Kimyasal Yapılarına Göre Sınıflandırılması

Sentetik boyaların sınıflandırılmasında kullanılan diğer bir sınıflandırma yöntemi de boyaların kimyasal yapılarına göre sınıflandırma şeklindedir. Bu sınıflandırma şekline göre aşağıda belirtilen boya türleri ortaya çıkmaktadır;

- Azo boyalar,
- Sülfür boyalar,
- Antrokinon boyalar,
- İndigo boyalar,
- Ftalosiyanın boyalar,
- Nitro ve nitrozo boyalar,

Azo boyalar en çok kullanılan boyaların başında gelmektedir. Azo boyalar bir veya daha fazla azot-azot (R-N=N-R') bağları içeren boyalardır (Şekil 2.21). Monoazo boyalarda bir azo bağı bulunurken bu sayı diazo boyalarda iki, triazo boyalarda üçe çıkmaktadır. Azo boyalar günümüzdeki en büyük sentetik boya sınıfıdır ve endüstride kullanılan tüm sentetik boyaların %70 kadarını oluştururlar. Tekstil, kozmetik, deri, ilaç, kağıt, boya ve gıda endüstrilerinde yaygın olarak kullanılırlar.

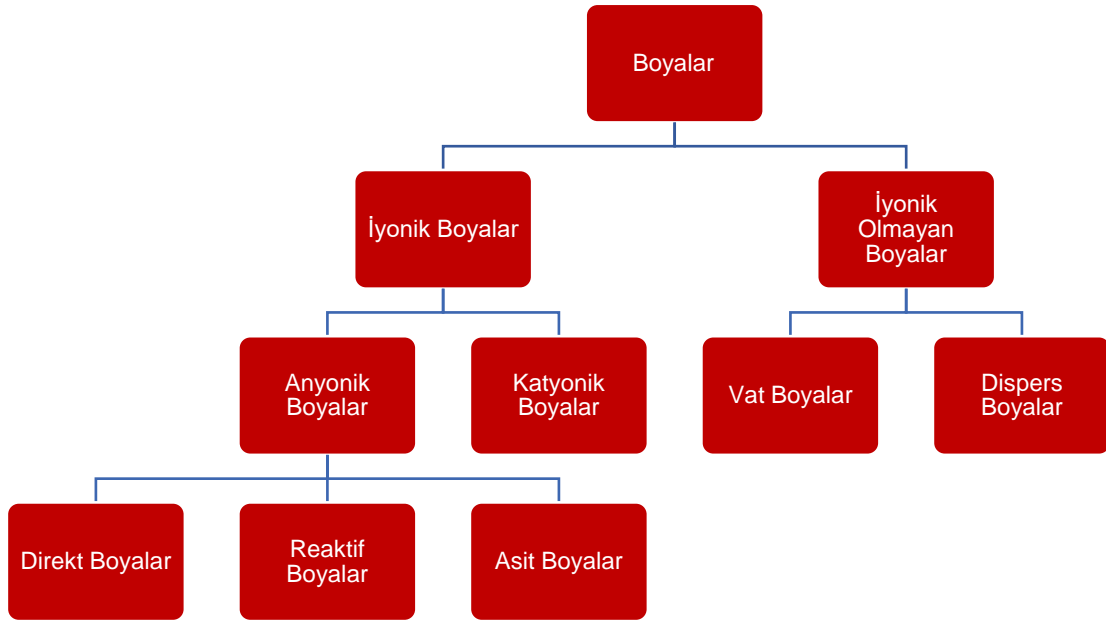
Azo boyaların bu denli kullanım alanı olmasının en büyük nedenleri, boyama işleminin çok kolay yapılabilmesi, boya kimyasında yapılacak değişiklikler ile yeni boya çeşitlerine izin vermesidir. Bu sayede hem çok çeşitli sayıda renk elde edilmiş hem de renklerin farklı tonlarında renkler elde edilmiş olmaktadır [48].



Şekil 2.21. Sudan Siyahı B [116]

2.4.1.3. Boyaların İyon Yüklerine Göre Sınıflandırılması

Boyaların bir diğer sınıflandırma yöntemi de iyon yüklerine göre sınıflandırılmalarıdır. Boyaların iyon yükleri büyük oranda adsorpsiyon verimini belirlemektedir. Adsorban madde ve uygun ortam pH'sı seçiminde boyanın iyon yükünü bilmek önemlidir. Şekil (2.22)'de gösterildi gibi boyalar iyonik boyalar ve iyonik olmayan boyalar şeklinde kategorize edilirler. İyonik olmayan boyalar vat boyalar ve dispers boyalar, iyonik boyalar ise anyonik (direkt, reaktif ve asit boyalar) ve katyonik (bazik) boyalar şeklinde sınıflandırılır [62].

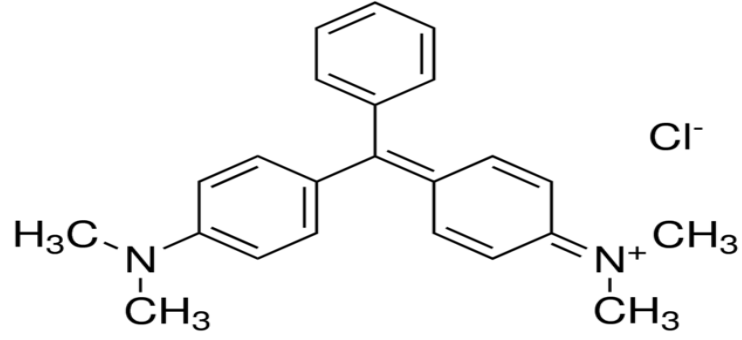


Şekil 2.22. İyonik yüklerine göre boya sınıfları [62].

2.4.2. Çalışmada Kullanılan Boyar Maddeler

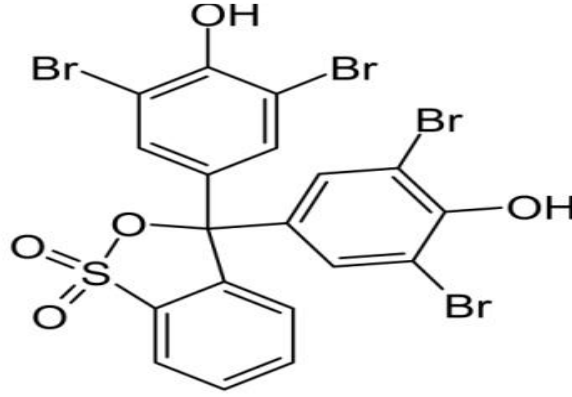
Çalışmamızda Malahit Yeşili, Bromfenol Mavisi, Bismark Kahverengisi, Oranj G, Reaktif Mavi 221, Akridin Turuncusu, Trifan Mavisi, Reaktif Yeşil 19, Indigo Karmin boyaları kullanılmıştır.

Malahit yeşili boyası (Şekil 2.23) katyonik bir boyadır ve trifenilmetan kategorisinde incelenmektedir [63].



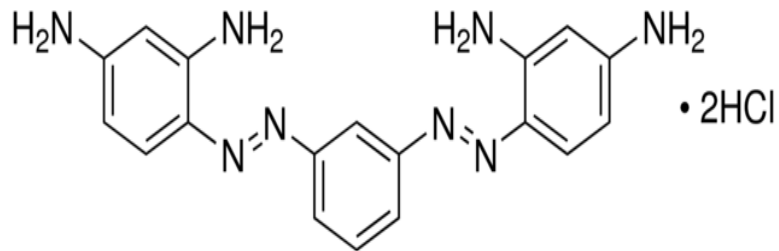
Şekil 2.23. Malahit Yeşili boyası [117]

Bromfenol Mavisi (Şekil 2.24) gıda, ilaç, kozmetik, tekstil, baskı mürekkeplerinde endüstriyel bir boya olarak, laboratuvar göstergesi olarak ve biyolojik bir boya olarak kullanılan anyonik bir boyadır [64].



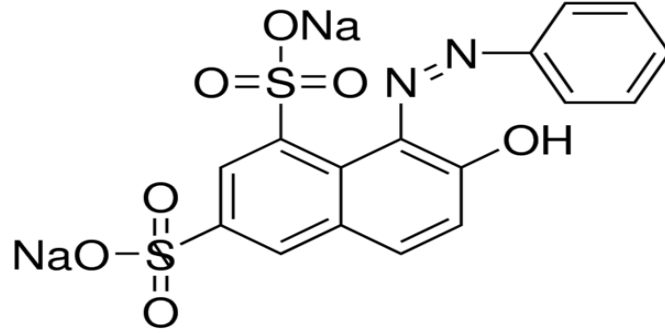
Şekil 2.24. Bromfenol Mavisi boyası [64]

Bismark kahverengisi (Şekil 2.25) bir diazo boyasıdır ve bilinen en eski azo boyalardan birisidir. Genel olarak histolojide doku boyamak amacıyla kullanılmaktadır [65].



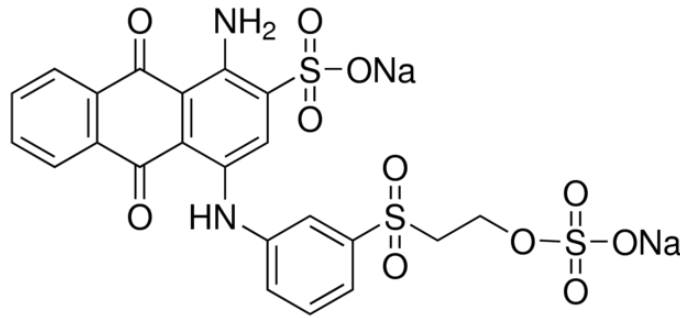
Şekil 2.25. Bismark Kahverengisi boyası [65]

Şekil 2.26' gösterilen Oranj G histolojide kullanılan bir monoazo boyasıdır [66].



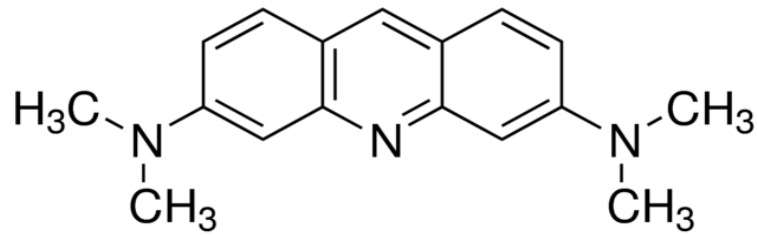
Şekil 2.26. Oranj G boyası [118]

Reaktif mavi 221 (Şekil 2.27) tekstil endüstrisinde kullanılan en önemli antrokinon boyalardan birisidir [67].



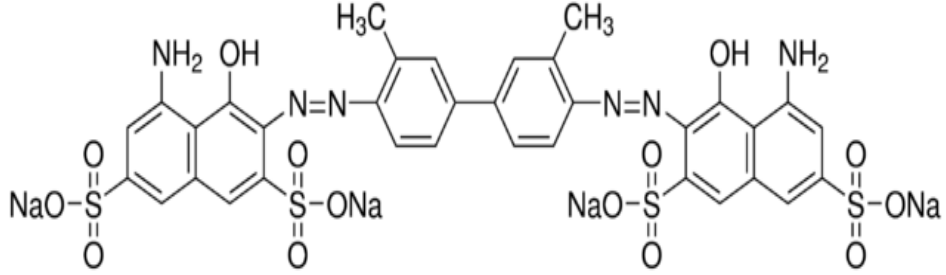
Şekil 2.27. Reaktif Mavi 221 boyası [119]

Akridin Turuncusu baskı mürekkeplerinde, deri boyamada ve litografi (taş baskı) alanlarında kullanılan katyonik bir boyadır (Şekil 2.28.). Bunun yanında spesifik olarak nükleik asitleri boyamakta ve hücre döngüsü tayininde de kullanılmaktadır [68].



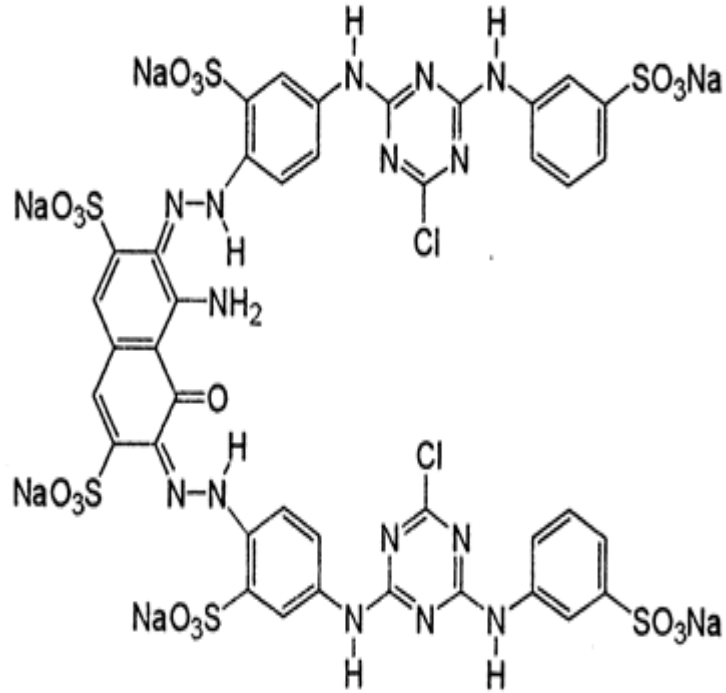
Şekil 2.28. Akridin Turuncusu boyası [120]

Şekil 2.29. 'de gösterilen Trifan Mavisi boyası yapısında 2 adet azot çift bağı içeren bir diazo boyasıdır [69].



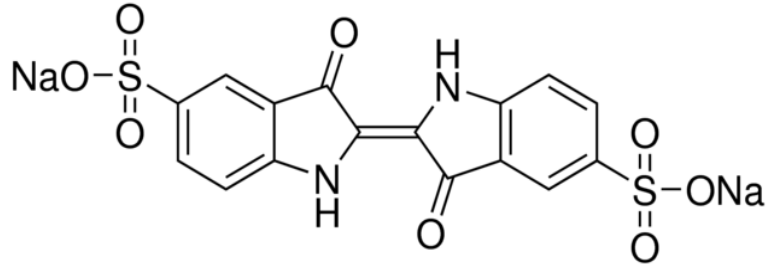
Şekil 2.29. Trifan Mavisi boyası [121]

Şekil 2.30'da gösterilen Reaktif Yeşili 19 sülfonatlı bir diazo boyasıdır ve pamuk/polyester karışımı kumaşları boyamak için kullanılmaktadır [70,71].



Şekil 2.30. Reaktif Yeşili 19 boyası [70]

İndigo karmin sülfolanmış bir indigoid boyadır (Şekil 2.31.). Renk indikatörü ve gıda boyası (E132) olarak kullanılmaktadır [72,73].



Şekil 2.31. İndigo Karmin boyası [122]

2.5. Boyaların Sucul Ortamlardan Giderimleri

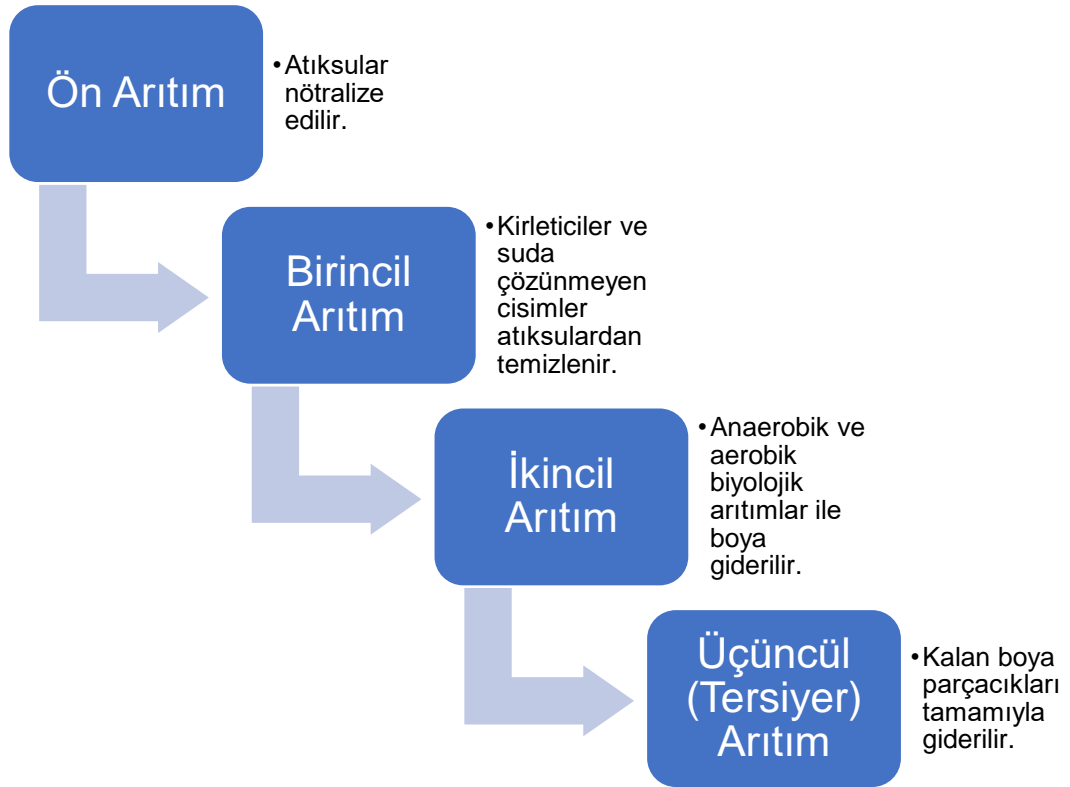
Atık sulardaki renk sorunu, koku sorunu ile birlikte göze çarpan en önemli problemlerden birisidir. Atık suların çevreye salınması su ekosistemi için sorun kaynağıdır [74]. Doğal bir ekosistemde su renginin değişmesi, fotosentetik aktiviteyi düşüreceğinden, burada bulunan flora ve faunanın doğal dengesini de bozmaktadır [75]. Buna ilave olarak, boyar maddeler suda çözünerek suyun kalitesini düşürmekte sucul ortamlarda yaşayan canlıların ve bu suları dolaylı yollardan kullanan insanların sağlığını tehdit etmektedir. Bu bakımdan, atık sulardaki boyar maddelerin başarılı olarak giderilmesi, su kalitesinin ve dolayısıyla insan sağlığının korunmasını sağlayacaktır [76].

Boya içeren atık suların büyük çoğunluğu, endüstriyel faaliyetler sonucu oluşmaktadır. Tekstil, gıda, kozmetik, kimya ve ilaç şirketleri, kağıt fabrikaları ve matbaalar üretim döngülerinin herhangi bir aşamasında boyar maddeleri kullanmakta ve kullanımdan sonra geriye kalan kısmı atık sularla birlikte fabrikalardan dışarıya bırakılmaktadır [77]. Özellikle tekstil endüstrisi, fazla su tüketimi ve yüksek miktarda renkli atık suyun dışarı atılması bakımından ön plana çıkmaktadır [78].

Boya molekülleri, bir kromojen veya görünür ışığı emebilen bir aromatik yapıdan oluşur. Özellikle içeriğinde azo grubu (N=N) barındıran boyalar karmaşık aromatik yapılara sahiptirler. Bu yapıları sayesinde çıplak gözle görülebilirler ve çoğu zaman beğenilirler.

pH deęişimi gibi çeşitli renksizleştirme işlemlerinin sonunda COD (Kimyasal Oksijen İhtiyacı) ve TOC (toplam organik karbon) gibi parametrelere bakıldığında, suyun organik madde bakımından hala zengin olduęu tespit edilmiş ve boyar maddelerin ortama etkisini gideremedikleri görülmüştür. Bundan dolayı, boyar maddelerin sucul ortamdan tamamen bertaraf edilmeleri gerekmektedir [79].

Boyar maddelerin kimyasal yapıları büyük oranlarda deęişkenlik göstermektedir ve yapılan çalışmalar analiz edildiğinde, farklı renklere sahip atık sulara uygulanabilecek tek bir yöntem olmadığı gözlemlenmiştir. Boyalar geleneksel biyolojik arıtma yöntemleri (2.32) ile etkili bir şekilde giderilememekte ve içerisinde boya bulunan fabrika atıksularının renk giderimleri için farklı yöntemler gerekmektedir [80].



Şekil 2. 32. Geleneksel atıksu arıtım sistemi

90'lı yıllarda sonlarında atıksulara sadece sedimentasyon gibi ön arıtım işlemleri uygulanmaktaydı [53]. İlerleyen yıllarda atıksu salınım standartları getirildiği için boya tutucu filtre yatakları ve aktif çamur gibi daha etkili yöntemler kullanılmaya

başlanmıştır. Günümüzde atıksulardan boya giderimi, atıksuların fiziksel, biyolojik ve kimyasal işlemlerden geçirilmesi ile yapılmaktadır. Fakat geleneksel atıksu arıtım işlemleri yöntemi yüksek işletme ve bakım maliyeti gerektirdiğinden alternatif giderim arayışlarına girilmiştir ve bu konuda birçok araştırma yürütülmektedir. Son yıllarda birçok başarılı boya giderim araştırılması yapılmasına rağmen, yöntemlerin getirdiği sınırlamalar nedeniyle, ilgili endüstriler tarafından bugün sadece birkaç tanesi büyük ölçeklerde uygulanabilmektedir [81].

Günümüzde sucul ortamlardan rengin giderilmesi için en çok kullanılan yöntemler kimyasal ve fiziksel yöntemlerdir [82]. Elektrokimyasal yöntemlerin maliyetli olmaları [83], biyolojik yöntemlerin ise uzun inkübasyon ve temas süreleri gerektirmeleri nedeniyle bu yöntemlerin gerçek ölçekte uygulanmaları oldukça zordur [80].

2.5.1. Biyolojik Yollarla Boya Giderimi

Biyolojik arıtma işlemlerinin, özellikle atıksulardan boya giderimi için çevre dostu ve ekonomik bir çözüm olduğu düşünülmektedir.

Biyolojik yöntemler ile boya giderimi çeşitli yollarla olmaktadır. Bunlardan ilki, canlı organizmaların metabolik yollar ile sucul ortamda bulunan kirleticileri, doğada zararsız olan karbondioksit ve inorganik tuzlara yıkmasıdır. Boya atıkları çevreye salınmadan önce aerobik ve anaerobik işlemin bir kombinasyonu ile zararsız hale getirilirler. Oksijensiz şartlarda aktive olan spesifik azo-redüktaz enzimi sayesinde, azo boya moleküllerindeki bağlar kırılabilir. Ancak bu işlemin sonunda, hayvanlar için toksik ve mutajenik olan renksiz aminler ortaya çıkmaktadır. Bu moleküllerin giderimleri için oksijen varlığına ihtiyaç vardır [84]. Anaerobik - aerobik işlemlerin sırayla uygulanması boyar maddelerin ortamdan tamamen uzaklaştırılmalarını sağladığından, boya giderimi açısından oldukça verimli ve aynı zamanda maliyeti düşüktür [53]. Fakat seçilen organizmaların sucul ortamda gelişimi için uygun ortam koşulları gerekmektedir ve ortama uygun besin maddeleri ilave edilmelidir. Bunun yanında organizma sayısının boya giderimi yapabilecek seviyeye ulaşması için uzun bir inkübasyon süresi gerekmektedir ve işlem sonucunda organizmalardan oluşan aktif çamur ortaya çıkmaktadır.

Diğer bir yöntem ise, boyar maddelerin bakteri, fungus, alg ya da bitki gibi yaşayan ya da ölü biyokütle içerisinde adsorbe edilmesidir. Fungusların kullanımı ile boya giderimi ve biyoyileştirme, endüstriyel atık arıtımında yaygın olarak kullanılan biyolojik yöntemdir. Funguslar ile sucul ortamlardan adsorpsiyon yolu ile boya giderimi mümkün olduğu gibi metabolik yolla arıtım da yapılabilmektedir. Hidroksil, karboksilat, amino ve fosfat gibi fungusların hücre duvarında bulunan fonksiyonel gruplar kirleticilerin sulu çözeltiden uzaklaştırılmasında önemli rol oynamaktadır. Bu grupları hücre duvarlarında barındıran algler de biyolojik iyileştirmede sıklıkla tercih edilmektedir [85].

Boya gideriminde enzim kullanımı da son zamanlarda popüler hale gelmeye başlamıştır. Çevre koşullarının etkisinin minimuma indirilmesi ve organizmaların büyümesi için gereken besin ihtiyacının da ortadan kaldırılmasıyla yüksek verim elde edilmektedir. Enzimlerin elde edildiği organizmaların büyüme hızlarına bağımlı olunması ve enzimlerin saflaştırılma maliyetleri bu yöntemin en büyük dezavantajlarıdır [86].

Biyolojik yöntemlerle yapılan boya giderimi çalışmaları incelendiğinde birçok bakteri, alg ve fungus türlerinin bu amaçla denendiği belirlenmiştir. Bu çalışmalarda en çok kullanılan ve verimi yüksek olan bakteri türleri, *Corynebacterium*, *Pseudomonas*, *Bacillus*, *Agrobacterium* ve *Streptomyces*; alg türleri *Chara*, *Cladophora*, *Stoechospermum*; fungus türleri ise *Candida*, *Kluyveromyces* ve *Saccharomyces* olarak karşımıza çıkmaktadır.

Biyolojik yolla boya giderim yöntemleri avantaj ve dezavantajları Çizelge 2.3.'te belirtilmektedir. Biyolojik yöntemlerin tamamıyla çevre dostu olmaları ve diğer yöntemlere kıyasla ekonomik olmaları boya giderimi için onları avantajlı konuma geçirse de belirtilen kısıtlamalar nedeniyle biyolojik yöntemlerin büyük ölçekli kullanımları oldukça kısıtlı kalmaktadır.

Çizelge 2.3. Biyolojik yolla boya giderim yöntemleri [85]

Metot	Tanım	Avantajları	Dezavantajları
Mikrobiyal Kütle ile Adsorpsiyon	Boya moleküllerini adsorbe eden canlı organizmaların karışımıdır.	Seçilen boyalar, mikrobiyal biyokütleyle karşı yüksekafiniteye sahiptir.	Tüm boyalar için etkili değildir.
Algler ile Giderim	Algler metabolik faaliyetlerde boya maddeleri substrat olarak kullanır.	Boyaları zararsız hale getirebilir. Ucuz, kolay uygulanabilir ve çevre dostudur.	Uzun inkübasyon süreleri gerektirir.
Aerobik – Anaerobik Arıtım	Aktif çamur, karmaşık boya moleküllerini parçalamaktadır.	Çeşitli boya türlerini ucuz ve etkin bir şekilde gidermek mümkündür.	Tüm boya maddeleri ortadan kaldırılamaz. Yan ürün olarak hidrojen sülfür ve metan oluşumu gözlenir. Geniş inkübasyon alanları gerektirir ve giderim sonrası aktif çamur ortaya çıkar. Uzun zaman gerektirir.
Enzim Kullanımı	Organizmalardan ekstrakte edilmiş enzimler boya giderimi için kullanılır.	Boyalar yüksek verim ile giderilirler. Yan etkileri yoktur ve yeniden kullanılabilirler.	Enzim üretim miktarı değişkenlik gösterir. Enzimlerin organizmalardan ekstrakte edilmeleri gerekir.
Fungal Kültürler	Funguslar boya moleküllerini parçalayarak kendi gelişimleri için kullanırlar.	Aynı anda çeşitli boya türlerini ortadan kaldırılabılır ve esnek bir yöntemdir.	Uzun inkübasyon süreleri gerektirir. Büyük reaktörlere ve azotça sınırlandırılmış ortamlara ihtiyaç vardır.
Çeşitli Organizma Karışımları	Alg, bakteri ve fungusların karışımlarıdır.	Nispeten kısa sürelerde giderim gerçekleşir. Yeniden kullanılabilir. Çeşitli boyalar üzerinde etkili giderim sağlar.	Büyük çapta kullanımları yüksek maliyetler gerektirir.

2.5.2. Kimyasal Yollarla Boya Giderimi

Geleneksel kimyasal boya giderim yöntemleri oksidasyon, elektrokimyasal yıkım, Fenton reaksiyonu ile boya giderimi, ozonlama ve fotokimyasal ışınlamadır. Bahsedilen yöntemlerin ayrı ayrı avantaj ve dezavantajları Tablo 2.4'te gösterilmiştir. Kimyasal boya giderim işlemlerinin çoğu biyolojik ve fiziksel boya giderim işlemlerine göre daha maliyetlidir. Bunun nedeni, kimyasal yöntemlerin özel ekipmanlar gerektirmesi ve bu ekipmanlara güç sağlayan reaktörlerin fazla miktarda

elektrik harcamalarıdır [85]. Aynı zamanda boya giderimi için kullanılan kimyasallar fazla miktarda kullanıldıklarında doğada ikincil bir kirliliğe yol açmaktadır [87].

2.5.3. Fiziksel Yollarla Boya Giderimi

Fiziksel boya giderim yöntemleri genellikle kütle transfer mekanizması prensibine dayanarak gerçekleştirilen yöntemlerdir. Geleneksel olarak uygulanan boya uzaklaştırma yöntemleri adsorpsiyon, koagülasyon/flokülasyon, membran filtrasyonu, iyon değişimi, ışınlama ve ters ozmostur.

Biyolojik ve kimyasal yöntemlere göre daha basit ve çoğu zaman daha etkin olan fiziksel yöntemler, kimyasal yöntemlere göre çok az miktarda kimyasal gerektirmekte veya hiç gerektirmemekte ve herhangi bir canlı organizma içermediğinden biyolojik yöntemlerin gerekliliklerine ihtiyaç duymamaktadır [88]. Ancak geleneksel adsorbans maddeler yüksek verimlilikte giderim yapamamakta, yeni geliştirilen ve büyük oranda giderim yapabilen adsorbans maddeler ise yüksek maliyetlere üretilmektedirler.

2.5.3.1. Membran Filtrasyonu

Membran filtrasyonu, atıksulardan renk giderimi için kullanılacak alternatif bir fiziksel yöntemdir. Kullanımlarının kolay olması, bakım ihtiyaçlarının az olması, giderimin sıcaklıktan etkilenmemesi ve çok yüksek oranda renk giderimi sağlaması bakımından oldukça avantajlı bir yöntemdir. Bu yöntemde boya moleküllerinin içerisinde bulunduğu çözelti yüksek basınç ile membrana doğru gönderilir. Ayırma işlemi zarın iki tarafındaki basınç farkı ile sağlanır [89].

Çizelge 2.4. Kimyasal boya giderim yöntemleri [85]

Metot	Tanım	Avantajları	Dezavantajları
Elektrokimyasal Yıkım	Elektro-çöktürme işlemi boya moleküllerini gidermek için kullanılır.	Fazla miktarda kimyasal kullanımı gerektirmez ve tortu birikmesi olmaz. Çoğu boya için uygun bir yöntemdir.	Fazla elektrik kullanımı ve yüksek maliyet gerektirir. İşlem sonunda giderim oranları diğer yöntemlere göre düşüktür.
Fenton Reaksiyonu	Boya partiküllerini atık sudan çıkarmak için Fenton reaktifi (bir katalizör ve hidrojen peroksit karışımı) kullanılır.	Çoğu boya için uygundur. Suda toksik etki bırakmaz.	Dispers ve vat boyalarını çıkaramaz. Geriye yüksek miktarda demir tortusu kalır. Uzun bir reaksiyon süresi gereklidir ve sadece düşük pH'da çalışır.
Oksidasyon	Boyar maddelerin artırılması için oksitleyici ajanların kullanılmasıdır. Bu ajanlar boya moleküllerini CO ₂ ve H ₂ O'ya parçalar.	Boyaları tamamen gidermektedir. Kısa reaksiyon süresi ve kolay uygulanabilirliği nedeniyle en çok kullanılan kimyasal boya giderim yöntemidir.	Maliyeti yüksektir. Hidrojen peroksit'in aktive edilmesi gerekmektedir ve bu yüzden ortamın pH'sına bağlıdır. Etkili bir giderim için katalizör gerekmektedir.
Fotokimyasal	Boya moleküllerini atık sudan gidermek için ultraviyole ışıkla birleştirilen Fenton reaksiyonudur.	Etkili bir boya giderim yöntemidir. Tortu ve kötü koku oluşumuna sebep olmaz.	Maliyeti yüksektir ve çok sayıda yan ürün oluşturur.

Boya moleküllerinin yüksek oranlarda yakalanmalarını sağlamak amacıyla son derece gelişmiş yeni membranlar üretilmekte ve bu membranların endüstriyel boyutlarda kullanımı hedeflenmektedir [90]. Ümit vaat eden avantajlarına rağmen, başlangıç maliyetinin yüksek olması, membran zarlarının zaman zaman tıkanmaları

ve giderimden sonra bertaraf edilmesi gereken yüksek konsantrasyonlu tortu varlığı bu yöntemin ticarileşmesinin önündeki engellerdir [90]. Bu hali ile, atık sularının az miktarda boya içerdiği tekstil tesislerinde suyun geri dönüşümünü kolaylaştırmak için membran ile filtrasyonu tekniği kullanılabilir [53].

2.5.3.2. Adsorpsiyon

Adsorpsiyon, maddelerin iki faz arasındaki arayüzde (katı-sıvı veya katı-gaz) toplanma ve burada birikerek kütle transfer yolu ile tutunma işlemidir. Sıvı içerisinde çözülmüş olan ve adsorbe edilen maddeye adsorbat, adsorbata adsorbe etmek için kullanılan maddeye ise adsorban denmektedir. Kimyasal ajanların kullanıldığı istisnai durumlar haricinde adsorpsiyon işlemi fiziksel tutunma yolu ile gerçekleşir. Dipol – dipol etkileşimleri, hidrojen bağları ve polar bağlanmalar adsorban madde ile adsorbat arasındaki fiziksel etkileşimi sağlamaktadır. Adsorpsiyon ile, sıvı içerisinde bulunan çözülmüş boya partikülleri adsorban madde tarafından tutularak ortamdan uzaklaştırılır ve bu işlem sonunda sucul ortamda çözülmüş maddenin yoğunluğu azaltılır. Tüm boya molekülleri adsorban üzerine emildikten sonra sistem dinamik dengede durumuna gelmektedir. [85,91].

Su kirleticilerinin giderilmelerine yönelik artan talep, yüksek verimli yeni adsorban maddelerin hızla geliştirilmelerine yol açmıştır. Boya giderimi için denenen bir çok metot arasında adsorpsiyon, hemen hemen her türlü boyar maddeyi giderebilme yeteneğinden dolayı en çok tercih edilen boya giderim yöntemi olarak karşımıza çıkmaktadır [92,93]. Geleneksel biyolojik yöntemlerle atıksulardan yeterince giderilemeyen sentetik boyalar adsorpsiyon yöntemi ile yüksek verimlilikte giderilmekte ve daha yüksek su kalitesinin elde edilmesine yardımcı olmaktadır. Bunun yanında adsorpsiyon yöntemi ile boya giderimi özel bir ekipman ve başlangıçta özel bir işlem gerektirmez, giderim sonrasında ortama ikincil kirleticiler maddeler yayılmaz ve yüksek oranlarda bulunan kirleticiler maddelerin gösterdiği toksik etkiden etkilenmezler [94].

Son yıllarda, sucul ortamlardan boya ve diğer çeşitli kirleticilerin uzaklaştırılmaları için farklı sorbent maddeler laboratuvar koşullarında veya endüstriyel boyutlarda sentezlenmiş ve üretilmiştir. Bunlar arasında aktif karbonun, silika jellerin, zeolitlerin

ve metal organik iskeletlerin geniş yüzey alanlarından dolayı, farklı boyalarda yüksek adsorpsiyon performansı gösterdikleri belirlenmiştir [95]. Metal organik iskeletler ise hedef kirleticiye karşı kolayca modifiye edilerek oldukça yüksek verimle kirleticiyi ortamdan uzaklaştırmak için kullanılmaktadır[89]. Ancak bu tür ileri malzemelerin adsorpsiyon amacıyla kullanımlarında, sentezlenmeleri ve yeniden kullanımları için yüksek maliyetler gerektirmeleri dezavantaj olarak karşımıza çıkmaktadır. Özellikle silika jellerde olduğu gibi çeşitli yan etkilerinin olması ise bunları dezavantajlı hale getirmektedir. Bu nedenle araştırmalar eşit etkinlikte fakat çok daha düşük maliyetli adsorban maddeler üzerine yönelmiştir ve bu tür malzemelerin keşfi ile adsorpsiyon ekonomik ve etkin bir boya giderme yöntemi haline gelmiştir.

3. DENEYSEL ÇALIŞMALAR

3.1. Çalışmada Kullanılan Mikroorganizmaların İzolasyonu, Tanımlanması ve Muhafaza Edilmesi

Çalışmamızda mikrobiyal selüloz üretimini gerçekleştirmek amacıyla Kombucha karışık kültüründe bulunan mikroorganizmalar araştırıldı. Ticari olarak temin edilen Kombucha kültüründeki bakteri ve mayaların izolasyonu için HS (Hestrin – Schramm) Agar [96] ve PDA (Potato Dextrose Agar) kullanıldı. Söz konusu besiyerlerine Kombucha kültüründen alınan 1 ml örnek tek koloni ekimi metoduyla ekildi. İnkübasyon statik etüvde 30°C’de, 24-72 saatte gerçekleştirildi. Bakteri ve maya kültürlerinin saf olarak elde edilebilmesi amacıyla inkübasyon sürecinin ardından makroskopik ve mikroskopik olarak incelenen kolonilerden farklı olduğu belirlenen kolonilerin ard arda aynı besiyerlerine tek koloni metoduyla ekimleri ve aynı koşullarda inkübasyonları gerçekleştirildi. Saf kültürleri elde edilen mikroorganizmaların HS Agar, PDA, M17 Agar, MYP (Mannitol Egg Yolk Polymixine) Agar Besiyerlerinde değerlendirilmesi ile fenotipik ön incelenmeleri ardından tür bazında teşhisleri 16S rRNA analizi ve 18S rRNA analizleri Refgen Gen Araştırmaları ve Biyoteknoloji Merkezi’ne yaptırıldı. Söz konusu kültürler çalışmanın devamında kullanılmak üzere +4°C’de buzdolabında muhafaza edildi.

3.2. Mikroorganizmaların Ekim ve Üretim Koşulları

3.2.1. Zenginleştirme Besiyerine Ekim ve Üretim

Mikrobiyal selüloz üretiminin gerçekleştirilmesi süresince çalışmada kullanılacak olan bakteri ve maya karışık kültürünün ön kültürasyonu için %0,5 siyah çayın 5 dakika demlenmesi ve süzülmesiyle elde edilen besi ortamına %4 oranında glukoz ilave edildi. Besi ortamının pH’sı 0,1M NaOH ve 0,1M HCl ile 6’ya ayarlandı. Sterilizasyon 110°C’de 20 dakika otoklavda gerçekleştirildi. Söz konusu besi ortamına Kombucha kültüründen alınan örnek ekildi. İnkübasyon 30°C’lik statik etüvde 72 saatte gerçekleştirildi.

3.2.2. Mikrobiyal Selüloz Üretimi

Mikrobiyal selüloz üretiminin gerçekleştirilmesi amacıyla ön kültürasyonu yapılmış olan bakteri ve maya kültüründen %0,75 siyah çay kullanılarak hazırlanmış olan ve

%6 oranında glukoz içeren besiyerinin pH'sı 5'e ayarlanarak ekim gerçekleştirildi. Üretim için 30°C'lik statik etüvde 10 gün inkübe edildi.

3.3. Mikrobiyal Selülozun Karakterizasyonu

Üretilen selülozun yüzey görüntüsü taramalı elektron mikroskobu (SEM), selüloz yapısındaki fonksiyonel gruplar ve bu grupların birbiriyle bağlanmaları Fourier Dönüşümlü Kızılötesi Spektroskopisi (FTIR), selülozun kristalizasyonu X-ışını Difraktometresi (XRD) ve termal kararlılığı ise Termogravimetrik Analiz cihazı (TGA) ile karakterize edildi. Söz konusu karakterizasyon işlemleri için Hacettepe Jeoloji Mühendisliği ve HÜNİTEK'ten (Hacettepe Üniversitesi İleri Teknolojiler Uygulama ve Araştırma Merkezi) hizmet alımı yapıldı.

3.4. Mikrobiyal Selüloz Kullanımı ile Boyaların Gideriminin Araştırılması

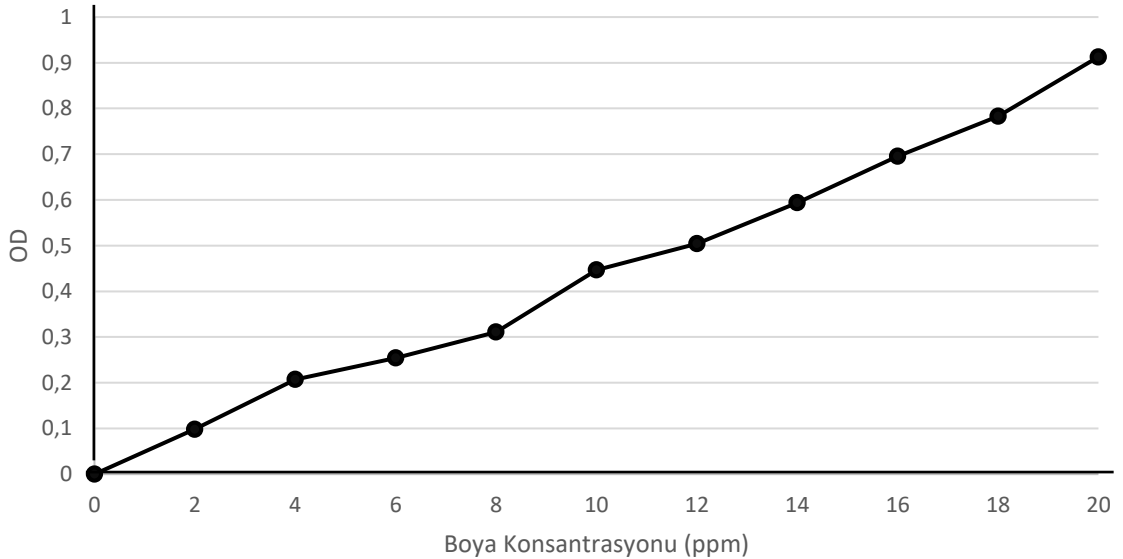
Mikrobiyal selüloz üretiminin gerçekleştirilmesinin ardından elde edilen selüloz steril edilerek farklı boyar maddeler (Malahit Yeşili, Bromfenol Mavisi, Bismark Kahverengisi, Oranj G, Reaktif Mavi 221, Akridin Turuncusu, Trifan Mavisi, Reaktif Yeşil 19, Indigo Karmin) içeren ortamlara %2 oranında eklendi. Boyalar distile suda 50 ppm çözünürlükte hazırlandı. 30°C'de, 150 rpm çalkalama hızında inkübasyon gerçekleştirildi. İnkübasyon öncesi ve sonrası bu ortamlardan alınan örnekler, boyalara uygun olarak belirlenen absorbans değerlerine ayarlanmış spektrofotometrede (Shimatzu-UV 1700) okunarak boya giderimi % değer olarak hesaplandı. Boyaların başlangıç ve son absorbans değerleri arasındaki farkın yüzdesi % boya giderimi olarak değerlendirildi.

Mikrobiyal selülozun boya gideriminde kullanılabilme potansiyeli olduğu boyaların saptanmasının ardından, bu çalışmadan farklı olarak mikrobiyal selüloz ile boya giderimi için pH değeri 4 olan sitrat-fosfat tamponu (McIlvaine tamponu) kullanımı ile seçilen boyalarla çalışma tekrar edildi. Sitrat-fosfat tamponu 0,2M Na₂HPO₄ ve 0,1M sitrik asit kullanılarak McIlvaine yöntemi ile hazırlandı [97].

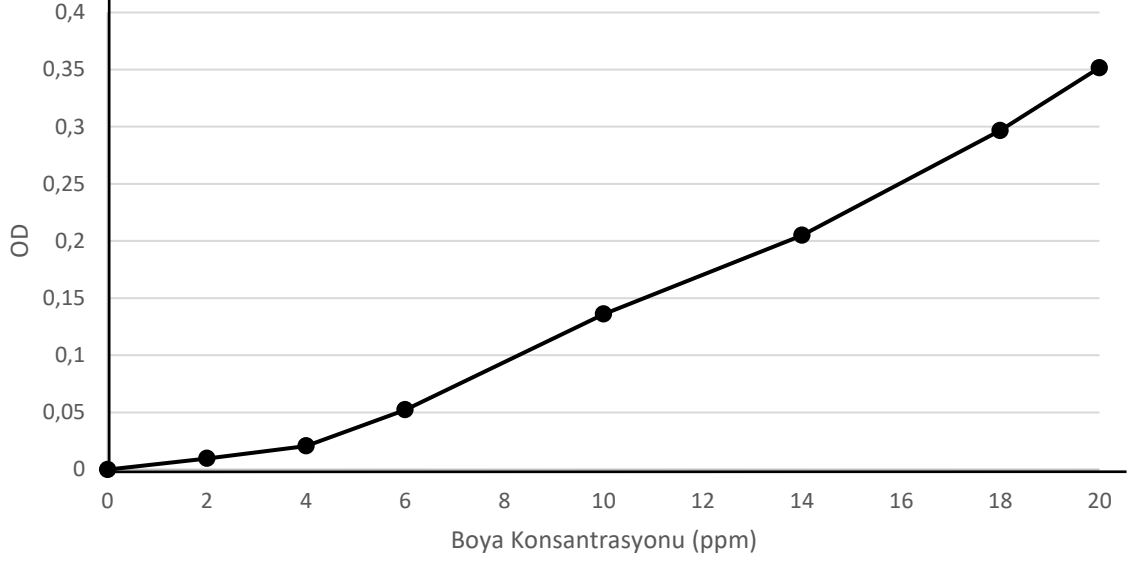
3.4.1. Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu Boyalarının Gideriminin Belirlenmesi

Boya gideriminde hesaplamalar Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu Boyaları ile hazırlanan standart eğriye göre yapıldı. Standart eğri grafikleri hazırlanırken, boyaların en iyi absorbans değeri gösterdikleri dalga boylarında spektrofotometrede ölçüm yapıldı. Trifan Mavisi boyası 615 dalga boyuna, Akridin Turuncusu 489 dalga boyuna ayarlanmış spektrofotometrede (Shimatzu-UV 1700) ölçümleri gerçekleştirildi. Standart eğri her iki boya için de 2 ppm ile 20 ppm arasındaki boya konsantrasyonu değerlerine göre çizildi (Şekil 3.1 ve Şekil 3.2). Giderim işlemleri sonrasında elde edilen OD değerleri standart grafik ile karşılaştırılarak boya konsantrasyonu tespit edildi ve boyaların başlangıç konsantrasyonları ile son boya konsantrasyonları arasındaki farkın yüzdesi % boya giderimi olarak değerlendirildi. Aşağıda belirtilen formüle göre % giderim değerleri hesaplandı;

$$\text{Boya Giderimi} = \frac{\text{Başlangıç Boya Konsantrasyonu} - \text{Son Boya Konsantrasyonu}}{\text{Başlangıç Boya Konsantrasyonu}} \times 100$$



Şekil 3.1. Trifan Mavisi boyası standart eğri grafiği
(597 nm'de ölçülmüştür.)



Şekil 3.2. Akridin Turuncusu boyası standart eğri grafiği
(489 nm'de ölçülmüştür.)

3.5. Mikrobiyal Selüloz ile Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu Boyalarının Gideriminde Farklı Fizyolojik Koşulların Etkisinin Saptanması

Mikrobiyal Selüloz ile Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu Boyalarının Gideriminde adsorpsiyon oranına etki ettiği belirlenen pH, adsorban madde miktarı, boya konsantrasyonu ve temas süresi parametreleri araştırıldı.

3.5.1. Farklı Başlangıç pH Değerlerinin Mikrobiyal Selüloz ile Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu Boyalarının Giderimine Etkisinin Saptanması

Farklı başlangıç pH değerlerinin mikrobiyal selüloz ile Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu boyalarının giderimi üzerine etkisinin araştırılması amacıyla, pH 3 ile 8 değerleri arasında hazırlanan 50 ppm Trifan Mavisi çözeltilerine ve pH 7 ile 11 değerleri arasında hazırlanan 50 ppm Akridin Turuncusu çözeltilerine %2 selüloz ilave edildi. Hazırlanan ortamlar 30°C'de 150 rpm çalkalama hızında inkübasyona bırakılarak 4. saat, 8. saat ve 24. saat sonunda örnekler alınarak boya giderim yüzdeleri belirlendi.

3.5.2. Farklı Mikrobiyal Selüloz Miktarlarının Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu Boyalarının Giderimine Etkisinin Saptanması

Mikrobiyal selüloz miktarlarının Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu boyalarının giderimi üzerine etkisinin belirlenmesi amacıyla, pH değeri 4'e ayarlanan 50 ppm Trifan Mavisi ve pH değeri 10'a ayarlanan 50 ppm Akridin Turuncusu içeren

ortamlara farklı miktarlarda (%0,25, %0,5, %1, %1,5, %2, %2,5) mikrobiyal selüloz eklenerek 30°C'de 150 rpm çalkalama hızında inkübasyona bırakıldı. 4. saat, 8. saat ve 24. saat sonunda örnekler alınarak boya giderim yüzdeleri belirlendi.

3.5.3. Farklı Başlangıç Boya Konsantrasyonlarının Mikrobiyal Selüloz ile Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu Boyalarının Giderimine Etkisinin Saptanması

Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu boyaalarının başlangıç konsantrasyonlarının mikrobiyal selüloz ile boyanın giderimi üzerine etkisinin belirlenmesi amacıyla, 25ppm, 50ppm, 75ppm, 100ppm, 125ppm, 150ppm değerlerinde Trifan Mavisi çözeltileri hazırlanarak pH değerleri 4'e ve 25ppm, 50ppm, 75ppm, 100ppm, 150ppm, 200ppm değerlerinde Akridin Turuncusu çözeltileri hazırlanarak pH değerleri 10'a ayarlandı. Trifan Mavisi içeren ortamlara %2 selüloz, Akridin Turuncusu içeren ortamlara %1,5 selüloz ilave edilerek, hazırlanan örnekler 30°C'de 150 rpm çalkalama hızında inkübasyona bırakıldı. 4. saat, 8. saat ve 24. saat sonunda örnekler alınarak ortamlardaki boya giderim yüzdeleri belirlendi.

3.5.4. Farklı Temas Sürelerinin Mikrobiyal Selüloz ile Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu Boyalarının Giderimine Etkisinin Saptanması

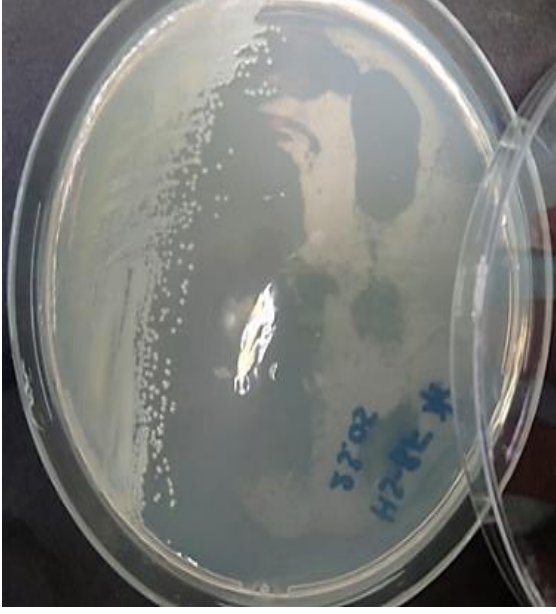
Farklı temas sürelerinin mikrobiyal selüloz ile Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu boyaalarının giderimine etkisinin belirlenmesi amacıyla, 50 ppm çözünürlükte pH'4'te hazırlanan Trifan Mavisi ortamına %2 selüloz ve 75 ppm çözünürlükte pH 10'da hazırlanan Akridin Turuncusu ortamına %1,5 selüloz ilave edilerek 30°C'de 150 rpm çalkalama hızında inkübasyona bırakıldı. 0,5, 1, 2, 3, 4, 6, 8, 12 ve 24. saatler sonunda örnekler alınarak ortamlardaki boya giderim yüzdeleri belirlendi.

4. SONUÇLAR VE TARTIŞMA

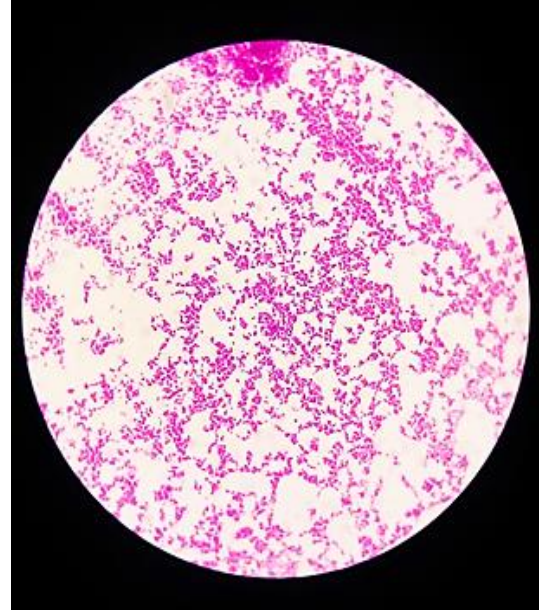
Doğada yaygın olarak bulunan doğal polimerlerden biri olan selüloz, bitkisel, kimyasal, enzimatik ve mikrobiyal yolla elde edilen önemli bir materyaldir. Söz konusu sentez yolları arasında mikrobiyal yolla selüloz üretimi düşük maliyetli, hızlı, sürekli ve çevre dostu olması nedeniyle daha çok tercih edilen bir yöntem olarak karşımıza çıkmaktadır. Günümüzde, ekonomik bir hammadde olan çay ve Kombucha kültürü ile mikrobiyal selüloz üretimi gerçekleştirilmektedir. Bu bağlamda, çalışmamızda Kombucha kültürü içerisinde bulunan mikroorganizmalar saf halde izole edildi. Söz konusu suşların genotipik analizlerinin yapılması ile tür bazında tanımlama gerçekleştirildi. Üretilen mikrobiyal selülozun, canlılara oldukça toksik, karserojenik ve mutajenik etkiler gösteren boyaların gideriminde kullanılabilirliği araştırıldı. Bu bağlamda, polimer kullanımı aracılığıyla kirleticilerin gideriminde hızlı ve verimli bir yöntem geliştirilmeye çalışılmıştır.

4.1. Çalışmada Kullanılan Mikroorganizmaların İzolasyonu ve Tanımlanması

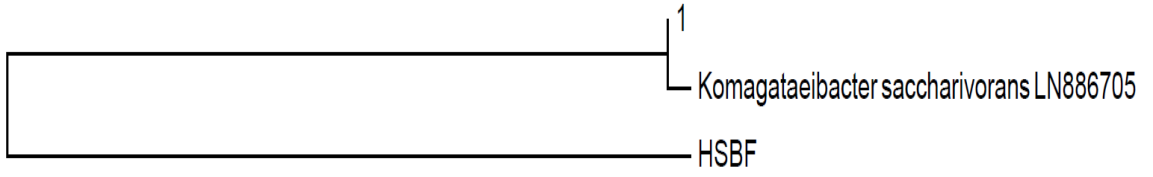
Ticari olarak temin edilen Kombucha kültüründeki bakteri ve mayaların izolasyonu için Hestrin- Schramm Agar ve Potato Dextrose Agar'a ekilmesi ardından 37°C'lik statik etüvde 30°C'de, 24-72 saatte üretimi gerçekleştirildi. Mikroorganizmaların tanımlanması için morfolojik inceleme (Gram boyama ve Metilen Mavisini boyama sonrası ışık mikroskobu ile inceleme, stereo mikroskop ile makroskopik inceleme) sonrası, HS Agar (Hestrin- Schramm Agar), PDA (Potato Dextrose Agar), M17 Agar, MYP (Mannitol Egg Yolk Polymyxine) Agar besiyerlerinde fenotipik ön değerlendirilen kültürlerin 16S rRNA ve 18S rRNA analizleri Refgen Gen Araştırmaları Merkezi'ne yaptırıldı. Sonuç olarak Kombucha kültürü içerisinde yer alan bakteri *Komagataeibacter saccharovorans* LN886705 olarak tanımlandı (Şekil 4.1). Bunun yanı sıra söz konusu karışık kültürde aynı cins içerisinde yer alan farklı iki türe ait mayaların *Brettanomyces bruxellensis* MH393498 (Şekil 4.2) ve *Brettanomyces anomalus* KY103303 (4.3) olduğu belirlendi.



(a)



(b)



0.2

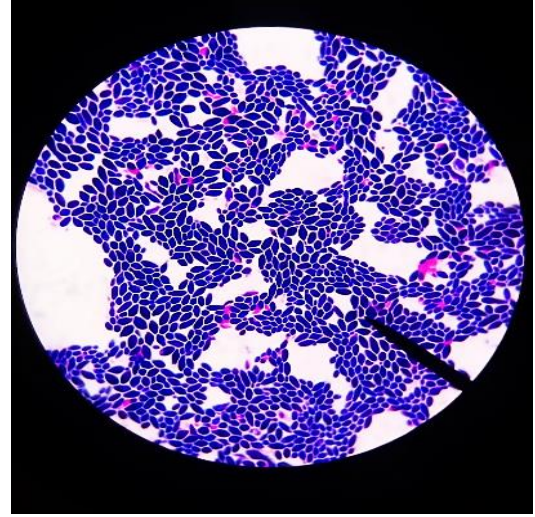
(c)

Şekil 4.1. *Komagataeibacter saccharivorans* LN886705

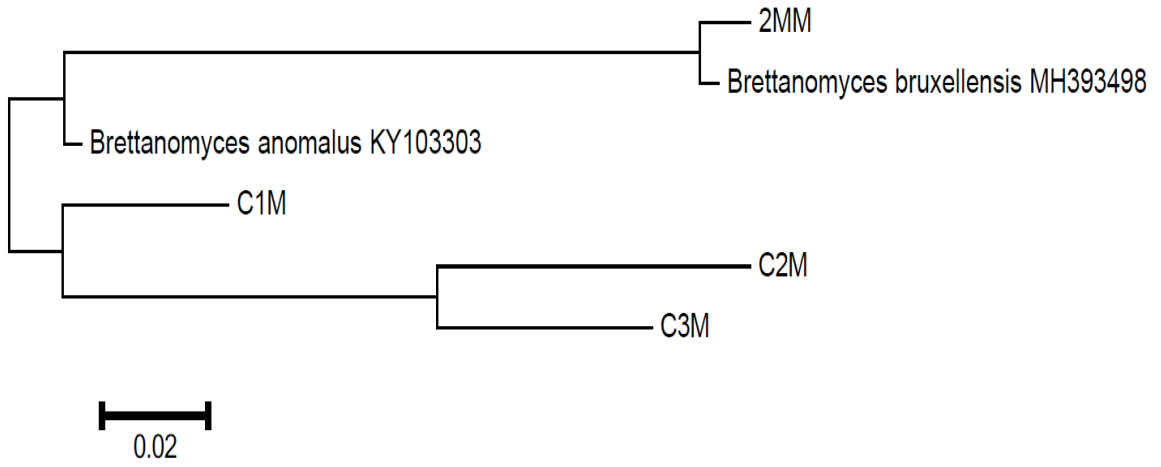
*a. HS Agar'da morfolojik görüntü, b. Gram boyama sonrası mikroskopik inceleme,
c. Filogenetik analiz



(a)



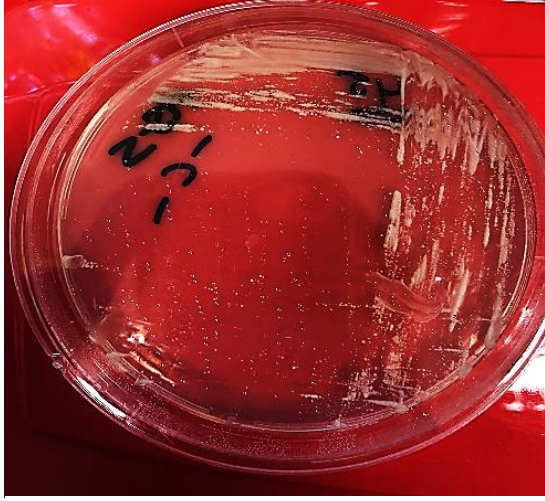
(b)



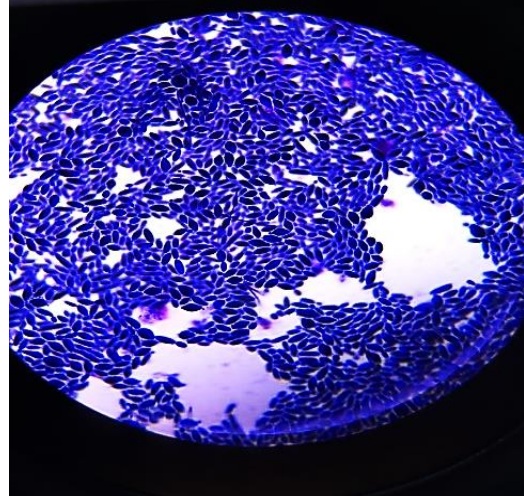
(c)

Şekil 4.2. *Brettanomyces bruxellensis* MH393498

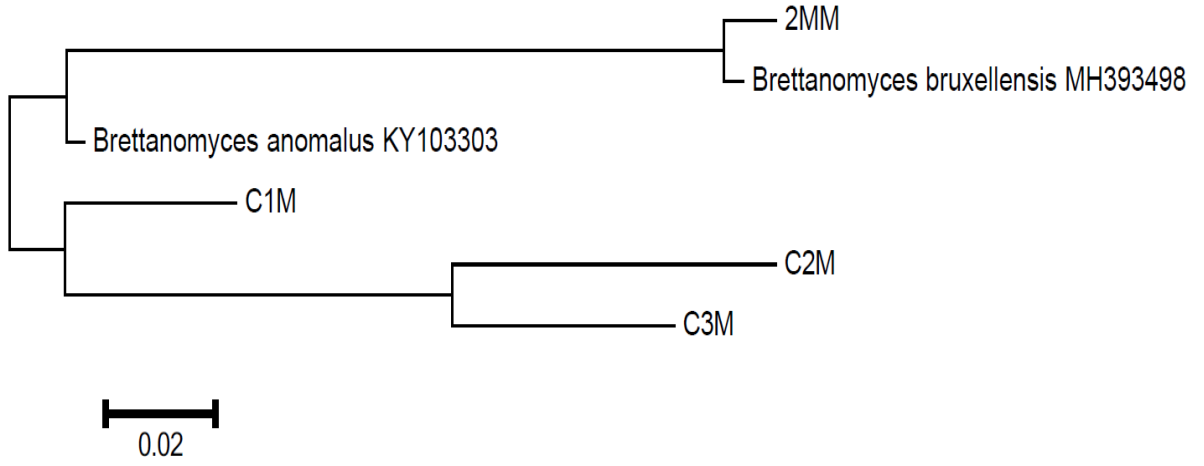
*a. PDA'da morfolojik görüntüsü, b. Metilen Mavisini ile boyama sonucu mikroskopik inceleme, c. Filogenetik analiz



(a)



(b)



(c)

Şekil 4.3. *Brettanomyces anomalous* KY103303

*a. HS Agar'da morfolojik görüntüsü, b. Metilen Mavisi ile boyama sonucu mikroskopik inceleme, c. Filogenetik analiz

4.2. Mikrobiyal Selülozun Üretimi ve Karakterizasyonu

Mikrobiyal selüloz üretimi için, pH'sı 5'e ayarlanmış çay besiyerine (%0,75 demlenmiş çay, %6 glukoz) 3 günlük aşı kültüründen ekim yapıldı. Elde edilen mikrobiyal selülozlar 0,12M NaOH'da kaynatılarak bakterilerden ve besiyeri kalıntılarından uzaklaştırıldı (Şekil 4.4).



(a)



(b)

Şekil 4.4. Çalışma sonucunda üretilen mikrobiyal selüloz

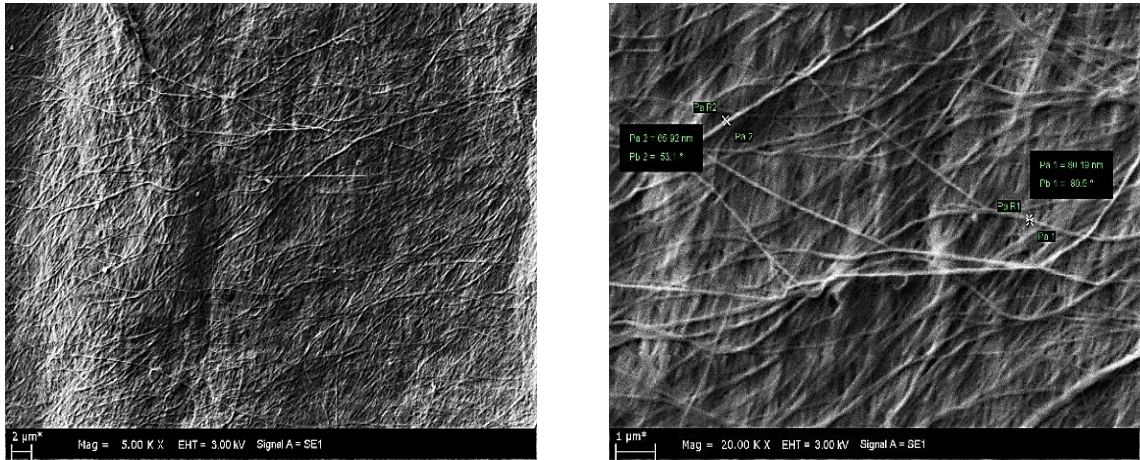
*a. Çay besiyerinde (%0,75 çay ve %6 glukoz) 10 gün inkübasyon sonucu oluşan selüloz, b. Oda sıcaklığında kurutulan selüloz (solda) ve 0,12M NaOH'da yıkanarak kurutulan selüloz (sağda)

Çalışmamızda kullanılmış olan Kombucha çayı Doğu Avrupa ve Asya'da geleneksel olarak tüketilen fermente siyah çaydır. İçeceğin, antimikrobiyal, antioksidan, antikanserojenik özelliklerinin yanı sıra mide ülseri ve yüksek kolesterol tedavilerinde başarılı etkileri görülmüş ve bu nedenle son yıllarda ülkemizde ve tüm dünyada popüler olmuştur [98,99]. Karbon kaynağı ile karıştırılarak hazırlanan siyah çay selüloz tabakası ile fermente edilir. Kombucha çayı karışık kültürü içerisinde etanol fermentasyonu yapan mayalar, organik asit fermentasyonu yapan bakteriler ve asetat oluşturmak için etanol oksidasyonu yapan bakteriler yer almaktadır. Asetik asit üretimi sırasında bakteriler, sekonder metabolit ürünü olarak kendilerine iskelet sağlayan selüloz yapılı biyofilm tabakası oluşturmaktadırlar. Fermentasyon süreci sonunda oldukça sağlıklı bir içecek ve sentetik besiyerlerine kıyasla maliyeti daha az olan yöntemle mikrobiyal selüloz elde edilmektedir. Bu bağlamda, çalışmamızda

mikrobiyal selüloz üretimini düşük maliyetle gerçekleştirirken oldukça sağlıklı ve yararlı bir içecek de elde etmiş olduk.

Çalışmamızın bu aşamasında üretimini gerçekleştirdiğimiz mikrobiyal selüloz görüntüsü taramalı elektron mikroskobu (SEM), selüloz yapısındaki fonksiyonel gruplar ve bu grupların birbiriyle bağlanmaları Fourier Dönüşümlü Kızılötesi Spektroskopisi (FTIR), selülozun kristalizasyonu X-ışını Difraktometresi (XRD) ve termal kararlılığı ise Termogravimetrik Analiz cihazı (TGA) ile karakterize edildi. Aynı zamanda temas açısı ölçümü (contact angle) analizi yaptırıldı. Ancak mikrobiyal selülozun yüksek hidrofilik özellikte olduğu belirlendi.

Çalışmada üretilen mikrobiyal selülozun görüntülenme işlemi taramalı elektron mikroskobu (SEM) mikroskobu ile yapıldı. Söz konusu görüntüleme işlemi için Hacettepe Üniversitesi Jeoloji Bölümü'nde yer alan Elektron Mikroskopi Laboratuvar'ından hizmet alımı yapıldı. Selülozun SEM görüntüsü Şekil 4.5'te gösterilmektedir.

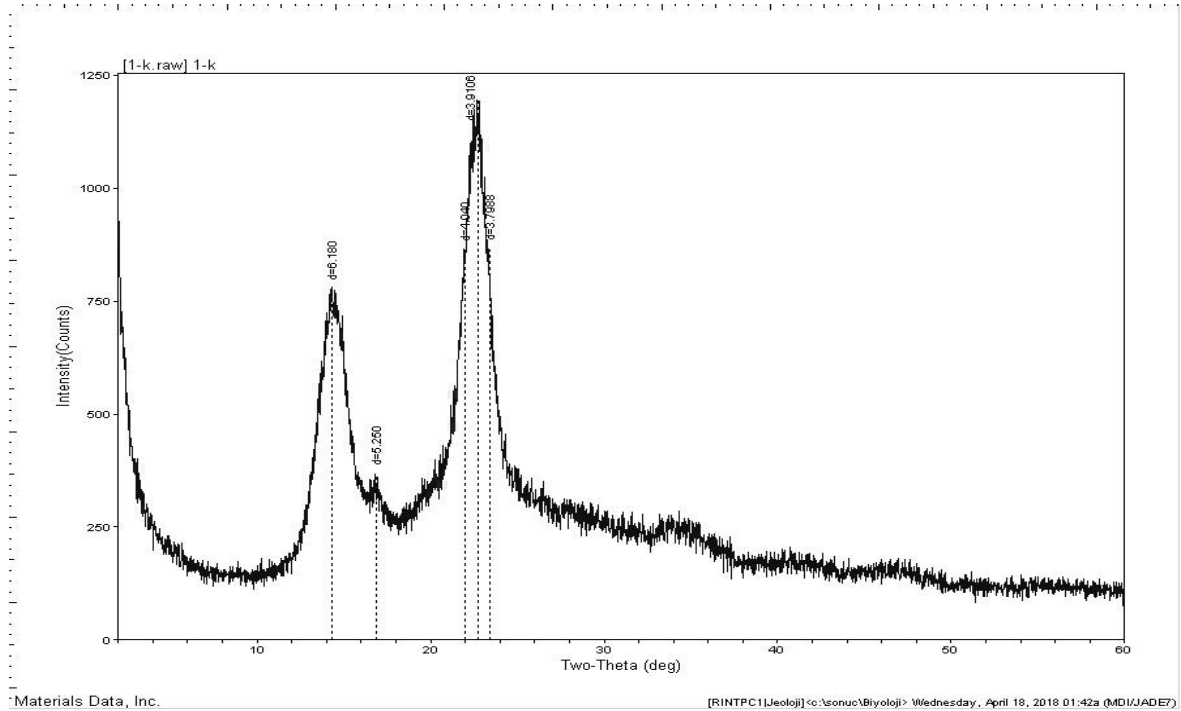


Şekil 4.5. Mikrobiyal selülozun taramalı elektron mikroskobu görüntüsü

Çalışmamızda, selülozun kristalizasyonunun belirlendiği XRD analizinde elde edilen sonuçlar literatür ile karşılaştırıldığında 14.4° , 16.88° 22.7° 'lerde görülen pikler, oluşan bakteriyel selülozun tip 1 selüloz yapısında olduğunu göstermektedir. Kırınım noktaları, tip 1 selülozun farklı varyantları olan selüloz 1 α ve selüloz 1 β ile bağlantılıdır (14.4° 'teki 100I α , 110I β ile 010I β ve 22.7° 'deki 110I α ile 200I β). Bu pikler doğal selüloz tip 1'in düzlemlerarası boşluklarının ayırt edici özelliğini

yansıtılmaktadır. Buna ek olarak, kristalizasyon: $(I_{002} - I_{am}) / I_{002}$ formülüne göre hesaplanmış [100] ve %77,99 bulunmuştur ($I_{002}=1991,67$; $I_{am}=438,33$) (Şekil 4.6).

Çalışmamızda elde edilen selülozun yapısındaki fonksiyonel gruplar ve bu grupların birbiriyle bağlanmaları Fourier Dönüşümlü Kızılötesi Spektroskopisi (FTIR) taraması ile incelenmiştir. Söz konusu analize göre, farklı bakterilerin ürettiği bakteriyel selülozların FTIR sonuçları, bakteriyel selüloz ile özdeşleşmiş 3350, 2890, 1650 ve 1060 cm^{-1} değerlerinde pikler vermektedir. 3350 bandı, tip 1 selülozun O-H ve N-H bağlanmalarındaki esnemeyi, 3240 bandı ise O-H grupları arasındaki H bağlarının gerilme titreşimlerini gösterir. CH_2 gruplarındaki C-H bağlanmaları 2890 bandında görülürken 1650 bandındaki pik absorbe edilmiş sudaki O-H bağlanmalarını göstermektedir. 1425 ile 1160 arasında görülen sıralı pikler tip 1 selülozun karakteristik dalgalanmaları olup simetrik CH_2 moleküllerinin katlanmalarını ve 1060 bandındaki güçlü pik C-O-C ve C-O-H gruplarını göstermektedir (Şekil 4.7).

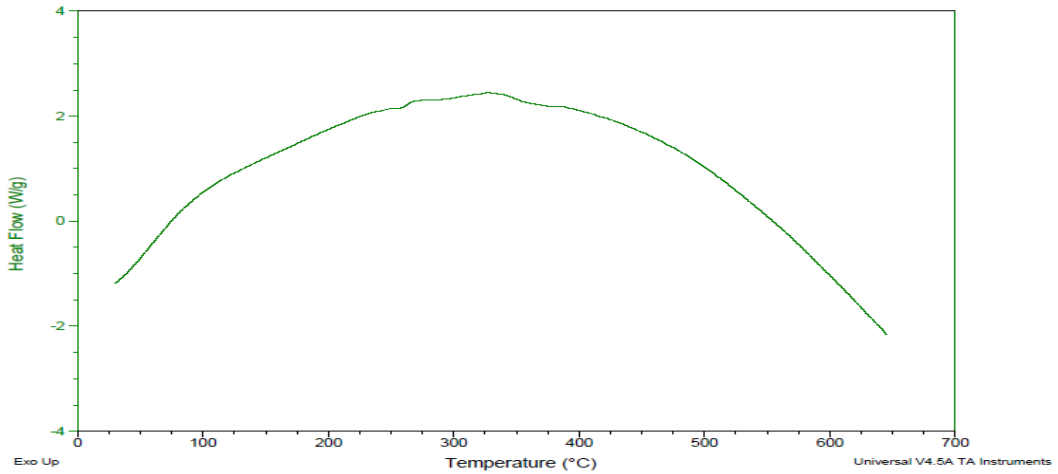


Şekil 4.6. Mikrobiyal selüloz kristalizasyonunun XRD ile analizi

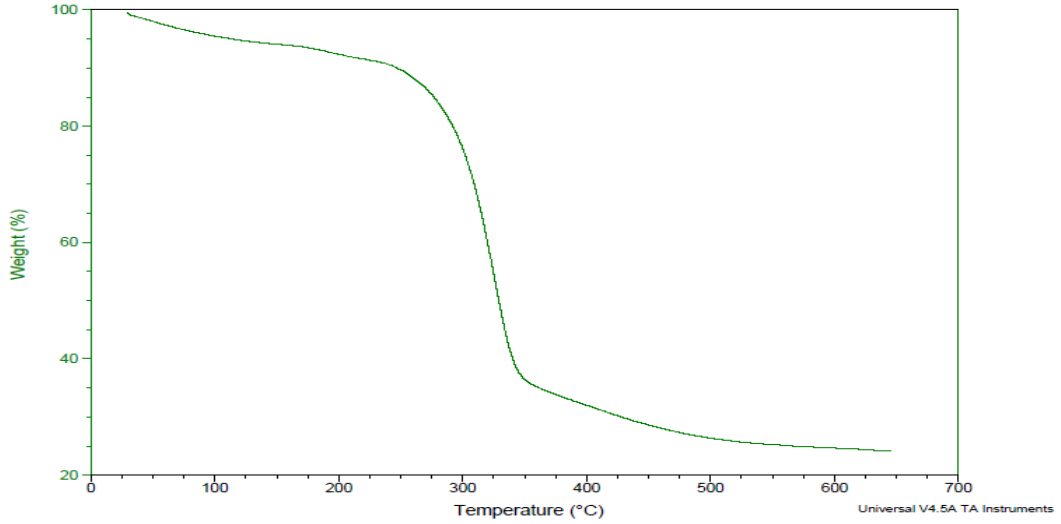


Şekil 4.7. Mikrobiyal selülozun Fourier Dönüşümlü Kızılötesi Spektroskopisi (FTIR)

TGA metoduyla elde edilen verilere göre üretilen mikrobiyal selülozun içeriğindeki suyun buharlaşması nedeniyle %6-7'lik ilk kütle kaybı 150°C'ye kadar çıkan sıcaklıkta görülmektedir. 225°C ile 375°C arasındaki düşük sıcaklık derecelerinde de ikinci kayıp gerçekleşmiştir. Bu kayıp hidroksil ve hidroksi metil gibi küçük moleküler fragmentlerin yıkılmasından kaynaklanmaktadır. Son kütle kaybı ise 350°C ile 650°C arasındaki yüksek sıcaklıklarda olmuştur ve polimerik zincirler ile altı karbonlu halkasal yapı olan piranların yıkılmasından kaynaklanmaktadır. Toplam kütle kaybı, bakteriyel selülozun kütlesinin yaklaşık %80'ine denk gelir ve dekompozisyon ve depolimerizasyon gibi termal bozulmalarla ilişkilendirilmektedir (Şekil 4.8a ve Şekil 4.8b).



(a)



(b)

Şekil 4.8. Mikrobiyal selülozun TGA analizi

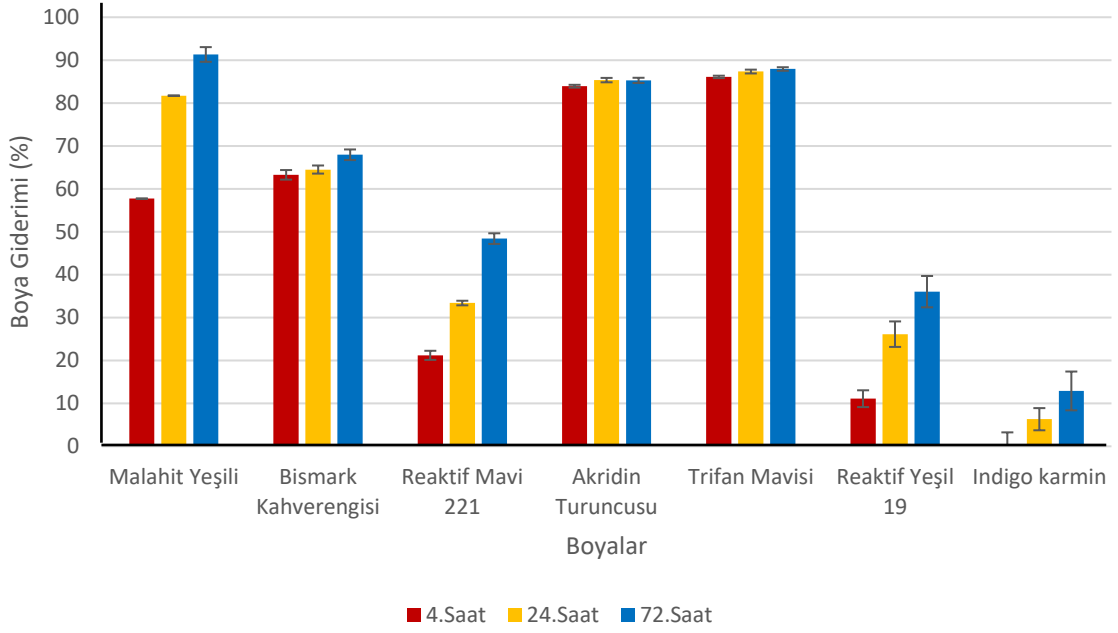
*a. TGA-Heat Flow analizi, b. TGA-Weight analizi

4.3. Mikrobiyal Selüloz Kullanımı ile Boya Gideriminin Araştırılması

Çalışmamızın bu kısmında elde ettiğimiz mikrobiyal selülozun çeşitli boya ların gideriminde kullanılabilirliği araştırıldı. Bu amaç doğrultusunda ürettiğimiz selüloz parçaları eşit miktarlarda, farklı boya ları (Malahit Yeşilli, Bromfenol Mavisi, Bismark Kahverengisi, Oranj G, Reaktif Mavi 221, Akridin Turuncusu, Trifan Mavisi, Reaktif Yeşil 19, Indigo Karmin) içeren ortamlara ilave edildi.

Çalışmada, distile suda 50 ppm boya içeren ortamlara %2 oranında selüloz parçaları eklenerek, 30°C'de 150 rpm çalkalama hızında inkübasyona bırakıldı. 4.saat, 24.saat ve 72.saatte boya çözeltilerinden örnekler alınarak boya giderim yüzdeleri belirlendi.

Çalışmamızın sonuçlarına göre, Malahit Yeşilli, Bismark Kahverengisi, Akridin Turuncusu ve Trifan Mavisi boya larının gideriminde ürettiğimiz mikrobiyal selülozun kullanılabilme potansiyeli olduğu görüldü. Reaktif Mavi 221 boyasında ancak %50'lere varan boya giderimine ulaşılırken, Reaktif Yeşil 19 ve İndigo Karmin boya larında çok daha az giderim olduğu belirlendi (Şekil 4.9). Bromfenol Mavisi ve Oranj G boya larında ise boya giderimi görülmeydi.

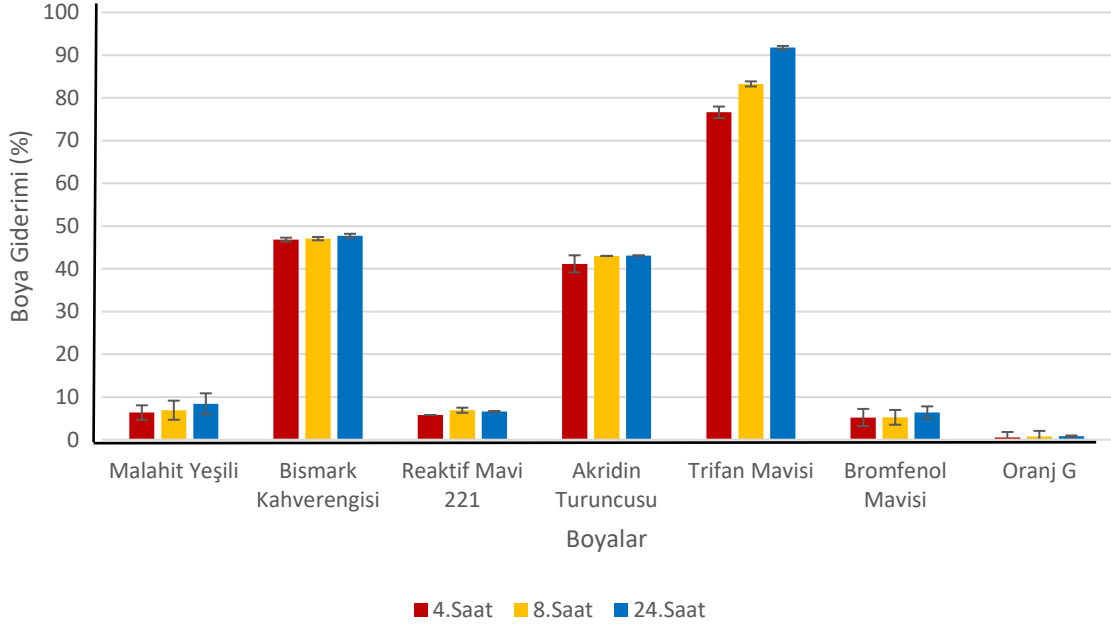


Şekil 4.9. Mikrobiyal selüloz ile çeşitli boyaların gideriminin belirlenmesi

*İnkübasyon 150 rpm çalkalama hızında ve 30°C'de %2 selüloz miktarı ile gerçekleştirilmiştir. Sonuçlar 3 çalışmanın ortalamasıdır.

Mikrobiyal selüloz ile boya giderim potansiyelleri olan boyaların belirlenmesinin ardından çalışmaya, ilk çalışmadan farklı olarak, pH 4'teki McIlvaine tamponu içerisinde hazırlanmış 50 ppm çözünürlükteki boya ortamları kullanılarak devam edildi. İlk çalışmada boya giderim oranları belirlenemeyen Bromfenol Mavisi ve Oranj G boya da bu çalışmada tekrar denendi. %2 oranında selüloz ilave edilerek 30°C'de 150 rpm çalkalama hızındaki inkübatörde bırakıldı. Bu çalışmada 4.saat, 8.saat ve 24.saatte boya çözeltilerinden örnekler alınarak boya giderim yüzdeleri belirlendi.

Çalışmanın sonuçları karşılaştırıldığında, Trifan Mavisi boyasının mikrobiyal selüloz ile giderim oranının diğer boyalara göre belirgin şekilde fazla olduğu görüldü. Ayrıca Bismark Kahverengisi ve Akridin Sarısı boya da mikrobiyal selüloz ile giderimlerinin yapılabileceği belirlendi (Şekil 4.10). Çalışmalara bir anyonik boya olan Trifan Mavisi ve bir katyonik boya olan Akridin Turuncusu ile devam edildi.



Şekil 4.10. McIlvane tamponunda hazırlanmış çeşitli boya türlerinin mikrobiyal selüloz ile giderimlerinin belirlenmesi

*İnkübasyon 150 rpm çalkalama hızında ve 30°C'de %2 selüloz oranı ile gerçekleştirilmiştir. Sonuçlar 3 çalışmanın ortalamasıdır.

4.4. Mikrobiyal Selüloz ile Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu Boyalarının Gideriminde Farklı Fizyolojik Koşulların Etkisinin Saptanması

Birçok endüstriyel alanda kullanımı olan ve özellikle tekstil sanayisinde yüksek miktarlarda kullanılan boya maddeler aynı zamanda önemli çevre kirleticilerinden birisidir. Boyama işlemleri sonucunda arta kalan boya maddeler, fabrika atık sularıyla birlikte çevrede bulunan sucul ortamlara karışmakta ve bu ortamlarda kirliliklere yol açmaktadır. Bu kirlenme sadece fabrika çevresi ile sınırlı kalmamakta, sucul ortamlar arasında hızla yayılmakta ve sucul habitatlarda yaşayan canlılar üzerinde toksik, karsinojenik ve mutajenik etkiler göstermektedir. Estetik açıdan da hoş olmayan görüntülere yol açan boya maddelerinin sucul ortamlardan hızlı, ekonomik ve daha sonrasında bu ortamlarda yan etki bırakmayacak yöntemler ile uzaklaştırılmaları gerekmektedir. Fiziksel ve kimyasal yöntemlerin ekonomik olmamaları ve yan etkilerinin bulunması, biyolojik yöntemlerin kullanımında ise uzun sürelerle ihtiyaç duyulması sebebi ile kontamine olmuş alanların temizlenmesinde alternatif yöntem arayışları halen devam etmektedir. Adsorban maddelerin kullanımı kontaminasyonu gidermede en hızlı yöntemlerden birisidir. Bu adsorban maddelerden biri olan mikrobiyal selülozun kullanımdan sonra çevrede herhangi bir

yan etki bırakmayacak olması sucul ortamlardan boya gideriminde tercih edilen alternatif bir yöntem olarak karşımıza çıkmaktadır.

Çalışmamızda, ürettiğimiz mikrobiyal selüloz ile Trifan Mavis ve Akridin Turuncusu boyaalarının yüksek giderim oranına ulaştığı optimum fizyolojik koşulların belirlenmesi amacıyla, başlangıç pH değerleri, mikrobiyal selüloz miktarları, boya konsantrasyonları ve temas süreleri parametrelerinin boya giderimine etkileri araştırıldı.

4.4.1. Farklı Başlangıç pH Değerlerinin Trifan Mavis ve Akridin Turuncusu Boyalarının Mikrobiyal Selüloz ile Giderimine Etkisinin Saptanması

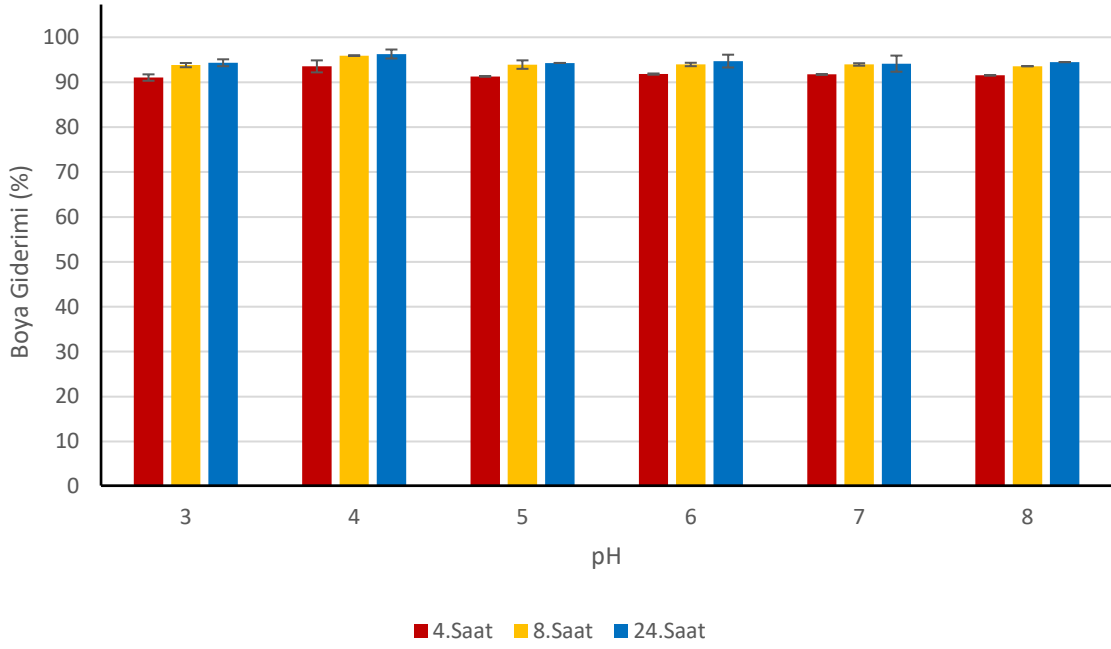
Adsorpsiyon kapasitesini etkileyen önemli parametrelerden birisi absorban maddenin içerisinde bulunduğu ortamın pH değeridir. Ortam pH'sı hem absorban maddenin yüzey yükünü hem de boyar maddenin iyonik yükünü değiştirerek giderilen boya miktarını büyük oranda etkilemektedir. Boya çözeltisinin başlangıç pH değeri 7'nin üzerinde olduğunda mikrobiyal selüloz yüzeyinde bulunan glukuronik asit ve hidroksil grupları iyonize duruma geçtiğinden, mikrobiyal selüloz yüzeyi negatif yükü yüklenmektedir. Böylece mikrobiyal selülozun katyonik boyalara karşı ilgisi artmaktadır. Asidik ortamlarda ise pH değerinin azalması ile mikrobiyal selüloz yüzeyi pozitif yükü yüklenmekte ve anyonik boyalara karşı ilgili hale gelmektedir [101–103].

Çalışmamızda, bir anyonik boya olan Trifan Mavis boyasına uygun başlangıç pH değerinin belirlenmesi amacıyla mikrobiyal selüloz, 3,0 ile 8,0 arasındaki değişen pH değerlerinde hazırlanmış 50 ppm konsantrasyondaki Trifan Mavis boya ortamlarına eklenerek 30°C'de 150 rpm çalkalama hızında inkübe edildi. 4., 8. ve 24. saatler sonunda ortamlardan alınan örnekler incelenerek boya giderim yüzdeleri belirlendi. 4.saat sonunda tüm pH değerlerinde %90'nın üzerinde boya giderimi olduğu ancak pH 4 değerinde Trifan Mavis boya giderim oranının %93 seviyesine ulaştığı saptandı. Mikrobiyal selüloz ile Trifan Mavis boyası giderim oranının en yüksek olduğu pH 4 değerinde 8.saat sonunda %96'ya ulaştığı, söz konusu pH değerinin altında ve üzerinde kalan pH değerlerinde de Trifan Mavis boyası gideriminin %90'nın üzerinde olduğu belirlendi (Şekil 4.11). Bu bağlamda, araştırılan geniş aralıktaki pH değerlerinin her birinde mikrobiyal selüloz ile Trifan Mavis boyası

gideriminin gerçekleştirilebileceği belirlendi. Mikrobiyal selüloz ile Trifan Mavisi boyasının giderimi için en uygun pH değeri 4 seçilerek çalışmaya bu pH değeri ile devam edildi.

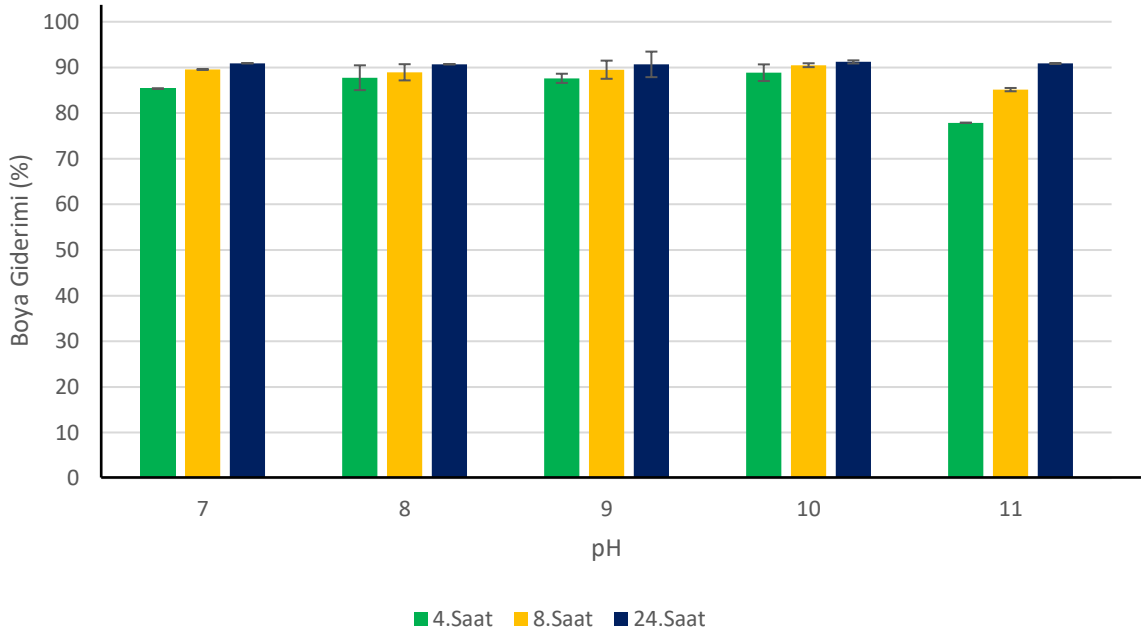
Katyonik boya olan Akridin Turuncusu boyasının giderimine en uygun pH değerinin belirlenmesi amacıyla, pH 7 ile 11 arasında hazırlanmış 50 ppm konsantrasyondaki Akridin Turuncusu boya ortamlarına mikrobiyal selüloz eklenerek 30°C'de 150 rpm çalkalama hızında inkübe edildi. 4., 8., 24. saatler sonunda ortamdan alınan örnekler incelenerek boya giderim yüzdeleri belirlendi. 4. saatin sonunda pH 7 ile 10 arasındaki tüm pH değerlerinde giderim oranının %85'i geçtiği ancak pH 10 değerinde %92 ile en yüksek giderim oranına ulaşıldığı görüldü. Ortamın pH değerinin daha fazla artmasının giderim oranında ters etkiye neden olduğu ve pH 11 değerinde giderim oranının %78'e düştüğü belirlendi. Zamana bağlı artışla birlikte 8. saatin sonunda pH 7 ile 10 arasındaki ortamlarda giderim oranlarının %90'lara ulaştığı, pH 11 değerinde de artışla birlikte giderim oranının %85 olduğu belirlendi. 24. saatin sonunda pH 11 değeri hariç diğer pH değerlerinde Akridin Turuncusu boyasının giderim oranlarında daha fazla artış olmadığı ve 8. saatte giderimin büyük oranda tamamlandığı tespit edildi (Şekil 4.12).

Literatürde, mikrobiyal selüloz ile Trifan Mavisi boyası giderim çalışmamıza benzer olarak anyonik boyalarla yapılan mikrobiyal selüloz ile boya giderim çalışmalarında, en etkin boya gideriminin asit fuksin [101] ve reaktif kırmızı 120 [103] boya için pH 1,5'de, direkt mavi 15 boyası için pH 3'de [102] olduğu belirtilmektedir. Aktif karbon/bakteriyel selüloz ile yapılan bir diğer çalışmada ise, pH 3 değerinin Metil Turuncusu gideriminde en etkili pH değeri olduğu belirlenmiştir [104]. Çalışmamızda bulunan sonuçlara paralel olarak asidik pH değerlerinde anyonik boyaların mikrobiyal selüloz tarafından giderim oranlarının yüksek seviyelerde olduğu, bazik pH değerlerinde ise bu oranının nispeten daha düşük olduğu görülmektedir.



Şekil 4.11. Farklı başlangıç pH değerlerinin mikrobiyal selüloz ile Trifan Mavis boyası giderimi üzerine etkisi

*İnkübasyon 150 rpm çalkalama hızında ve 30°C'de gerçekleştirilmiştir. Boya çözeltileri 50 ppm başlangıç boya konsantrasyonunda hazırlanmıştır ve %2 oranında selüloz kullanılmıştır. Sonuçlar 3 çalışmanın ortalamasıdır.



Şekil 4.12. Farklı başlangıç pH Değerlerinin mikrobiyal selüloz ile Akridin Turuncusu boyası giderimi üzerine etkisi

*İnkübasyon 150 rpm çalkalama hızında ve 30°C'de gerçekleştirilmiştir. Boya çözeltileri 50 ppm başlangıç boya konsantrasyonunda hazırlanmıştır ve %2 oranında selüloz kullanılmıştır. Sonuçlar 3 çalışmanın ortalamasıdır.

Akridin Turuncusu giderim çalışmamıza benzer olarak literatürde yapılan çalışmalarda, katyonik boya olan Akridin Turuncusu boya gideriminin bazik pH değerlerinde daha verimli gerçekleştiği bulunmuştur. TiO₂ ile yapılan Akridin Turuncusu giderim çalışmasında pH 3 ile 9 arasında değerler denenmiş, 4.saat sonunda pH 9 değerinde %82 giderim görülürken pH 3 ve 6 değerlerinde giderim oranı %70'lerde kalmıştır. 8.saat sonunda giderim oranları %90'a yaklaşmış ancak pH 9 değerine ayarlanmış ortamdaki giderim oranının diğer pH değerlerindeki ortamlara göre daha yüksek olduğu görülmüştür [68]. Şeker pancarı küspesi ile yapılan bir başka çalışmada, pH 2 ile 8 arasındaki ortamlarda Akridin Turuncusu boya giderimi denenmiş, 60 dakika sonunda pH 4 değerinde giderim oranı %93 iken, pH 8 değerinde %96 giderim oranı elde edilmiştir [105]. Nayak ve ark. toz haline getirilmiş *Abelmoschus esculentus* tohumlarıyla pH 3 ile 11 arasında hazırlanmış Akridin Turuncusu boya çözeltilerinde giderim çalışması yapmışlardır. 30 dakika sonunda, pH 6 değerine kadar olan pH değerlerinde giderim oranı %70'in altında kalmış, pH 7 ile %83'lere çıkan giderim oranı pH 10 değerinde %95 seviyesinde en yüksek orana ulaşmıştır. pH 11 değerinde giderim oranı %90'a düşmüş ve bu düşüşe yüksek alkali ortamda bulunan adsorban maddenin yapısında gerçekleşen bozulmanın sebep olduğu düşünülmüştür [106]. Akridin Turuncusu sulu çözeltilerinde pozitif yüklü iyonlar şeklinde bulunur ve bazik koşullar altında negatif yüklerle yüklenen adsorban maddeler ile aralarında elektrostatik kuvvetler oluştuğundan boya partiküllerinin adsorban yüzeyinde tutulmaları kolaylaşmaktadır.

Çalışmamızda mikrobiyal selüloz ile anyonik ve katyonik boyalar olan Trifan Mavisi, Akridin Turuncusu boyaalarının giderimi geniş pH aralığında başarı ile gerçekleştirilmiştir. Bu bağlamda, mikrobiyal selülozun anyonik ve katyonik boyaaların giderimi için alternatif olabileceği görülmektedir. İleride pek çok farklı boya için de mikrobiyal selülozun kullanılabilme potansiyeline dikkat çekmektedir.

4.4.2. Farklı Başlangıç Selüloz Miktarlarının Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu Boyalarının Mikrobiyal Selüloz ile Giderimine Etkisinin Saptanması

Adsorban madde üzerindeki adsorpsiyon alanları sınırlı olduğundan, her adsorban maddenin belirli bir boya giderim kapasitesi bulunmaktadır. Adsorban madde miktarının artırılması ile hem boya partiküllerinin adsorban madde üzerinde

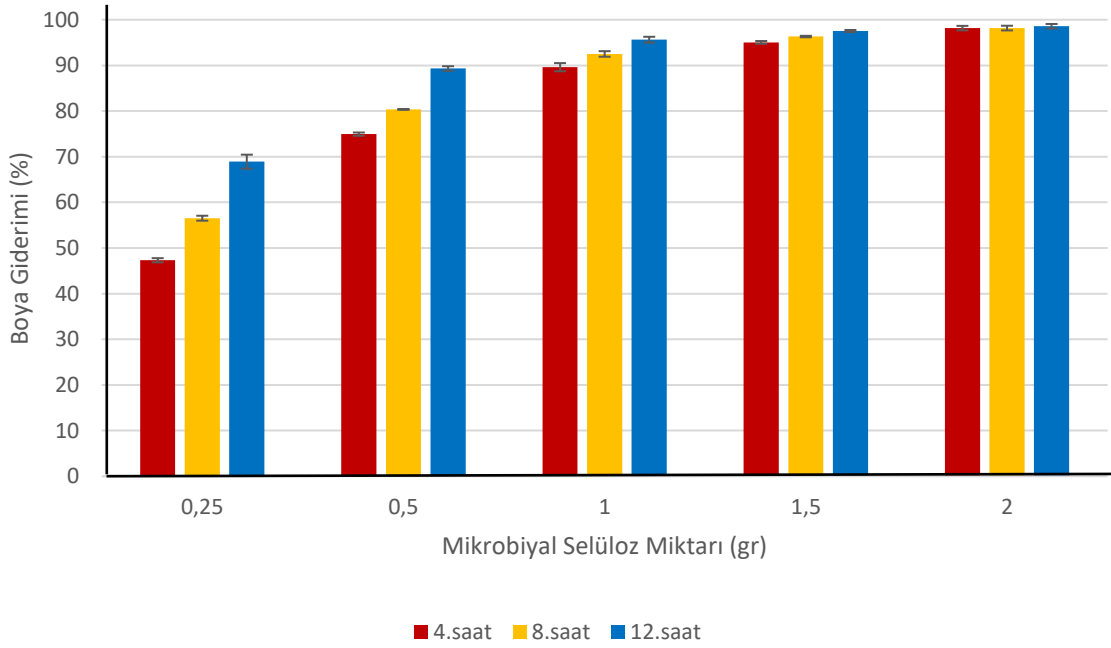
tutunabileceği bölge miktarı artırılmakta hem de adsorban-boya etkileşiminin olacağı yüzey alanı genişlemektedir ve bu durum boya giderim yüzdesinde artışa neden olmaktadır [107]. Bu sayede kısa zamanda çok daha verimli bir giderim sağlanmış olmaktadır. Fakat sucul ortama eklenen adsorban madde belirli miktarın üzerine çıktığında, boya giderim oranında daha fazla artış olmadığı tespit edilmiştir. Bunun nedeninin adsorban maddenin birbiri üzerine birikerek yüzey alanlarının kapatılması ve birbirlerine yapışarak ağırlıklarından dolayı dibe çökmesi olduğu düşünülmektedir [108].

Sucul ortamdan kirletici madde gideriminde kullanılacak olan adsorban maddenin en uygun miktarı bilindiğinde, çalışmalarda kullanılması gereken adsorban madde miktarı önceden tespit edilebilir. Bu bağlamda, az adsorban madde kullanımı sonucu giderim düşmesine engel olunur ve giderimde kullanılacak uygun adsorban madde miktarının fazlasının kullanılmasının önüne geçilmesi ile de ekonomik avantaj sağlanabilir. Büyük ölçekli bir çalışmada birim hacim başına gereken adsorban madde miktarı önceden belirlenerek yapılacak çalışmanın maliyeti de hesaplanabilir.

Çalışmamızda Trifan Mavisi boyasının giderimi için uygun mikrobiyal selüloz miktarının belirlenmesi amacıyla, %0,25 ile %2 arasında değişen miktarlarda mikrobiyal selüloz pH 4'te hazırlanmış 50 ppm çözünürlükteki Trifan Mavisi boya ortamlarına eklenerek 30°C'de 150 rpm çalkalama hızında inkübe edildi. 4., 8. ve 24. saatler sonunda ortamlardan alınan örnekler incelenerek Trifan Mavisi boya giderim yüzdeleri belirlendi. 4. saatin sonunda %0,25 oranında mikrobiyal selüloz eklenen ortamdaki Trifan Mavisi boya giderim oranı %47 seviyesinde iken, artan mikrobiyal selüloz miktarı ile bu oranın düzenli olarak yükseldiği belirlendi (Şekil 4.13). Literatürdeki çalışmalara paralel olarak %1 mikrobiyal selüloz miktarında ulaşılan yaklaşık %90 Trifan Mavisi boya giderim oranından sonra, artan selüloz miktarının giderim üzerine etkisinin yavaşladığı görüldü.

Çalışmamızda, bir diğer boya olan Akridin Turuncusu boyasının gideriminde kullanılacak uygun mikrobiyal selüloz miktarının belirlenmesi amacıyla, %0,25 ile %2,5 arasında değişen miktarlarda mikrobiyal selüloz, pH değerleri 10'a ayarlanmış 50 ppm çözünürlükteki Akridin Turuncusu boya ortamlarının içerisine eklenerek

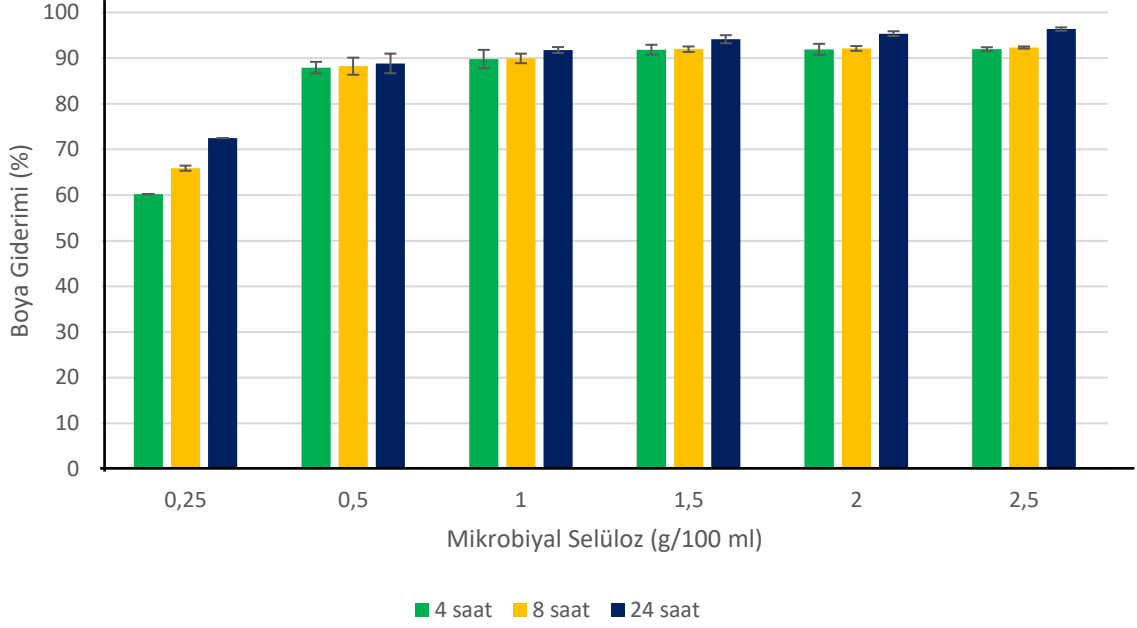
30°C'de 150 rpm çalkalama hızında inkübe edildi. 4., 8. ve 24. saatler sonunda ortamlardan alınan örnekler incelenerek Akridin Turuncusu boya giderim yüzdeleri belirlendi. %0,25 mikrobiyal selüloz içeren ortamdaki Akridin Turuncusu boya giderimi 4.saat sonunda %60 iken, bu oranın 8.saatte 66'ya 24. saat sürenin sonunda ise %72'ye çıktığı belirlendi. 4.saatin sonunda %0,5 ve %1 mikrobiyal selüloz içeren ortamlardaki boya gideriminin yaklaşık olarak %90 olduğu, %1,5 mikrobiyal selüloz içeren ortamda %92'ye çıktığı ve daha yüksek miktarlarda selüloz içeren ortamlarda daha fazla artış olmadığı tespit edildi. (Şekil 4.14).



Şekil 4.13. Farklı mikrobiyal selüloz miktarlarının Trifan Mavisi boyasının mikrobiyal selüloz ile giderimi üzerine etkisi

*İnkübasyon 150 rpm çalkalama hızında ve 30°C'de gerçekleştirilmiştir. Boya çözeltileri pH 4'te hazırlanmış ve 50 ppm boya konsantrasyonu kullanılmıştır. Sonuçlar 3 çalışmanın ortalamasıdır.

Yukarıda belirtildiği gibi giderim ortamlarına ilave edilen adsorban madde belirli miktarın üzerine çıktığında, adsorban maddenin birbiri üzerine birikerek yüzey alanlarını kapatması ve birbirlerine yapışarak ağırlıklarından dolayı dibe çökmesi sonucu adsorban madde artırılrsa bile belli adsorban madde konsantrasyonu üzerinde boya giderim oranlarının sabit kaldığı bilinmektedir [108]. Buna benzer olarak çalışmamızda bu oranı 4. saatte giderim %95'e çıktığı ve bu noktadan sonra büyük oranda artış olmadığı için %1,5 mikrobiyal selüloz olarak belirtebiliriz.



Şekil 4.14. Farklı mikrobiyal selüloz miktarlarının Akridin Turuncusu boyasının mikrobiyal selüloz ile giderimi üzerine etkisi

*İnkübasyon 150 rpm çalkalama hızında ve 30°C'de gerçekleştirilmiştir. Boya çözeltileri pH 10'da hazırlanmış ve 50 ppm boya konsantrasyonu kullanılmıştır. Sonuçlar 3 çalışmanın ortalamasıdır.

Çalışmamızda ilave olarak, mikrobiyal selülozun düşük miktarlarda eklendiği ortamlarda Trifan Mavisi boya giderim oranlarının zamana bağlı değişimi çok daha fazla iken, selüloz miktarının artması ile zamana bağlı değişimde azalma meydana geldiği belirlendi. %0,25 ve %0,50 mikrobiyal selüloz içeren ortamlardaki Trifan Mavisi giderim oranının 8. ve 24. saatlerdeki zamana bağlı değişimi sırasıyla %10 ve %5 iken, %2 mikrobiyal selüloz içeren ortamdaki giderim oranının tüm inkübasyon sürelerinde neredeyse eşit olduğu görüldü. Selüloz miktarının düşük olduğu ortamlarda, boyaların selüloz üzerinde tutunabileceği bölge sayısı hızlı bir adsorpsiyon için yeterli olmadığından ve boyaların bu bölgelerle karşılaşmaları zaman aldığından kısa sürede yeterli boya giderimi sağlanamadığı, ancak %0,25 selüloz içeren ortamdaki giderim oranının 24 saat sonunda %69'a, %0,50 selüloz içeren ortamdaki giderim oranının ise %90'a ulaştığı görüldü. Az miktarlarda mikrobiyal selüloz kullanımı maliyeti düşüreceğinden, hızlı bir giderimin gerekli olmadığı işletme ve tesislerde bu miktarlarda selüloz kullanımının da yüksek oranlarda boya giderimi sağlayabileceği tespit edildi. Bunun yanında, boya bulaşmış doğal su kaynaklarından ve sucül ekosistemlerden boyaların hızlı bir şekilde uzaklaştırılması gerekmektedir. Çalışmamızda %1,5 selülozun kullanıldığı ortamda

4. saat sonundaki giderimin Trifan Mavisinde %95 ve Akridin Turuncusunda %92 oranında, %2 selülozun kullanıldığı ortamda ise Trifan Mavisi boya gideriminin %98 oranında olduğu ve kısa sürede boyar maddelerin neredeyse tamamının ortamdaki uzaklaştırıldığı belirlendi.

Literatürde, içerisinde bitkisel selüloz barındıran çeşitli artık maddeler ile yapılan bir boya giderim çalışmasında, %0,2 ile %6 arasında adsorban madde kullanılarak Menekşe B boyası giderimi denenmiş, 1,5 saat sonunda %0,2 adsorban madde içeren ortamdaki giderim oranı %85'lerde kalırken, %2 adsorban madde içeren ortamda %94 seviyesine çıkmış ve bu noktadan sonra giderim oranı sabitlenmiştir [108]. Bir başka çalışmada ise, buğday küspesi kullanılarak 100 ppm konsantrasyonundaki çözümlerden Metilen Mavisi boyası giderimi denenmiş, 75 dakika sonrasında yapılan ölçümlerde %0,25 buğday küspesi içeren ortamdaki giderim oranının %86 olduğu, %0,5 buğday küspesi içeren ortamda ise %95'e çıktığı görülmüştür. Buğday küspesi miktarı %3'e kadar artırılmış fakat giderim %95 oranında sabit kalmıştır [109]. Fiallos ve ark.'nın 10 ppm çözünürlükteki Akridin Turuncusu boyasının giderimi üzerine yaptığı çalışmada %0,04 ile %0,8 arasında grafen oksit miktarları denenmiş ve 24 saat inkübasyon süresi sonunda ortamlardan örnekler alınmıştır. %0,04 adsorban madde eklenen ortamdaki giderim oranı %92 iken %0,08 adsorban madde içeren ortamdaki giderim oranı %97'ye çıkmış ve daha yüksek adsorban madde içeren ortamlarda da bu oranda kalmıştır [110].

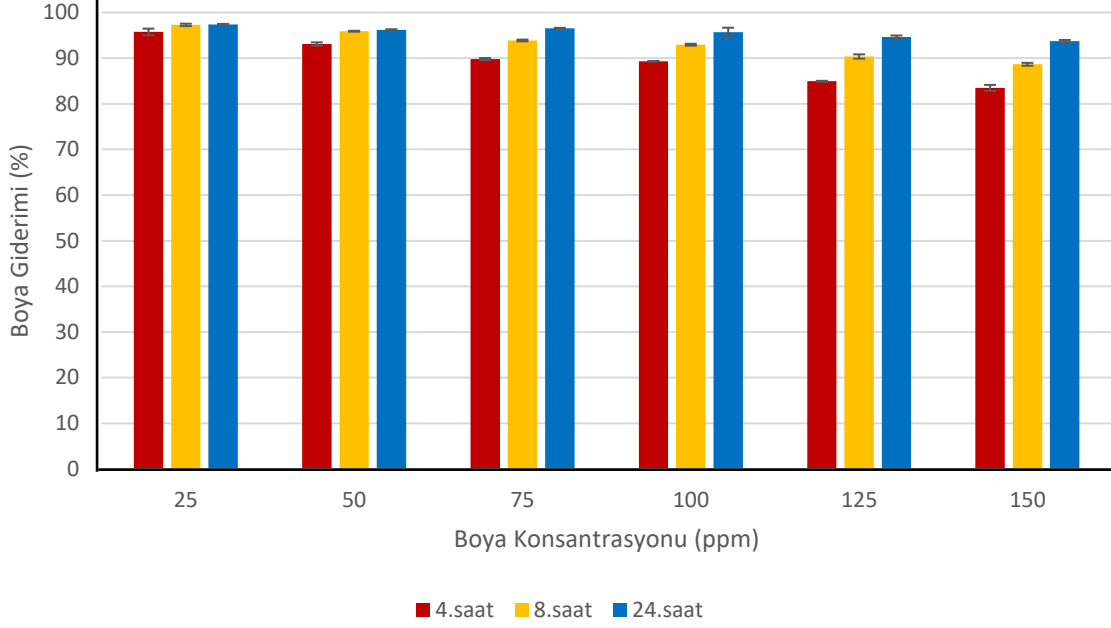
4.4.3. Farklı Başlangıç Boya Konsantrasyonunun Mikrobiyal Selüloz ile Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu Boyalarının Giderimine Etkisinin Saptanması

Sucul ekosistemlere karışan boyar maddeler daha önce belirtildiği gibi en düşük konsantrasyonlarda dahi burada yaşayan canlılara zarar vermekte ve bunun yanında estetik açıdan da istenmeyen görüntülere yol açmaktadır. Boyama faaliyetlerinde kullanılan boya çözeltileri yüksek konsantrasyonlarda boyar madde içermekte, bu maddelerin büyük çoğunluğu boyanmak istenen malzemeler tarafından tutulmaktadır. Ancak bu işlemlerden sonra bile fabrikalardan çıkan atık suların boyar madde konsantrasyonları oldukça yüksek olmakta ve atık suların bu haliyle dışarıya bırakılmaması gerekmektedir. Bu nedenle fabrikalardan çıkan atık suların boyar maddelerin temizlenmesi gerekmektedir.

Boyar madde giderimi için birçok yöntem olmakla birlikte, endüstriyel anlamda giderimin maliyetsiz bir şekilde gerçekleştirilmesi önemlidir. Boya gideriminde biyolojik yöntemlerin ve adsorban maddelerin kullanımı maliyeti düşük yöntemler olarak karşımıza çıkmaktadır. Düşük konsantrasyonlarda canlı organizmalar ile giderim mümkün olmakla birlikte, atıksu içeriğinde bulunan yüksek konsantrasyonlu boyar maddeler canlılar üzerinde toksik etki göstermeye başlamakta ve yüksek konsantrasyonlarda giderim mümkün olmamaktadır. Bu bağlamda adsorban madde kullanımı ile boya giderimi avantajlı hale gelmektedir.

Çalışmamızda, Trifan Mavisı boya konsantrasyonunun mikrobiyal selüloz ile giderime etkisini belirlemek amacıyla, 25 ile 150 ppm arası değişen konsantrasyonlardaki Trifan Mavisı çözeltilerinin pH değerleri 4'e ayarlandı ve bu ortamlara %2 mikrobiyal selüloz eklenerek 30°C'de 150 rpm çalkalama hızında inkübasyona bırakıldı. 4., 8., 24. saatler sonunda bu ortamlardan alınan örnekler incelenerek Trifan Mavisı boya giderim yüzdeleri belirlendi. 25 ppm Trifan Mavisı içeren ortamdaki giderim oranı 4. saatin sonunda %96 olarak ölçülürken, artan boya konsantrasyonu ile birlikte bu giderim oranında büyük oranda düşüş saptanmadı. 4 saatlik inkübasyonun ardından 100 ppm Trifan Mavisı konsantrasyonunda %90, 150 ppm Trifan Mavisı konsantrasyonunda ise halen %83 giderim olduğu belirlendi. 24 saat sonunda ise 150 ppm boya içeren ortamın giderim oranınının %94'e ulaştığı ve boya konsantrasyonundaki düşme ile birlikte bu oranın 25 ppm'de %98'e çıktığı tespit edildi (4.15).

Akridin Turuncusu boyasının mikrobiyal selüloz ile giderimine boya konsantrasyonunun etkisini görmek amacıyla, 25 ile 200 ppm arası konsantrasyonlarda hazırlanmış Akridin Turuncusu ortamlarının pH değerleri 10'a ayarlandı ve bu ortamlara %1,5 oranında mikrobiyal selüloz eklenerek 30°C'de 150 rpm çalkalama hızında inkübasyona bırakıldı. 4., 8. ve 24. saatler sonunda bu ortamlardan alınan örnekler incelenerek Akridin Turuncusu boya giderim yüzdeleri belirlendi. 25 ppm Akridin Turuncusu içeren ortamdaki boya giderim oranı %53 seviyesinde kalırken, bu oranın 24.saatın sonunda %86 seviyesine çıktığı belirlendi.



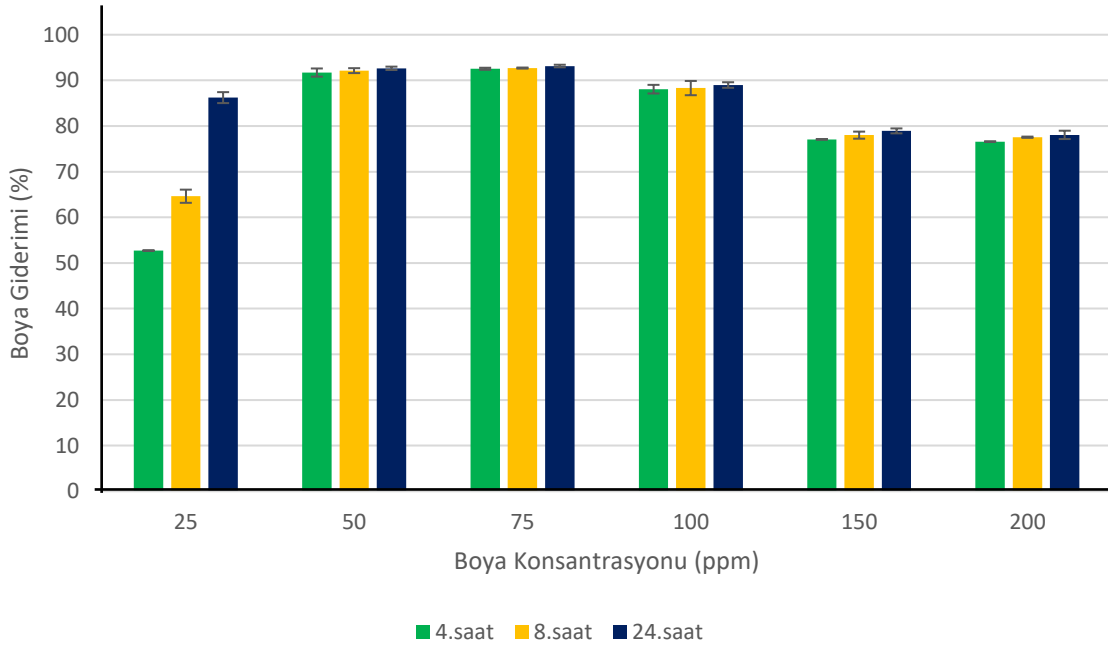
Şekil 4.15. Başlangıç boya konsantrasyonunun mikrobiyal selüloz ile Trifan Mavisi boyasının giderimi üzerine etkisi

*İnkübasyon 150 rpm çalkalama hızında ve 30°C'de gerçekleştirilmiştir. Boya çözeltileri pH 4'te hazırlanmıştır ve %2 oranında selüloz kullanılmıştır. Sonuçlar 3 çalışmanın ortalamasıdır.

Literatürde bunun nedeninin 25 ppm konsantrasyonda çok az miktarda boyar madde olduğu ve ortamda bulunan partiküllerin adsorban yüzeyine yeterli itici kuvveti uygulamaması olduğu belirtilmektedir. 50 ppm ve 75 ppm değerlerinde 4.saat sonunda %93 giderim oranına ulaşılrken, inkübasyon süresinin artması ile giderim oranında bir artışın olmadığı tespit edildi. 100 ppm değerinde tüm inkübasyon sürelerinde neredeyse %90 oranında boya giderimi olduğu belirlendi. Adsorban yüzeyinde bulunan ve boyar maddelerin tutulmasını sağlayan boşluklar sınırlı miktardadır ve belirli konsantrasyondan sonra boyar maddelerin sağladığı itiş gücüne rağmen adsorban madde doygunluğa ulaştığında daha fazla giderim olmamaktadır. Buna rağmen, mikrobiyal selüloz ile 150 ve 200 ppm gibi yüksek boya konsantrasyonu içeren ortamlarda dahi %76'nin üzerinde bir boya giderimi gözlemlendi. Bu bağlamda, çalışmamızda elde ettiğimiz mikrobiyal selülozun adsorban madde olarak kullanılabileceği en uygun konsantrasyon değerlerinin 50 ve 75 ppm olduğu ancak yüksek seviyede boyar madde içeren atıksularda da başarılı bir şekilde giderim yapabileceği sonucuna varıldı (Şekil 4.16). Fiallos ve ark.'nın %0,4 grafen oksit miktarı ile Akridin Turuncusu boyasının giderimi üzerine yaptıkları çalışmada, 20 ile 100 ppm arasında boya çözeltileri hazırlanmış ve

inkübasyona bırakılmıştır. 6.saatin sonunda yapılan ölçümde, 20 ppm boya içeren ortamdaki giderim oranının %30'larda kaldığı, en yüksek boya giderim oranının ise 40 ppm değerinde görüldüğü ve bu ortamda giderim oranının %87'lerde olduğu belirtilmiştir [110]. Çalışmamızda daha yüksek konsantrasyonlarda dahi yüksek boya giderimleri elde edilerek mikrobiyal selülozun boya giderimi için alternatif bir adsorban madde olduğu gösterilmiştir.

Literatürde, %45 oranında TiO₂ tutturulmuş bakteriyel selüloz ile metil Turuncusu giderimi çalışmasında, 5. saatin sonunda boya giderim oranları incelenmiş ve 10 ppm çözünürlükte hazırlanmış metil Turuncusu çözeltisinde giderim oranı %85 olarak ölçülmüş iken, aynı koşullarda hazırlanmış 25 ppm çözünürlükteki metil Turuncusu çözeltisinde bu oran %29'a düşmüştür. Bizim çalışmamızda görüldüğü gibi modifiye edilmiş bir selüloz kullanılmamasına karşın 25 ppm'den 150 ppm konsantrasyona kadar 4 saatte verimli boya giderimi elde edilmiştir [111].



Şekil 4.16. Başlangıç boya konsantrasyonunun mikrobiyal selüloz ile Akridin Turuncusu boyasının giderimi üzerine etkisi

*İnkübasyon 150 rpm çalkalama hızında ve 30°C'de gerçekleştirilmiştir. Boya çözeltileri pH 10'da hazırlanmıştır ve %1,5 oranında selüloz kullanılmıştır. Sonuçlar 3 çalışmanın ortalamasıdır.

Aynı çalışmada, 15 saat sonunda 10 ppm boya içeren ortamdaki giderim %97 seviyesinde doygunluğa ulaşmış ve 25 saat sonuna kadar bu seviyede kalmıştır. 25 ppm konsantrasyonda ise giderim 25 saat sonuna kadar devam etmiş ve 25 saat sonunda %95 giderim oranına ulaşılmıştır [111]. Bizim çalışmamızda ise 25 ppm ile 150 ppm Trifan Mavisi içeren ortamların 4. saat ve 24. saat sonundaki giderim oranları karşılaştırılıp, 25 ppm boya içeren ortamdaki giderimin 8. saatte doygunluk noktasına ulaştığı ve %97 oranında sabit kaldığı tespit edildi. Diğer çalışma ile benzer olarak, boya konsantrasyonunun yükselmesi ile giderim süresinin uzadığı ve 150 ppm boya konsantrasyonunda boya giderim oranındaki artışın 24 saate kadar devam ettiği ve 24. saatin sonunda %94'e ulaştığı belirlendi. Yüksek boya konsantrasyonlarında inkübasyon süresinin uzatılması ile boya giderim yüzdesinde artış olduğu ancak 4. saatin sonunda da tüm konsantrasyonlarda verimli olarak boya giderildiği çalışmamızda gösterilmiştir Bunun nedeninin düşük konsantrasyonlarda boyar madde partiküllerinin adsorban madde üzerindeki boşluklara hızlı bir şekilde tutunması ve geride tutulacak boyar madde partiküllerinin kalmaması, bunun yanında yüksek konsantrasyonlarda dış yüzeydeki gözeneklerin hızlıca kapanmasının ardından iç yüzeydeki gözeneklere adsorpsiyonun daha yavaş gerçekleştiği düşünülmektedir. Bu bağlamda çalışmamızda adsorban madde olarak kullanılan selüloz boya için modifiye edilerek özeleştirilmiş olmamasına karşın 25 ile 150 ppm konsantrasyonlarında verimli olarak boya giderimini gerçekleştirdiği belirtilebilir.

Yapılan bir diğer çalışmada, 100 ile 400 ppm konsantrasyonları arasında hazırlanan 100 ml Metilen Mavisi çözeltileri içerisine 1 gram buğday küspesi eklenmiş ve boya konsantrasyonunun giderime etkisine bakılmıştır. 75 dakika sonunda alınan sonuçlara göre, 100 ppm'de boya konsantrasyonunda %95 oranında Metilen Mavisi giderimi olurken, bu oran 200 ppm'de %79, 400 ppm'de ise %52 olarak ölçülmüştür [109].

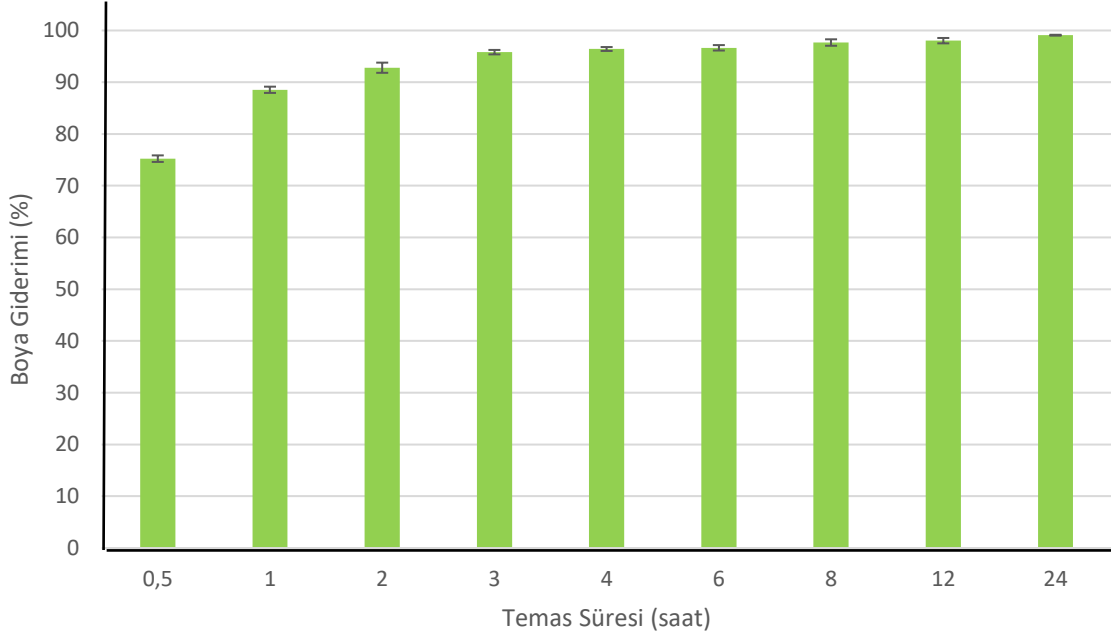
4.4.4. Farklı Temas Sürelerinin Trifan Mavisi ve Akridin Turuncusu Boyalarının Mikrobiyal Selüloz ile Giderimi Üzerine Etkisinin Saptanması

Kirleticilerin adsorban tarafından giderim süreci genel olarak üç aşamada incelenmektedir. Bu aşamalar sırasıyla hızlı adsorpsiyon, yavaş adsorpsiyon ve

dinamik denge süreçleridir. Adsorban maddenin kirletici ile temasa geçtiği ilk aşamada, adsorban yüzeyindeki adsorpsiyon bölgeleri tamamıyla boş olduğundan ve çözelti içerisindeki boya konsantrasyonu yüksek olduğundan, kirletici madde kolaylıkla bu boşluklar tarafından tutulmaktadır. Ardından, adsorban üzerinde biriken boya nedeni ile oluşan elektriksel itme ve çözelti içerisindeki boya konsantrasyon farkının düşmesi nedeni ile giderim hızı yavaş yavaş azalmaya başlamaktadır. Son olarak, kirleticinin tutulacağı adsorban yüzeyindeki boşluklar doyum noktasına ulaştığından giderim de bu noktada son bulur [101].

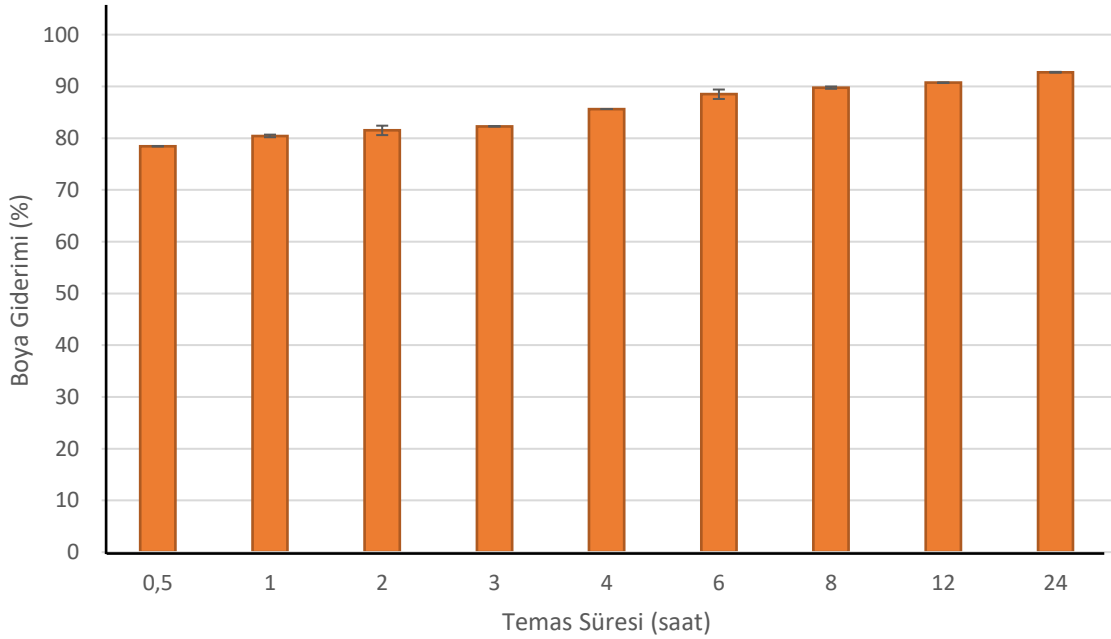
Çalışmamızda, 30°C'de 150 rpm çalkalama hızındaki inkübatörde inkübasyona bırakılan 50 ppm çözünürlükteki Trifan Mavisı boya ortamlarından 0,5 saat ile 24 saat arasında örnekler alınarak incelendi ve boya giderim yüzdeleri belirlendi. 0,5 saatlik inkübasyon süresi sonunda Trifan Mavisı boya giderim oranı %74'e ulaşırken, 2. saatin sonunda boyanın %90'dan fazlasının giderildiği görüldü. Bundan sonraki inkübasyon sürecinde giderilen boya miktarının giderek arttığı, 24.saatin sonunda %99'luk bir giderim oranına ulaşıldığı ve sulu çözeltiden Trifan Mavisı boyasının başarılı bir şekilde giderildiği tespit edildi (Şekil 4.17).

Çalışmamızın diğer boyası olan Akridin Turuncusu boyasının zamana bağlı giderim oranının belirlenmesi amacıyla, 75 ppm konsantrasyonda hazırlanan çözeltilere selüloz eklenerek 30°C'de 150 rpm çalkalama hızında inkübasyona bırakıldı ve 0,5 saat ile 24 saat arasında örnekler alınarak incelendi. 0,5 saatlik inkübasyon süresinde Akridin Turuncusu içeren ortamlarda hızlı bir giderim olduğu ve bu süre sonunda Akridin Turuncusu boyasının %80 kadarının giderildiği saptandı. 8.saatin sonunda bu oranın %90'a çıktığı ve ilerleyen sürelerde giderim oranında büyük bir artış olmadığı belirlendi. 24.saatlik inkübasyon süresinin sonunda giderim oranının %93'e ulaştığı görüldü (4.18).



Şekil 4.17. Temas süresinin mikrobiyal selüloz ile Trifan Mavisi boyasının giderimi üzerine etkisi

*İnkübasyon 150 rpm çalkalama hızında ve 30°C'de gerçekleştirilmiştir. Boya çözeltileri pH 4'te 50 ppm boya konsantrasyonunda hazırlanmıştır ve %2 oranında selüloz kullanılmıştır. Sonuçlar 3 çalışmanın ortalamasıdır.



Şekil 4.18. Temas süresinin mikrobiyal selüloz ile Akridin Turuncusu boyasının giderimi üzerine etkisi

*İnkübasyon 150 rpm çalkalama hızında ve 30°C'de gerçekleştirilmiştir. Boya çözeltileri pH 10'da 75 ppm boya konsantrasyonunda hazırlanmıştır ve %1,5 oranında selüloz kullanılmıştır. Sonuçlar 3 çalışmanın ortalamasıdır.

Literatürde, 50 ppm çözünürlükteki metilen Mavisi ortamı içerisine eklenen şeftali kabukları ile yapılan bir çalışmada, 0,5 saat sonundaki boya giderim oranı çalışmamızda elde edilen giderim oranı ile benzerlik gösterirken, 2. ve 3. saatlerin sonunda giderim %86 seviyesinde kalmıştır [112]. Bir diğer çalışmada ise, mikrobiyal konsorsiyum ile Trifan Mavisi boya giderimi için, 50 ppm çözünürlükteki boya içeren ortam hem oksijenli (120 rpm çalkalama) hem de mikroaerofilik ortamda inkübasyona bırakılmış ve bu ortamlardan 8., 16., ve 24 saatlerin sonunda örnekler alınmıştır. Oksijenli ortamda Trifan Mavisi boya giderimi 24 saat sonunda %10'un altında kalırken, mikroaerofilik ortamdaki giderim 8.saatte %35, 16.saat sonunda ise %70 seviyesinde kalmıştır [113]. Yaptığımız çalışmada ise, 0,5 saat gibi kısa bir sürede Trifan Mavisi boyasının büyük bir çoğunluğu, 3.saatin sonunda ise neredeyse tamamı başarılı bir şekilde giderilerek, içerisinde Trifan Mavisi bulunan çözelti tekrar kullanılabilir duruma getirilmiştir.

Fiallos ve ark.'nın 40 ppm çözünürlükte hazırlanmış Akridin Turuncusu ile yaptığı çalışmada, boya içeren ortamlara grafen oksit eklenmiş ve 1 saat ile 70 saat arasında inkübasyona bırakılmıştır. 1.saatte %85 seviyesine ulaşan boya giderim oranında ilerleyen saatlerde bir artış görülmemiş ve 70.saatin sonunda yine %85 seviyesinde kaldığı görülmüştür [110].

5. YORUM

Yenilenebilir doğal polimerik materyal arařtırmaları, enerji krizi ve çevre kirliliđi gibi problemlerin çözümünde büyük önem taşımaktadır. Selüloz, doğada en fazla bulunan ve biyolojik olarak parçalanabilen polimerik materyallerden birisidir. Çoğunlukla bitkilerden elde edilen selüloz günümüzde mikroorganizmalar aracılığıyla veya kimyasal sentez yoluyla da üretilmektedir. Mikrobiyal selüloz bitkisel selüloz gibi lignin ve hemiselüloz içermediğinden oldukça saf halde elde edilmektedir. Bununla ilişkili olarak, bitkisel selülozun saflařtırılma işlemleri sırasında gereken maliyetin ortadan kaldırılması söz konusu olmaktadır. Bitki kaynaklı selüloz üretiminin çevresel faktörler (mevsim, sıcaklık, hastalık vb.) ile sınırlı olduđu ve mevsimlere bađlı olarak üretim veriminin düřtüđu bilinmektedir. Mikrobiyal selülozun bu sınırlamaları olmamasının yanı sıra, bu maddenin yüksek kristallenme, yüksek yüzey alan/kütle oranı ve buna bađlı olarak su tutma-emme kapasitesi gibi önemli özellikleri de bulunmaktadır. Mikrobiyal selüloz tüm bu özelliklerinden dolayı bitkisel selülozun önüne geçmektedir. Kimyasal sentez yolu incelendiğinde, söz konusu sentez yolunun kullanımı sonucunda çevreye kimyasal atıkların karıştığı ve üretim süreci ile biyolojik olarak parçalanamayan selülozun elde edildiđi bilinmektedir. Sonuçta, mikrobiyal selüloz üretimi mevsimlerden bađımsızdır, oluřum aşaması ve sonrasında çevreye zarar veren atıklar oluřurmaz, kısa sürelerde ekonomik ve kesintisiz olarak üretim yapılabilir. Mikrobiyal selüloz kimyasal sentez yoluyla üretilen selüloz kadar sađlamdır ve bu yöntemle biyoyıkılabilir malzeme elde edilebilmektedir.

Günümüzde biyomedikal, gıda, kozmetik, kađıt endüstrileri gibi alanlarda kendine kullanım alanı bulan mikrobiyal selülozun, çevre kirleticilerini ortamdan uzaklařtırmak amacıyla biyosorbent madde olarak kullanımı da çalışılmaktadır. Ancak bu arařtırmalarda mikrobiyal selüloz üretiminin sentetik besiyerlerinde yapılmasından dolayı karřılařılan yüksek maliyetler nedeniyle yapılan çalışmalar sınırlı sayıda kalmıřtır.

Çevre kirleticileri alıcı ortamlara bırakıldıklarında bu ortamların fiziksel ve kimyasal özelliklerini deđiřtiren, biyolojik olarak burada yařayan organizmalara doğrudan veya dolaylı yollarla zararlar veren maddelerdir. Özellikle tekstil faaliyetleri sonucu

fabrikalardan dışarıya bırakılan atıksular, beraberlerinde içerdikleri boyalar ile doğal ortamlara ve su kaynaklarına karışmaktadır. Canlılar için toksik, mutajenik ve kanserojenik etkileri bulunan bu boyalar hem doğal su kaynaklarında yaşayan canlılara etki ederek doğal ekosistemi bozmakta hem de şebeke suları ile birlikte insanlara zarar vermektedir. Bu yüzden kirletici maddeleri atık sulardan ve eğer bulaşmış ise doğal su kaynaklarından kısa zamanda, en az maliyetle ve yüksek verimle uzaklaştırmak gerekmektedir.

Çevre kirleticilerinin ortamdaki uzaklaştırılmasında fiziksel, kimyasal ve biyolojik yöntemler kullanılmaktadır. Hızlı ve etkili bir giderim sağlanmasından dolayı günümüzde en avantajlı giderim yöntemi olarak görülen fiziksel giderim, direk olarak veya dolaylı yollardan kullandığı kimyasallar ile çevrede ikincil bir kirlilik yaratmakta ve aynı zamanda etkili bir giderim için yüksek malzeme maliyetleri gerektirmektedir. Tüm bu uygulamalar içerisinde mikroorganizmalar aracılığıyla gerçekleştirilen giderim çalışmaları (biyoremediasyon), biyolojik yöntemler olduklarından işlem sonunda çevreye en az etkiyi bırakmakta ve en çevreci yöntem olarak bilinmektedir ancak söz konusu giderim çalışmalarında kullanılan mikroorganizmaların giderim ortamında canlı kalması gerektiğinden, giderim ortamının besin açısından zengin ve canlıların yaşamasına uygun çevre şartlarına sahip olması gerekmektedir. Bu sorunlar araştırmacıları hem çevre açısından zararsız olan ve ucuz maliyetli hem de sentetik malzemeler kadar etkili sorbent arayışına yöneltmiştir. Biyosorbentler yukarıda bahsedilen gereklilikleri ortadan kaldırmakta ve tamamen biyolojik yollarla elde edilmiş olan polimer bir malzeme ile fiziksel giderim yapma imkanı sunmaktadır. Bu amaçla, bazı selüloz kökenli tarımsal atıklar ve mikrobiyal selüloz gibi su emme kapasitesi yüksek biyomateryallerin ortamdaki kirleticileri uzaklaştırmada etkinlikleri araştırılmıştır. Tüm bu sorbentler arasında, mikrobiyal selüloz yenilenebilir, biyolojik olarak parçalanabilen ve biyoyumlu olarak nitelenen yeni bir biyosorbent olarak karşımıza çıkmaktadır [114].

Çalışmamızda, Doğu Avrupa ve Asya'da geleneksel olarak tüketilen ve son zamanlarda tüm dünyada popüler hale gelmeye başlayan Kombucha çayından mikrobiyal selüloz üretimi yapıldı. Bu bağlamda, izolasyonu gerçekleştirilen Kombucha karışık kültürü kullanılarak çay besiyerinden mikrobiyal selüloz üretimi araştırıldı ve bu şekilde mikrobiyal selülozun ucuz bir şekilde üretimi sağlandı.

Kombucha kültürü ile elde edilen mikrobiyal selüloz ile çeşitli boyar maddelerin giderimleri denendi ve anyonik olan Trifan Mavisi ve katyonik olan Akridin Turuncusu boyalarının giderimlerinde etkili bir adsorban madde olduğu bulundu.

Mikrobiyal selüloz ile Trifan Mavisi boyasının en verimli gideriminin %96 giderim oranı ile pH 4'de 50 ppm boya konsantrasyonunda %2 selüloz miktarı kullanılarak 3 saatlik inkübasyon süresi sonunda olduğu, 24 saatlik temas süresinin sonunda ise %99 oranında giderim olduğu belirlendi. Akridin Turuncusu gideriminin ise %90 giderim oranı ile pH 10'da 75 ppm boya konsantrasyonunda %1,5 mikrobiyal selüloz kullanılarak 8 saatlik inkübasyon süresi sonunda olduğu ve 24 saatlik sürenin sonunda %93 oranında giderim olduğu tespit edildi. Trifan Mavisi boyası içeren ortamda, yarım saatlik temas süresi sonunda %75'in üzerinde ve 1 saatlik süre sonunda ise %90 oranında giderim sağlanması, Akridin Turuncusu boyası içeren ortamdan sadece yarım saat temas süresi sonunda %80 seviyesinde giderim sağlanması, mikrobiyal selülozun boya gideriminde kullanılmasının etkili bir yöntem olduğunu gösterdi. Bunun yanında, mikrobiyal selüloz kullanılarak 4 saatlik inkübasyon süresi sonunda pH 3 ile 8 arasında Trifan Mavisinde %90'ın üzerinde, 8 saatlik inkübasyon süresi sonunda ise pH 7 ile 11 arasında Akridin Turuncusunda %80'nin üzerinde giderim olduğu görüldü ve farklı pH'lardaki atıksulardan boya giderimi için mikrobiyal selülozun uygun bir adsorban olduğu tespit edildi. İlave olarak mikrobiyal selülozun 150 ppm gibi yüksek boya konsantrasyonlarında 24 saat sonunda Trifan Mavisi için %93, Akridin Turuncusu için %75 oranında boya giderimi yaptığı tespit edildi. Düşük adsorban madde kullanımı ile yüksek boya giderimi oranlarının elde edilmesi maliyeti düşüreceğinden, uygun adsorban madde miktarının belirlenmesi önemlidir. 0,5 gr mikrobiyal selüloz kullanımında dahi her iki boya içeren ortamda da %90'a yakın boya giderimi belirlendi. Mikrobiyal selüloz miktarının %2 olduğu ortamda ise Trifan Mavisi boya giderimi %99 seviyesine ulaştığı görüldü.

Sonuç olarak, çalışmamızda siyah çaydan düşük maliyetler ile mikrobiyal selüloz eldesi gerçekleştirildi. Ürettiğimiz mikrobiyal selülozun, hızlı bir şekilde farklı pH'larda ve konsantrasyonlarda hazırlanmış çeşitli boya ortamlarından başarılı şekilde anyonik ve katyonik boya giderimini yaptığı ve atıksulardan boyar madde giderimi için kullanılabileceği belirlendi. Günümüzde kullanılan adsorban maddelerin

modifiye edilerek hedefe yönlendirildiđi ve verimli giderim elde edildiđi göz önüne alındıđında, alıřmamızda kullandıđımız mikrobiyal selüloz ile ileride yapılacak modifikasyonlar sayesinde farklı pek ok giderim alıřması yapılabilecektir. Aynı zamanda Kombucha kltr kullanılarak siyah ayın fermente edilmesi ile, mikrobiyal selloz eldesi yanında dođaya zararlı herhangi atık bir madde oluřturmadan olduka sađlıklı bir iecek olan Kombucha ayı da elde edildi.

6. KAYNAKLAR

- [1] A.J. Brown, XIX. - The chemical action of pure cultivations of bacterium aceti, *Journal of the Chemical Society* 49 (1886) 172–187. doi:10.1039/CT8864900172.
- [2] D. Klemm, D. Schumann, U. Udhardt, S. Marsch, Bacterial synthesized cellulose — artificial blood vessels for microsurgery, *Progress in Polymer Science* 26 (2001) 1561–1603. <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0079670001000211>.
- [3] D. Klemm, B. Heublein, H.P. Fink, A. Bohn, Cellulose: Fascinating biopolymer and sustainable raw material, *Angewandte Chemie* 44 (2005) 3358–3393. doi:10.1002/anie.200460587.
- [4] K. Qiu, A.N. Netravali, A review of fabrication and applications of bacterial cellulose based nanocomposites, *Polymer Reviews* 54 (2014) 598–626. doi:10.1080/15583724.2014.896018.
- [5] S.E. Lee, Y.S. Park, The role of bacterial cellulose in artificial blood vessels, *Molecular & Cellular Toxicology* 13 (2017) 257–261. doi:10.1007/s13273-017-0028-3.
- [6] N. Madershahian, T. Wahlers, A. Sterner-Kock, M. Scherner, S. Reutter, T. Richter, D. Klemm, G. Langebartels, M. Guschlbauer, J. Wippermann, In vivo application of tissue-engineered blood vessels of bacterial cellulose as small arterial substitutes: proof of concept?, *Journal of Surgical Research* 189 (2014) 340–347. doi:10.1016/j.jss.2014.02.011.
- [7] J. Tang, X. Li, L. Bao, L. Chen, F.F. Hong, Comparison of two types of bioreactors for synthesis of bacterial nanocellulose tubes as potential medical prostheses including artificial blood vessels, *Journal of Chemical Technology & Biotechnology* 92 (2017) 1218–1228. doi:10.1002/jctb.5111.
- [8] Z. Shi, Y. Zhang, G.O. Phillips, G. Yang, Utilization of bacterial cellulose in food, *Food Hydrocolloids* 35 (2014) 539–545. doi:10.1016/j.foodhyd.2013.07.012.
- [9] R. Kant, Textile dyeing industry an environmental hazard, *Natural Science* 04 (2012) 22–26. doi:10.4236/ns.2012.41004.
- [10] L.S. Silva, L.C.B. Lima, F.J.L. Ferreira, M.S. Silva, J.A. Osajima, R.D.S. Bezerra, E.C. Silva Filho, Sorption of the anionic reactive red RB dye in cellulose: Assessment of kinetic, thermodynamic, and equilibrium data, *Open Chemistry* 13 (2015) 801–812. doi:10.1515/chem-2015-0079.
- [11] G.M.B. Soares, M. Costa-Ferreira, M.T. Pessoa de Amorim, Decolorization of an anthraquinone-type dye using a laccase formulation, *Bioresource*

- Technology 79 (2001) 171–177. doi:10.1016/S0960-8524(01)00043-8.
- [12] J. Cao, E. Sanganyado, W. Liu, W. Zhang, Y. Liu, Decolorization and detoxification of Direct Blue 2B by indigenous bacterial consortium, *Journal of Environmental Economics and Management* 242 (2019) 229–237. doi:10.1016/j.jenvman.2019.04.067.
- [13] R. Jayabalan, R. V. Malbaša, E.S. Lončar, J.S. Vitas, M. Sathishkumar, A review on kombucha tea-microbiology, composition, fermentation, beneficial effects, toxicity, and tea fungus, *Comprehensive Reviews in Food Science and Food Safety* 13 (2014) 538–550. doi:10.1111/1541-4337.12073.
- [14] A. Aloulou, K. Hamden, D. Elloumi, M.B. Ali, K. Hargafi, B. Jaouadi, F. Ayadi, A. Elfeki, E. Ammar, Hypoglycemic and antilipidemic properties of kombucha tea in alloxan-induced diabetic rats, *BMC Complementary and Alternative Medicine* 12 (2012). doi:10.1186/1472-6882-12-63.
- [15] D. Banerjee, S.A. Hassarajani, B. Maity, G. Narayan, S.K. Bandyopadhyay, S. Chattopadhyay, Comparative healing property of kombucha tea and black tea against indomethacin-induced gastric ulceration in mice: Possible mechanism of action, *Food & Function* 1 (2010) 284–293. doi:10.1039/c0fo00025f.
- [16] Z.W. Yang, B.P. Ji, F. Zhou, B. Li, Y. Luo, L. Yang, T. Li, Hypocholesterolaemic and antioxidant effects of kombucha tea in high-cholesterol fed mice, *Journal of the Science of Food and Agriculture* 89 (2009) 150–156. doi:10.1002/jsfa.3422.
- [17] I. Reiniati, A.N. Hrymak, A. Margaritis, Recent developments in the production and applications of bacterial cellulose fibers and nanocrystals, *Critical Reviews in Biotechnology* 37 (2017) 510–524. doi:10.1080/07388551.2016.1189871.
- [18] A.M.A. Gallegos, S.H. Carrera, R. Parra, T. Keshavarz, H.M.N. Iqbal, Bacterial cellulose: A sustainable source to develop value-added products - A review, *Bioresource* 11 (2016) 5641–5655. doi:10.15376/biores.11.2.Gallegos.
- [19] B. V. Mohite, S. V. Patil, A novel biomaterial: Bacterial cellulose and its new era applications, *Biotechnology and Applied Biochemistry* 61 (2014) 101–110. doi:10.1002/bab.1148.
- [20] P. Ross, R. Mayer, M. Benziman, Cellulose biosynthesis and function in bacteria., *Microbiology Reviews* 55 (1991) 35–58. doi:10.1016/j.bbalip.2012.08.009.
- [21] W. Czaja, D. Romanovicz, R. malcolm Brown, Structural investigations of microbial cellulose produced in stationary and agitated culture, *Cellulose* 11 (2004) 403–411. doi:10.1023/B:CELL.0000046412.11983.61.
- [22] I. Siró, D. Plackett, Microfibrillated cellulose and new nanocomposite

- materials: A review, *Cellulose* 17 (2010) 459–494. doi:10.1007/s10570-010-9405-y.
- [23] M.L. Cacicedo, M.C. Castro, I. Servetas, L. Bosnea, K. Boura, P. Tsafrakidou, A. Dima, A. Terpou, A. Koutinas, G.R. Castro, Progress in bacterial cellulose matrices for biotechnological applications, *Bioresource Technology* 213 (2016) 172–180. doi:10.1016/j.biortech.2016.02.071.
- [24] X. Chen, Degradation studies on plant cellulose and bacterial cellulose by FT-IR and ESEM, Yüksek Lisans Tezi, The University of Birmingham, 2015. <https://etheses.bham.ac.uk/id/eprint/5980/>.
- [25] S.M. Keshk, Bacterial Cellulose Production and its Industrial Applications, *J. Bioprocess. Biotech.* 04 (2014). doi:10.4172/2155-9821.1000150.
- [26] R. Brandes, C. Carminatti, A. Mikowski, H. Al-Qureshi, D. Recouvreux, A Mini-Review on the Progress of Spherical Bacterial Cellulose Production, *Journal of Nanoparticle Research* 45 (2017) 142–154. doi:10.4028/www.scientific.net/JNanoR.45.142.
- [27] H.G. de Oliveira Barud, R.R. da Silva, H. da Silva Barud, A. Tercjak, J. Gutierrez, W.R. Lustri, O.B. de Oliveira, S.J.L. Ribeiro, A multipurpose natural and renewable polymer in medical applications: Bacterial cellulose, *Carbohydrate Polymers* 153 (2016) 406–420. doi:10.1016/j.carbpol.2016.07.059.
- [28] A. Okiyama, M. Motoki, S. Yamanaka, Bacterial cellulose II. Processing of the gelatinous cellulose for food materials, *Food Hydrocolloids* 6 (1992) 479–487. [https://doi.org/10.1016/S0268-005X\(09\)80033-7](https://doi.org/10.1016/S0268-005X(09)80033-7).
- [29] S.P. Lin, I. Loira Calvar, J.M. Catchmark, J.R. Liu, A. Demirci, K.C. Cheng, Biosynthesis, production and applications of bacterial cellulose, *Cellulose* 20 (2013) 2191–2219. doi:10.1007/s10570-013-9994-3.
- [30] J.M. Kapp, W. Sumner, Kombucha: a systematic review of the empirical evidence of human health benefit, *Annals of Epidemiology* 30 (2019) 66–70. doi:10.1016/j.annepidem.2018.11.001.
- [31] Fermentation on fire: US retail sales of kombucha and other fermented beverages surged 37.4% in 2017, <https://www.foodnavigator-usa.com/Article/2018/02/13/Fermentation-on-fire-US-retail-sales-of-kombucha-and-other-fermented-beverages-surged-37.4-in-2017#> (Erişim tarihi: 5 Şubat 2019).
- [32] E. Coton, B. Taminiau, M. Coton, A. Pawtowski, G. Burgaud, A. Fall, F. Deniel, G. Daube, L. Coulloume-Labarthe, Unraveling microbial ecology of industrial-scale Kombucha fermentations by metabarcoding and culture-based methods, *FEMS Microbiology Ecology* (2017). doi:10.1093/femsec/fix048.
- [33] A.J. Marsh, O. O’Sullivan, C. Hill, R.P. Ross, P.D. Cotter, Sequence-based

- analysis of the bacterial and fungal compositions of multiple kombucha (tea fungus) samples, *Food Microbiology* 38 (2014) 171–178. doi:10.1016/j.fm.2013.09.003.
- [34] M. Naveed, J. BiBi, A.A. Kamboh, I. Suheryani, I. Kakar, S.A. Fazlani, X. FangFang, S.A. kalhoro, L. Yunjuan, M.U. Kakar, M.E. Abd El-Hack, A.E. Noreldin, S. Zhixiang, C. LiXia, Z. XiaoHui, Pharmacological values and therapeutic properties of black tea (*Camellia sinensis*): A comprehensive overview, *Biomedicine & Pharmacotherapy* 100 (2018) 521–531. doi:10.1016/j.biopha.2018.02.048.
- [35] M.I. Watawana, N. Jayawardena, C.B. Gunawardhana, V.Y. Waisundara, Health, Wellness, and Safety Aspects of the Consumption of Kombucha, *Journal of Chemistry* 2015 (2015) 1–11. doi:10.1155/2015/591869.
- [36] M. Hornung, M. Ludwig, A.M. Gerrard, H.-P. Schmauder, Optimizing the Production of Bacterial Cellulose in Surface Culture: Evaluation of Substrate Mass Transfer Influences on the Bioreaction (Part 1), *Engineering in Life Sciences* 6 (2006) 537–545. doi:10.1002/elsc.200620162.
- [37] J.D. Fontana, A.M. De Souza, C.K. Fontana, I.L. Torriani, J.C. Moreschi, B.J. Gallotti, S.J. De Souza, G.P. Narcisco, J.A. Bichara, L.F.X. Farah, *Acetobacter* cellulose pellicle as a temporary skin substitute, *Biotechnology and Applied Biochemistry* 24–25 (1990) 253–264. doi:10.1007/BF02920250.
- [38] R. Jung, Y. Kim, H.S. Kim, H.J. Jin, Antimicrobial properties of hydrated cellulose membranes with silver nanoparticles, *Journal of Biomaterials Science Polymer Edition* 20 (2009) 311–324. doi:10.1163/156856209X412182.
- [39] A.H. Basta, H. El-Saied, Performance of improved bacterial cellulose application in the production of functional paper, *Journal of Applied Microbiology* 107 (2009) 2098–2107. doi:10.1111/j.1365-2672.2009.04467.x.
- [40] L.C. Tomé, L. Brandão, A.M. Mendes, A.J.D. Silvestre, C.P. Neto, A. Gandini, C.S.R. Freire, I.M. Marrucho, Preparation and characterization of bacterial cellulose membranes with tailored surface and barrier properties, *Cellulose* 17 (2010) 1203–1211. doi:10.1007/s10570-010-9457-z.
- [41] J. Shah, R.M. Brown, Towards electronic paper displays made from microbial cellulose, *Applied Microbiology and Biotechnology* 66 (2005) 352–355. doi:10.1007/s00253-004-1756-6.
- [42] S. Ummartyotin, J. Juntaro, M. Sain, H. Manuspiya, Development of transparent bacterial cellulose nanocomposite film as substrate for flexible organic light emitting diode (OLED) display, *Industrial Crops and Products* 35 (2012) 92–97. doi:10.1016/j.indcrop.2011.06.025.
- [43] H.M.C. Azeredo, H. Barud, C.S. Farinas, V.M. Vasconcellos, A.M. Claro, Bacterial Cellulose as a Raw Material for Food and Food Packaging

- Applications, *Frontiers in Sustainable Food Systems* 3 (2019). doi:10.3389/fsufs.2019.00007.
- [44] H. Ullah, H.A. Santos, T. Khan, Applications of bacterial cellulose in food, cosmetics and drug delivery, *Cellulose* 23 (2016) 2291–2314. doi:10.1007/s10570-016-0986-y.
- [45] Z. Shi, Y. Zhang, G.O. Phillips, G. Yang, Utilization of bacterial cellulose in food, *Food Hydrocolloids* 35 (2014) 539–545. doi:10.1016/j.foodhyd.2013.07.012.
- [46] T. Khan, J.K. Park, J.H. Kwon, Functional biopolymers produced by biochemical technology considering applications in food engineering, *Korean Journal of Chemical Engineering* 24 (2007) 816–826. doi:10.1007/s11814-007-0047-1.
- [47] B. Wonganu, S. Kongruang, Red bacterial cellulose production by fermentation of *Monascus purpureus*, ICCCE 2010: International Conference on Chemistry and Chemical Engineering, Kyoto, 1-3 August 2010, 2010, p.137–141. doi:10.1109/ICCCENG.2010.5560376.
- [48] Said Benkhaya, Classifications, properties and applications of textile dyes: A review, *Applied Journal of Environmental Engineering Science* (2018) 311–320.
https://www.researchgate.net/publication/323960391_Classifications_properties_and_applications_of_textile_dyes_A_review.
- [49] S. Mohammad, I. Shahid-ul, M. Faqeer, Recent Advancements in Natural Dye Applications: A Review, *Journal of Cleaner Production* 53 (2013) 310–331. doi:10.1016/j.jclepro.2013.03.031.
- [50] A. Paz, J. Carballo, M.J. Pérez, J.M. Domínguez, Biological treatment of model dyes and textile wastewaters, *Chemosphere* 181 (2017) 168–177. doi:10.1016/j.chemosphere.2017.04.046.
- [51] H.A. Alhassani, M.A. Rauf, S.S. Ashraf, Efficient microbial degradation of Toluidine Blue dye by *Brevibacillus* sp., *Dye Pigment* 75 (2007) 395–400. doi:10.1016/j.dyepig.2006.06.019.
- [52] L. Ayed, A. Mahdhi, A. Cheref, A. Bakhrouf, Decolorization and degradation of azo dye Methyl Red by an isolated *Sphingomonas paucimobilis*: Biototoxicity and metabolites characterization, *Desalination* 274 (2011) 272–277. doi:10.1016/j.desal.2011.02.024.
- [53] T. Robinson, G. McMullan, R. Marchant, P. Nigam, Remediation of dyes in textile effluent: A critical review on current treatment technologies with a proposed alternative, *Bioresource Technology* 77 (2001) 247–255. doi:10.1016/S0960-8524(00)00080-8.
- [54] H.X. Li, B. Xu, L. Tang, J.H. Zhang, Z.G. Mao, Reductive decolorization of indigo carmine dye with *Bacillus* sp. MZS10, *International Biodeterioration &*

- Biodegradation 103 (2015) 30–37. doi:10.1016/j.ibiod.2015.04.007.
- [55] R. Sarikaya, M. Selvi, F. Erkoç, Evaluation of potential genotoxicity of five food dyes using the somatic mutation and recombination test, *Chemosphere* 88 (2012) 974–979. doi:10.1016/j.chemosphere.2012.03.032.
- [56] K. Hunger, *Industrial Dyes: Chemistry, properties, Applications*, Chapter 2, p.35–38, 2003. doi:10.1002/3527602011.
- [57] R. Cranston, Y. Gao, Recent Advances in Antimicrobial Treatments of Textiles, *Text. Res. J.* 78 (2008) 60–72. doi:10.1177/0040517507082332.
- [58] S.S.M. Hassan, N.S. Awwad, A.H.A. Aboterika, Removal of synthetic reactive dyes from textile wastewater by Sorel's cement, *Journal of Hazardous Materials* 162 (2009) 994–999. doi:10.1016/j.jhazmat.2008.05.138.
- [59] M.M. El-Zawahry, F. Abdelghaffar, R.A. Abdelghaffar, A.G. Hassabo, Equilibrium and kinetic models on the adsorption of Reactive Black 5 from aqueous solution using Eichhornia crassipes/chitosan composite, *Carbohydrate Polymers* 136 (2016) 507–515. doi:10.1016/j.carbpol.2015.09.071.
- [60] J.N. Chakraborty, *Fundamentals and Practices in Colouration of Textiles*, Chapter 3-4, p.27–42, 2014. doi:https://doi.org/10.1016/B978-93-80308-46-3.50004-2.
- [61] G. dos Santos, M.V.B. Zanoni, G.J. Zocolo, G. de A. Umbuzeiro, J. Vendemiatti, F.I. Vacchi, Using SPE-LC-ESI-MS/MS Analysis to Assess Disperse Dyes in Environmental Water Samples, *Journal of Chromatographic Science* 53 (2015) 1257–1264. doi:10.1093/chromsci/bmu221.
- [62] B.A. Horri, A.Z. Abdullah, K.B. Tan, M. Vakili, B. Salamatina, P.E. Poh, Adsorption of dyes by nanomaterials: Recent developments and adsorption mechanisms, *Separation and Purification Technology* 150 (2015) 229–242. doi:10.1016/j.seppur.2015.07.009.
- [63] N.P. Raval, P.U. Shah, N.K. Shah, Malachite green “a cationic dye” and its removal from aqueous solution by adsorption, *Applied Water Science* 7 (2017) 3407–3445. doi:10.1007/s13201-016-0512-2.
- [64] F.M.S.E. El-dars, H.M. Ibrahim, H.A.B. Farag, M.Z. Abdelwahhab, M.E.H. Shalabi, Adsorption Kinetics of Bromophenol Blue and Eriochrome Black T using Bentonite Carbon Composite Material, *International Journal of Engineering Science* 6 (2015) 679–688.
- [65] N. Tomov, N. Dimitrov, Modified bismarck brown staining for demonstration of soft tissue mast cells, *Trakia Journal of Sciences* 15 (2017) 195–197. doi:10.15547/tjs.2017.03.001.
- [66] S. Mapukata, N. Kobayashi, M. Kimura, T. Nyokong, Asymmetrical and symmetrical zinc phthalocyanine-cobalt ferrite conjugates embedded in

- electrospun fibers for dual photocatalytic degradation of azo dyes: Methyl Orange and Orange G, *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry* 379 (2019) 112–122. doi:10.1016/j.jphotochem.2019.04.048.
- [67] A. Ergene, K. Ada, S. Tan, H. Katircioğlu, Removal of Remazol Brilliant Blue R dye from aqueous solutions by adsorption onto immobilized *Scenedesmus quadricauda*: Equilibrium and kinetic modeling studies, *Desalination* 249 (2009) 1308–1314. doi:10.1016/j.desal.2009.06.027.
- [68] C.S. Lu, F. Der Mai, C.W. Wu, R.J. Wu, C.C. Chen, Titanium dioxide-mediated photocatalytic degradation of Acridine Orange in aqueous suspensions under UV irradiation, *Dyes and Pigments* 76 (2008) 706–713. doi:10.1016/j.dyepig.2007.01.009.
- [69] D. Ghime, P. Ghosh, Decolorization of diazo dye trypan blue by electrochemical oxidation: Kinetics with a model based on the Fermi's equation, *Journal of Environmental Chemical Engineering* (2018). doi:10.1016/j.jece.2018.11.037.
- [70] Reactive Green 19, <http://www.worlddyevariety.com/reactive-dyes/reactive-green-19.html> (Erişim tarihi: **5 Şubat 2019**).
- [71] E. Petrucci, L. Di Palma, R. Lavecchia, A. Zuurro, Treatment of diazo dye Reactive Green 19 by anodic oxidation on a boron-doped diamond electrode, *Journal of Industrial and Engineering Chemistry* 26 (2015) 116–121. doi:10.1016/j.jiec.2014.11.022.
- [72] EU Approved additives and E Numbers, <https://www.food.gov.uk/business-guidance/eu-approved-additives-and-e-numbers> (Erişim tarihi: **5 Şubat 2019**).
- [73] N. Erdoğan, Ponceau 4R ve İndigo Karmin Gıda Boyalarının Bağırsak Florasında Bulunan *Escherichia coli* Üzerine Etkilerinin Araştırılması, Yüksek Lisans Tezi, Gaziantep Üniversitesi, Gaziantep, **2016**.
- [74] O. Gülnaz, E. Kuşvuran, F. Matyar, H. Çakıcı, Decolorization of the textile dyes reactive blue 220, acid red 414 and basic yellow 28 by ozone and biodegradation of oxidation products, *Fresenius Environmental Bulletin* 21 (2012) 808–813.
- [75] F. Mashkoo, A. Nasar, Inamuddin, A.M. Asiri, Exploring the reusability of synthetically contaminated wastewater containing crystal violet dye using tectona grandis sawdust as a very low-cost adsorbent, *Scientific Reports* 8 (2018) 8314. doi:10.1038/s41598-018-26655-3.
- [76] M. Ajaz, A. Elahi, A. Rehman, Degradation of azo dye by bacterium, *Alishewanella* sp . CBL-2 isolated from industrial effluent and its potential use in decontamination of wastewater, *Journal of Water Reuse and Desalination* 8 (2018) 507–515. doi:10.2166/wrd.2018.065.
- [77] M.C. Collivignarelli, A. Abbà, M. Carnevale Miino, S. Damiani, Treatments for

- color removal from wastewater: State of the art, *Journal of Environmental Economics and Management* 236 (2019) 727–745. doi:10.1016/j.jenvman.2018.11.094.
- [78] V.K. Gupta, R. Jain, S. Agarwal, M. Shrivastava, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* Kinetics of photo-catalytic degradation of hazardous dye Tropaeoline 000 using UV / TiO₂ in a UV reactor, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 378 (2011) 22–26. doi:10.1016/j.colsurfa.2011.01.046.
- [79] M.C. Collivignarelli, G. Bertanza, M. Sordi, R. Pedrazzani, High-strength wastewater treatment in a pure oxygen thermophilic process: 11-year operation and monitoring of different plant configurations, *Water Science and Technology* 71 (2015) 588–596. doi:10.2166/wst.2015.008.
- [80] O. Yesilada, E. Birhanli, H. Geckil, Bioremediation and Decolorization of Textile Dyes by White Rot Fungi and Laccase Enzymes, *Mycoremediation and Environmental Sustainability* (2018) 121–153. doi:10.1007/978-3-319-77386-5_5.
- [81] S. De Gisi, G. Lofrano, M. Grassi, M. Notarnicola, Characteristics and adsorption capacities of low-cost sorbents for wastewater treatment: A review, *Sustainable Materials and Technologies* 9 (2016) 10–40. doi:10.1016/j.susmat.2016.06.002.
- [82] S.A. Butani, S.J. Mane, Coagulation/flocculation process for cationic, anionic dye removal using water treatment residuals—a review, *International Journal of Technology Management* 6 (2017) 1–5. http://www.ijstm.com/images/short_pdf/1490709190_GS148ijstm.pdf.
- [83] H. Hamad, D. Bassyouni, E.S. El-Ashtouky, N. Amin, M. Abd El-Latif, Electrocatalytic degradation and minimization of specific energy consumption of synthetic azo dye from wastewater by anodic oxidation process with an emphasis on enhancing economic efficiency and reaction mechanism, *Ecotoxicology and Environmental Safety* 148 (2018) 501–512. doi:10.1016/j.ecoenv.2017.10.061.
- [84] A. Chen, B. Yang, Y. Zhou, Y. Sun, C. Ding, Effects of azo dye on simultaneous biological removal of azo dye and nutrients in wastewater, *Royal Society Open Science* 5 (2018). doi:10.1098/rsos.180795.
- [85] V. Katheresan, J. Kansedo, S.Y. Lau, Efficiency of various recent wastewater dye removal methods: A review, *Journal of Environmental Chemical Engineering* 6 (2018) 4676–4697.
- [86] M. Solís, A. Solís, H.I. Pérez, N. Manjarrez, M. Flores, Microbial decolouration of azo dyes: A review, *Process Biochemistry* 47 (2012) 1723–1748. doi:10.1016/j.procbio.2012.08.014.
- [87] A. Alsaedi, J. Xie, X. Wang, J. Wang, G. Zhao, X. Wang, D. Chen, G. Song,

- T. Hayat, H. Chen, Polyvinylpyrrolidone and polyacrylamide intercalated molybdenum disulfide as adsorbents for enhanced removal of chromium(VI) from aqueous solutions, *Chemical Engineering Journal* 334 (2017) 569–578. doi:10.1016/j.cej.2017.10.068.
- [88] N.A. Khan, B.N. Bhadra, S.H. Jung, Heteropoly acid-loaded ionic liquid@metal-organic frameworks: Effective and reusable adsorbents for the desulfurization of a liquid model fuel, *Chemical Engineering Journal* 334 (2018) 2215–2221. doi:10.1016/j.cej.2017.11.159.
- [89] K. Vikrant, V. Kumar, K. Kim, D. Kukkar, Metal organic frameworks (MOFs): potential and challenges for capture and abatement of ammonia, *Journal of Materials Chemistry A* 5 (2017) 22877–22896. doi:10.1039/C7TA07847A.
- [90] A. Ahmad, S.H. Mohd-Setapar, C.S. Chuong, A. Khatoun, W.A. Wani, R. Kumar, M. Rafatullah, Recent advances in new generation dye removal technologies: Novel search for approaches to reprocess wastewater, *RSC Advances* 5 (2015) 30801–30818. doi:10.1039/c4ra16959j.
- [91] T.A. Nguyen, R.S. Juang, Treatment of waters and wastewaters containing sulfur dyes: A review, *Chemical Engineering Journal* 219 (2013) 109–117. doi:10.1016/j.cej.2012.12.102.
- [92] K.A. Adegoke, O.S. Bello, Dye sequestration using agricultural wastes as adsorbents, *Water Resources and Industry* 12 (2015) 8–24. doi:10.1016/j.wri.2015.09.002.
- [93] M. Amran Mohd Salleh, D. Khalid Mahmoud, K. Wan azlina wan abdul, I. Azni, Cationic and anionic dye adsorption by agricultural solid wastes: A comprehensive review, *Desalination* 280 (2011) 1–13. doi:10.1016/j.desal.2011.07.019.
- [94] M. Rafatullah, O. Sulaiman, R. Hashim, A. Ahmad, Adsorption of methylene blue on low-cost adsorbents: A review, *Journal of Hazardous Materials* 177 (2010) 70–80. doi:10.1016/j.jhazmat.2009.12.047.
- [95] J. Liu, Z. Wang, H. Li, C. Hu, P. Raymer, Q. Huang, Effect of solid state fermentation of peanut shell on its dye adsorption performance, *Bioresource Technology* 249 (2018) 307–314. doi:10.1016/j.biortech.2017.10.010.
- [96] S. Hestrin, M. Schramm, Synthesis of cellulose by *Acetobacter xylinum*. 2. Preparation of freeze-dried cells capable of polymerizing glucose to cellulose, *Biochemical Journal* 58 (1954) 345–352. doi:10.1042/bj0580345.
- [97] T.C. McIlvaine, A buffer solution for colorimetric comparison., *The Journal of Biological Chemistry* 49 (1921) 183–186. <http://ebooks.cambridge.org/ref/id/CBO9781107415324A009>.
- [98] R. Jayabalan, R. V. Malbaša, E.S. Lončar, J.S. Vitas, M. Sathishkumar, A review on kombucha tea-microbiology, composition, fermentation, beneficial effects, toxicity, and tea fungus, *Comprehensive Reviews in Food Science*

- and Food Safety 13 (2014) 538–550. doi:10.1111/1541-4337.12073.
- [99] A. Mazli, M.N. Hasan, A. Li, F.A.T. Sobri, C. Kue, Antioxidative and hepatoprotective effect of kombucha sweetener on Acetaminophen-Induced liver injury, International Journal of Medical Toxicology and Legal Medicine 21 (2018) 95. doi:10.5958/0974-4614.2018.00040.2.
- [100] R. Du, F. Zhao, Q. Peng, Z. Zhou, Y. Han, Production and characterization of bacterial cellulose produced by *Gluconacetobacter xylinus* isolated from Chinese persimmon vinegar, Carbohydrate Polymers 194 (2018) 200–207. doi:10.1016/j.carbpol.2018.04.041.
- [101] M. Lu, X. Lü, X. Xu, X. Guan, Thermodynamics and kinetics of bacterial cellulose adsorbing persistent pollutant from aqueous solutions, Chemical Research in Chinese Universities 31 (2015) 298–302. doi:10.1007/s40242-015-4275-3.
- [102] A. Ali, E.Y. Mohammad, R. Abosaeed, K. Ramin, R. Abbas, Biosorption thermodynamic and kinetic of direct dye from aqueous solutions on bacterial cellulose, African Journal of Microbiology Research 6 (2016) 1270–1278. doi:10.5897/ajmr11.1506.
- [103] D. Suteu, G. Biliuta, L. Rusu, S. Coseri, G. Nacu, Cellulose cellets as new type of adsorbent for the removal of dyes from aqueous media, Environ. Eng. Manag. J. 14 (2015) 525–532.
- [104] X. Huang, X. Zhan, C. Wen, F. Xu, L. Luo, Amino-functionalized magnetic bacterial cellulose/activated carbon composite for Pb²⁺ and methyl orange sorption from aqueous solution, Journal of Materials Science & Technology 34 (2018) 855–863. doi:10.1016/j.jmst.2017.03.013.
- [105] V.M. Vučurović, V. Puškaš, U.D. Miljić, Removal of acridine orange dye from aqueous solution by adsorption onto dried sugar beet pulp, Acta Periodica Technologica (2017) 307–314. doi:10.2298/APT1748307V.
- [106] A.K. Nayak, A. Pal, Rapid and high-performance adsorptive removal of hazardous acridine orange from aqueous environment using *Abelmoschus esculentus* seed powder: Single- and multi-parameter optimization studies, Journal of Environmental Management 217 (2018) 573–591. doi:10.1016/j.jenvman.2018.03.137.
- [107] K. Shahul Hameed, P. Muthirulan, M. Meenakshi Sundaram, Adsorption of chromotrope dye onto activated carbons obtained from the seeds of various plants: Equilibrium and kinetics studies, Arabian Journal of Chemistry 10 (2017) S2225–S2233. doi:10.1016/j.arabjc.2013.07.058.
- [108] S. Hashemian, J. Shayegan, A comparative study of cellulose agricultural wastes (almond shell, pistachio shell, walnut shell, tea waste and orange peel) for adsorption of violet B dye from aqueous solutions, Oriental Journal of Chemistry 30 (2014) 2091–2098. doi:10.13005/ojc/300478.

- [109] Y. Bulut, H. Aydin, A kinetics and thermodynamics study of methylene blue adsorption on wheat shells, *Desalination* 194 (2006) 259–267. doi:10.1016/j.desal.2005.10.032.
- [110] D.C. Fiallos, C.V. Gómez, G. Tubon Usca, D.C. Pérez, P. Tavolaro, G. Martino, L.S. Caputi, A. Tavolaro, Removal of acridine orange from water by graphene oxide, *AIP Conference Proceedings*: 1646 (2015) 38–45. doi:10.1063/1.4908580.
- [111] X. Zhang, W. Chen, Z. Lin, J. Shen, X. Zhang, W. Chen, Z. Lin, J. Shen, Photocatalytic Degradation of a Methyl Orange Wastewater Solution Using Titanium Dioxide Loaded on Bacterial Cellulose, *Synthesis and Reactivity in Inorganic Metal-Organic and Nano-Metal Chemistry* (2011) 1141–1147. doi:10.1080/15533174.2011.591359.
- [112] S. Marković, A. Stanković, Z. Lopičić, S. Lazarević, M. Stojanović, D. Uskoković, Application of raw peach shell particles for removal of methylene blue, *Journal of Environmental Chemical Engineering* (2015) 716–724. doi:10.1016/j.jece.2015.04.002.
- [113] H. Lade, A. Kadam, D. Paul, S. Govindwar, A low-cost wheat bran medium for biodegradation of the benzidine-based carcinogenic dye trypan blue using a microbial consortium, *International Journal of Environmental Research and Public Health* 12 (2015) 3480–3505. doi:10.3390/ijerph120403480.
- [114] B. V. Mohite, S. V. Patil, Bacterial cellulose of *Gluconoacetobacter hansenii* as a potential bioadsorption agent for its green environment applications, *Journal of Biomaterials Science, Polymer Edition* 25 (2014) 2053–2065. doi:10.1080/09205063.2014.970063.
- [115] Reactive Red 198, <https://pubchem.ncbi.nlm.nih.gov/compound/166507#section=2D-Structure> (Erişim tarihi: **5 Şubat 2019**).
- [116] Sudan black B, <https://pubchem.ncbi.nlm.nih.gov/compound/61336> (Erişim tarihi: **5 Şubat 2019**).
- [117] Malachite Green chloride, <https://www.sigmaaldrich.com/catalog/product/sial/38800?lang=en®ion=TR> (Erişim tarihi: **20 Mayıs 2019**).
- [118] Orange G, <https://www.sigmaaldrich.com/catalog/substance/orangeg45237193615811?lang=en®ion=TR> (Erişim tarihi: **5 Şubat 2019**).
- [119] Remazol Brilliant Blue R, <https://www.sigmaaldrich.com/catalog/product/sigma/r8001?lang=en®ion=TR> (Erişim tarihi: **5 Şubat 2019**).
- [120] Acridine Orange base, <https://www.sigmaaldrich.com/catalog/product/aldrich/235474?lang=en®i>

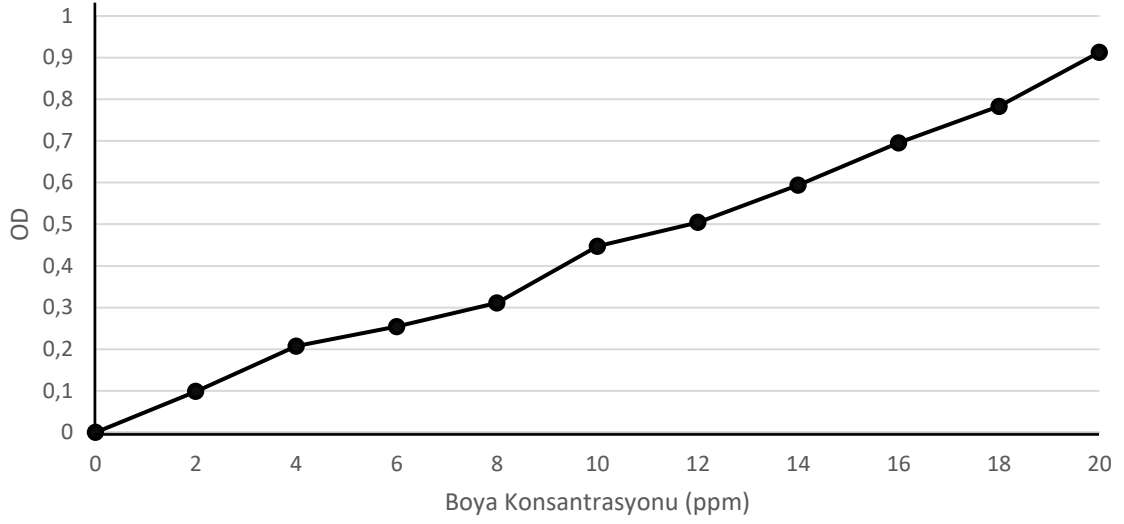
on=TR (Eriřim tarihi: **20 Mayıs 2019**).

[121] Trypan Blue,
<https://www.sigmaaldrich.com/catalog/product/aldrich/302643?lang=en®ion=TR> (Eriřim tarihi: **20 Mayıs 2019**).

[122] Indigo Carmine Boyası, <https://www.sigmaaldrich.com/catalog/substance/ind>
(Eriřim tarihi: **20 Mayıs 2019**).

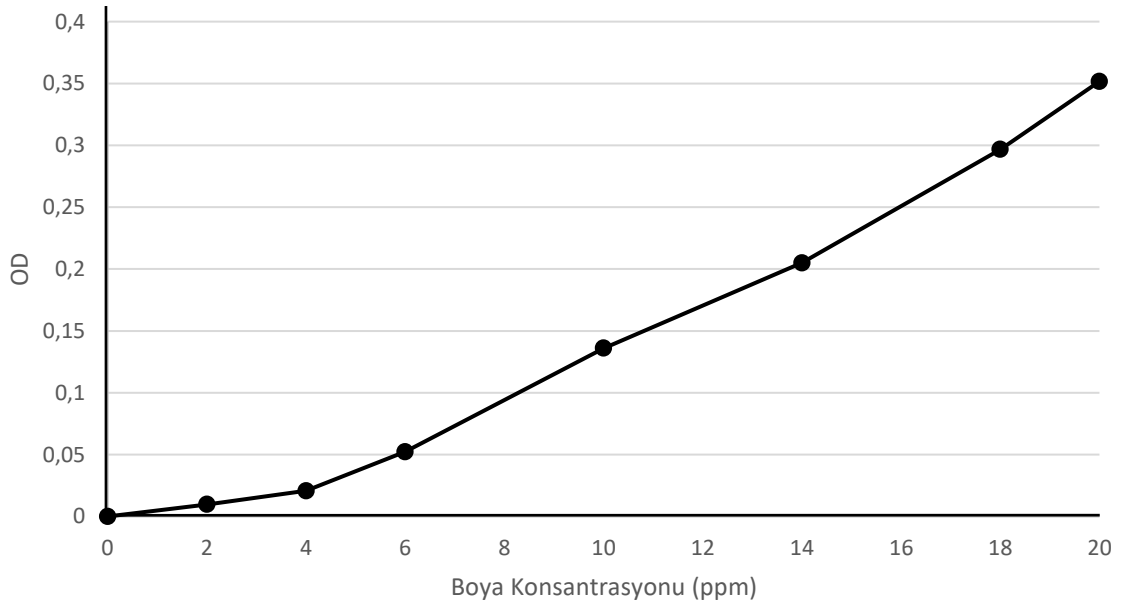
EKLER

EK 1 – Spektrumlar



Trifan Mavisi Boyası Standart Eğri Grafiği

(597 nm'de ölçülmüştür.)



Akridin Turuncusu Boyası Standart Eğri Grafiği

(489 nm'de ölçülmüştür.)



HACETTEPE ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ
YÜKSEK LİSANS/DOKTORA TEZ ÇALIŞMASI ORJİNALLİK RAPORU

HACETTEPE ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLER ENSTİTÜSÜ
BİYOLOJİ (BİYOTEKNOLOJİ) ANABİLİM DALI BAŞKANLIĞI'NA

Tarih: 11/07/2019

Tez Başlığı / Konusu: Mikrobiyal Selülozun Boya Gideriminde Kullanımının Araştırılması

Yukarıda başlığı/konusu gösterilen tez çalışmamın a) Kapak sayfası, b) Giriş, c) Ana bölümler, d) Sonuç kısımlarından oluşan toplam 74 sayfalık kısmına ilişkin, 11/07/2019 tarihinde ~~şahsım~~/tez danışmanım tarafından Turnitin adlı intihal tespit programından aşağıda belirtilen filtrelemeler uygulanarak alınmış olan orijinallik raporuna göre, tezimin benzerlik oranı %2 'dir.

Uygulanan filtrelemeler:

- 1- Kaynakça hariç
- 2- Alıntılar dâhil
- 3- 5 kelimeden daha az örtüşme içeren metin kısımları hariç

Hacettepe Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Tez Çalışması Orjinallik Raporu Alınması ve Kullanılması Uygulama Esasları'nı inceledim ve bu Uygulama Esasları'nda belirtilen azami benzerlik oranlarına göre tez çalışmamın herhangi bir intihal içermediğini; aksinin tespit edileceği muhtemel durumda doğabilecek her türlü hukuki sorumluluğu kabul ettiğimi ve yukarıda vermiş olduğum bilgilerin doğru olduğunu beyan ederim.

Gereğini saygılarımla arz ederim.

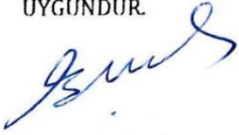
11.07.2019

Tarih ve İmza

Adı Soyadı: Meriç Birben
Öğrenci No: N16121047
Anabilim Dalı: Biyoloji
Programı: Biyoteknoloji
Statüsü: Y.Lisans Doktora Bütünleşik Dr.

DANIŞMAN ONAYI

UYGUNDUR.


Prof. Dr. Işıl SEYİS BİLKAY
(Unvan, Ad Soyad, İmza)

ÖZGEÇMİŞ

Adı Soyadı : Meriç BİRBEN
Doğum yeri : ANKARA
Doğum tarihi : 09 / 01 / 1992
Medeni hali : Bekar
Yazışma adresi : Tunahan Mah. Üç Şehitler Cad. 17633 Ada 3.Blok Nu:24
Eryaman
Telefon : +90 (544) 8354838
Elektronik posta adresi : mericbrbn@gmail.com
Yabancı dili : İngilizce - YÖKDİL (81,25)
İngilizce - IELTS (6,0)

EĞİTİM DURUMU

Lise : Ankara Anadolu Lisesi, Ankara
Lisans : Hacettepe Üniversitesi Fen Fakültesi Biyoloji Bölümü, Ankara
Yüksek Lisans : Hacettepe Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü Biyoloji
Bölümü Biyoteknoloji Anabilim Dalı, Ankara

TEZDEN ÜRETİLMİŞ PROJE ve BÜTÇESİ

Bu çalışma, Hacettepe Üniversitesi Bilimsel Araştırmalar Birimi tarafından FHD-2017-16379 no'lu proje ile desteklenmiştir.