



HASTANE ATIKSULARINDAKİ MİKROKİRLETİCİLER VE MİKROKİRLETİCİLERİN MEMBRAN BİYOREAKTÖRLERDE GİDERİMİ

İnci KARAKAŞ^{1,2*}, Yasemin KAYA², İlda VERGİLİ², Z. Beril GÖNDER², Gülsüm YILMAZ²

¹ Üsküdar Üniversitesi, Sağlık Hizmetleri Meslek Yüksekokulu, Çevre Sağlığı Programı, İstanbul, Türkiye

² İstanbul Üniversitesi-Cerrahpaşa, Mühendislik Fakültesi, Çevre Mühendisliği Bölümü, İstanbul, Türkiye

Anahtar Kelimeler	Öz
<i>Hastane Atıksuyu, Mikrokirletici, MBR.</i>	Mikrokirleticiler, biyolojik olarak parçalanabilirliklerinin düşük olması sebebiyle ekosistemde birikme eğilimi göstermekte ve canlı hayatı için toksik, kanserojenik ve mutajenik etkileriyle büyük bir risk oluşturmaktadır. Yaygın olarak içme suları, yüzeysel sular ve yeraltı sularında da nanogram seviyesinde tespit edilen mikrokirleticiler; hastane atıksularında çok yüksek konsantrasyonlarda bulunabilmektedir. Ülkemizde hastane atıksuları doğrudan kanalizasyon sistemine verilerek, evsel atıksularla beraber ön arıtma yapılarak veya biyolojik atıksu arıtma tesisinde arıtıldıktan sonra alıcı ortama verilmektedir. Klasik atıksu arıtma yöntemleriyle atıksulardan giderilemeyen mikrokirleticilerin, ancak ileri atıksu arıtma yöntemleriyle giderimi mümkün olabilmektedir. Bu çalışmada, hastane atıksularındaki mikrokirleticilerin membran biyoreaktörde (MBR) giderimi ve işletme parametrelerinin giderim verimleri üzerine etkisi incelenmiştir.

MICROPOLLUTANTS IN HOSPITAL WASTEWATER AND TREATMENT IN MEMBRANE BIOREACTORS

Keywords	Abstract
<i>Hospital Wastewater, Micropollutants, MBR.</i>	Micropollutants tend to accumulate in the ecosystem due to their low biodegradability and pose a great risk for ecosystem with their toxic, carcinogenic and mutagenic effects. Generally micropollutants detected at ng levels even in drinking, surface and ground water might have very high concentrations in hospital wastewater. In our country, the hospital wastewater directly connected to sewage system is discharged into the receiving environment after treating in a pre-treatment or a biological wastewater treatment plant. Advanced treatment methods are needed for micropollutant removal since conventional methods could not be effective. In this study, the treatment of micropollutants in hospital wastewater in membrane bioreactor (MBR) system and the effects of operation parameters on the removal efficiency were evaluated.

Alıntı / Cite

Karakas, I., Kaya, Y., Vergili, I., Gönder, Z. B., Yilmaz, G., (2022). Hastane Atıksularındaki Mikrokirleticiler ve Mikrokirleticilerin Membran Biyoreaktörlerde Giderimi, Mühendislik Bilimleri ve Tasarım Dergisi 10(2), 722-739.

Yazar Kimliği / Author ID (ORCID Number)

I. Karakas, 0000-0002-3590-3395
Y. Kaya, 0000-0001-7360-8090
I. Vergili, 0000-0001-9083-3097
Z. B. Gönder, 0000-0002-3263-4425
G. Yilmaz, 0000-0002-7692-6024

Makale Süreci / Article Process

Başvuru Tarihi / Submission Date	17.04.2021
Revizyon Tarihi / Revision Date	22.02.2021
Kabul Tarihi / Accepted Date	09.03.2022
Yayın Tarihi / Published Date	30.06.2022

1. Giriş (Introduction)

Mikrokirleticiler günümüzde endüstriyel prosesler, tarımsal uygulamalar, günlük yaşam aktiviteleri gibi insan faaliyetleri sonucunda üretilen (Aemig vd., 2020) ve çok düşük konsantrasyonlarda dahi canlı yaşamı üzerinde toksisite, kalıcılık ve biyoakümüülasyon etkilerine sahip bileşikler olarak tanımlanmaktadır (Fent vd., 2006; Bebianno ve Gonzalez- Rey, 2015; Sangion ve Gramatica, 2016). Bu maddelerin büyük miktarlarda üretildiği,

* İlgili yazar / Corresponding author: inci.karakas@uskudar.edu.tr, +90-216-400-2222

kullanıldığı ve sucul çevrede kalıcı olabildiği düşünüldüğünde sorunun büyüklüğü daha da öne çıkmaktadır (Yamamoto vd., 2009). Son 20 yılda, yüzey sularında, yeraltı sularında ve atıksularda mikrokirleticilerin varlığı yaygın olarak tespit edilmektedir (Kasonga vd., 2021). Bu kirleticilerin, doğrudan ya da dolaylı olarak kentsel atıksular, endüstriyel deşarjlar, hastane kaynaklı deşarjlar, hayvancılık faaliyetleri ve yüzey akışları ile birlikte sucul ekosisteme girebildiği belirtilmektedir (Klatte vd., 2017; Yang vd., 2017; Noutsopoulos vd., 2019). Ekosisteme giren mikrokirleticiler içeriğindeki lipofilik moleküller sebebiyle, organizmalara kolaylıkla geçebilmekte ve insan sağlığı için büyük bir tehdit oluşturmaktadır (Morehead vd., 2018). Atıksular çok çeşitli organik ve inorganik mikrokirleticiler içermektedir (Besha vd., 2017). Organik mikrokirleticiler; canlı organizmalar ve insanlar üzerinde kanserojenik etki, endokrin bozucu etki gibi bilinen etkilere sahiptir. İnorganik mikrokirleticiler de formlarına bağlı olarak kanserojenik etki, sinir sisteminin bozulması, mide sorunları, dermal patolojiler gibi sağlık üzerinde farklı etkiler oluşturmaktadır (Gwenzi vd., 2018).

Hastane atıksularının kompozisyonu nitelik olarak evsel atıksulara benzerlik göstermesinin yanında içerdiği mikrokirleticiler, dezenfektanlar ve laboratuvarlarda kullanılan çeşitli kimyasallar nedeniyle evsel atıksulardan daha problemlili atıksular olarak dikkate alınmalıdır. Su ortamlarında hastane kaynaklı mikrokirleticilerin bulunmasının nedenleri arasında; çeşitli hastalıklara karşı kullanılan ilaçların tamamen metabolize edilmeden vücuttan atılması ve klasik arıtma tesislerinde de yeterince arıtılmaması gösterilmektedir. Bu sebeple, atıksu arıtma tesisi çıkışında çok çeşitli mikrokirleticiler tanımlanmaktadır (Stülten vd., 2008; Zhang vd., 2008; Santos vd., 2009; Pal vd., 2010; Gros vd., 2012; Padhye vd., 2014; Comber vd., 2018). Mikrokirleticiler doğal ekosistemlere sürekli olarak deşarj edilmekte ve tüm yaşam döngüsü boyunca da sucul türleri etkilemektedir (Fent vd., 2006; Santos vd., 2010; Bebianno ve Gonzalez-Rey, 2015; Mezzelani vd., 2016a; b). İlk olarak ABD'de arıtılmış atıksularda 70'li yıllarda klofibratik asit, salisilik asit ve klofibratin metabolitleri tespit edilmiştir (Hignite ve Azarnoff, 1977). Yaklaşık 10 yıl sonra, İngiltere'de nehirlerde ve atıksu arıtma tesislerinin çıkış sularında kemoterapi ilaçlarının ve sentetik steroidlerin varlığı tespit edilmiştir (Aherne vd., 1985; Richardson ve Bowron, 1985). 90'lı yılların ortalarında su ekosistemlerindeki mikrokirleticilerin, analitik tekniklerin daha da ilerlemesiyle ng/L aralıklarında tespit edilebildiği belirtilmiştir (Santos vd., 2010). 2015 yılında yapılan çalışmayla ilaç kullanımının, dünya genelinde yılda 4500 kg doza ulaşacağı ve 2015 yılına kıyasla gelecekte %24 daha fazla olacağı; aynı zamanda, dünya nüfusunun %50'sinin günde kişi başına tüketmesi gerekenden daha fazla dozda ilaç tüketeceği belirtilmiştir (QuintilesIMSHealth, 2015). İnsan ve hayvan hastalıklarını tedavi etmek için yaygın olarak kullanılan antibiyotikler, atıksularda yüksek konsantrasyonda tespit edilmiştir (Li, 2014; Sabri vd., 2018). Antibiyotiklerin, suda çözünürlüklerinin yüksek olması sebebiyle çevre kirliliğinde önemli bir rol oynadığı vurgulanmıştır (Türkyılmaz vd., 2020). Bu sebeple antibiyotiklerin çevrede ortaya çıkması, antibiyotik dirençli bakterilerin (ADB) varlığı ve birikimine bağlı olarak çevre güvenliği ve halk sağlığı açısından ciddi risklere neden olmaktadır (Berendonk vd., 2015; Sharma vd., 2016). ADB'lerin atıksu arıtma tesisi çıkışındaki varlığı doğal ortamlar açısından ekolojik bir risk oluşturmaktadır (Zhu vd., 2018). Bu çalışmada, ekosistem ve hastane atıksularında mikrokirleticilerin varlığı ve bunların membran biyoreaktör (MBR)'lerdeki giderimleri araştırılarak; işletme parametrelerinin mikrokirletici giderimine etkisi değerlendirilmiştir.

2. Mikrokirleticilerin Ekosistemdeki Varlığı (Presence of Micropollutants in the Ecosystem)

Hastane atıksuları, sucul ekosistemdeki mikrokirleticiler için önemli bir kaynak oluşturmaktadır. Doğrudan deşarj edilen veya arıtma tesislerinde yeterli seviyede arıtılmayan hastane atıksularından kaynaklanan mikrokirleticiler yüzeysel sulara, yeraltı sularına ve içme sularına ulaşması çevresel riskin büyüklüğünü daha net ortaya çıkarmaktadır. Su ortamındaki mikrokirleticiler, sedimentlerde de birikebilmektedir (Bebianno ve Gonzalez-Rey, 2015; Peake vd., 2016). Mikrokirleticilerin çevrede uzun süre kalıcı olması ve biyo-parçalanabilirliklerinin düşük olması yanında; toksik, kanserojenik ve mutajenik etkilere yol açtığı bilinmektedir. Bu nedenle, kirletici maddelerin suda yaşayan organizmalar üzerindeki etkisinin değerlendirilmesi amacıyla, çevredeki ekotoksik kimyasalların konsantrasyonlarının belirlenmesi ve toksisite değerlerinin karşılaştırılması gerekmektedir (Guruge vd., 2019).

Güneş ışınlarının etkisiyle sucul ekosistemde bulunan karbamazepin ve akridin gibi mikrokirleticilerin fotoliziyle toksik, mutajenik ve kanserojenik etkilerinde artış meydana gelmektedir (Chitescu vd., 2015; Ebele vd., 2017). Kontrollü laboratuvar koşullarında yapılan araştırmalarla yumuşakçaların, kabukluların ve balıkların mikrokirleticileri kendi bünyelerinde biriktirdikleri ve makroalg, yumuşakçalar, kabuklular ve farklı ekolojik kategorilere ait balıklar da dâhil olmak üzere tatlı sularda ve denizlerde çeşitli mikrokirleticilerin bulunduğu tespit edilmiştir (Almeida vd., 2014; Fong ve Ford, 2014; Alvarez Munoz vd., 2015; Liu vd., 2015; Mezzelani vd., 2016a; b). Mikrokirleticilerin çevresel risk değerlendirmesi (ÇRD) yapılması esnasında, bu bileşiklerin ana kaynağının atıksu arıtma tesislerinin olduğu varsayılmakta ve yüzeysel suda öngörülen çevresel konsantrasyon (ÖÇK) hesaplanmaktadır. Atıksu arıtma tesislerinde herhangi bir ilaç biyodegradasyonu meydana gelmemekte, yıllık tüketilen miktar zamana eşit olarak dağıtılmakta ve alan genelinde metabolizma dikkate alınmamaktadır (Mezzelani vd., 2018).

$$\text{Sucul ÖÇK (g/L)} = A \times (100 - R) / 365 \times P \times V \times D \times 100 \quad (1)$$

A = Yıllık tüketilen ilaç miktarı [kg]

R = Adsorpsiyon, buharlaşma, hidroliz, biyolojik bozunma veya diğer işlemler yoluyla çevreden uzaklaştırılan bileşiğin yüzdesi (%)

P = Değerlendirilen alandaki kişi sayısı

V = Kişi başına günlük atıksu miktarı (genellikle 0,15-0,30 m³ arasında)

D = Seyreltme faktörü (genellikle 10)

100 = Yüzde dönüşüm faktörü

Eşitlik 1'de ÖÇK değeri 0.01 µg/L'nin altındaysa, çevre için bir risk oluşturmayacağı vurgulanmaktadır. Bu değer üzerindeyse; ÖÇK/ÖEOK oranını değerlendiren bir analiz daha yapılacağı belirtilmektedir. ÖEOK; tipik olarak akut toksisite biyo deneyinden elde edilen Öngörülen Etkili Olmayan Konsantrasyon olarak tanımlanmaktadır. ÖÇK / ÖEOK <1 ise, bileşiğin seviyelerinin sucul ortam için bir risk oluşturma olasılığı bulunmayacağı belirtilmiştir (Directive, 2001/83 ve Regulation 726/2004).

Avrupa Komisyonunun 2008 yılındaki tebliğinde su ve toprağın ilaç kalıntıları tarafından kirletilmesinin, önlem alınması gereken bir çevre ve halk sağlığı problemi olduğu belirtilmektedir. Mikrokirleticileri içeren ürünlerin üretimi ve kullanımı, atıksu arıtma tesislerine ulaşan mikrokirletici miktarı üzerinde etkili olmaktadır. Ayrıca yerel yaygın hastalıklar belirli dönemlerde daha fazla spesifik ilaç tüketimine neden olabilmektedir. Ağızdan alınan ilaçlar insan vücudunda metabolize edilmekte ve daha sonra idrar ve dışkı yoluyla atılmaktadır. Ham atıksuda karşılaşılan mikrokirleticilerin konsantrasyonlarının idrar ve dışkı yoluyla atılan mikrokirleticilerle ilişkili olduğu belirtilmektedir. Çevrede risk oluşturma durumuna göre bir sıralama yapıldığında α-etinilestradiol, 17-β estradiol, estron, diklofenak, eritromisin, klaritromisin ve azitromisinin yüksek etkiye sahip olduğu görülmektedir (Benedetti vd., 2012).

Araştırmalar farklı iklim koşullarının etkisiyle, mikrokirleticilerin farklı konsantrasyonlarda çevrede bulunabileceğini göstermektedir (Kolpin vd., 2004). Mikrokirleticilerin atıksu arıtma tesislerindeki konsantrasyonlarıyla ilgili olarak bir diğer önemli noktanın birleşik kanalizasyon sistemi kullanıldığında atıksu girişinin akış düzenini etkilemesi sebebiyle yağmur suyu olduğu belirtilmektedir. Yağmur suyunun kanalizasyon içindeki bileşiklerin konsantrasyonlarını seyrelteceği düşünülmektedir. Çoğu mikrokirletici, atıksu arıtma tesislerinde 0.1 ile 10 µg/L aralığında değişebilen konsantrasyonlarda bulunmaktayken; bazı mikrokirleticiler (analjezik grubunda olan asetaminofen, anti-inflamatuar grubunda olan ibuprofen, naproksen ve bitkisel hormonlar grubunda olan salisilik asit), biyosit (triklosan), yüzey aktif madde (nonilfenol) nispeten daha yüksek konsantrasyonlarda bulunmaktadır.

3. Hastane Atıksularının Özellikleri (Characteristics of Hospital Wastewater)

Hastane atıksuları, evsel nitelikli atıksuların yanı sıra; mikrokirleticileri de içeren atıksulardan oluşmaktadır. Evsel nitelikli atıksular yemekhane ve çamaşırhaneden kaynaklanmakta olup; mikrokirleticilerin temel kaynakları arasında laboratuvarlar, araştırma birimleri, ameliyathaneler ve polikliniklerden gelen atıksular yer almaktadır. Hastanelerde mevcut birimlere ve yapılan faaliyetlere bağlı olarak su tüketiminin evlerde kullanımına kıyasla daha büyük miktarda olduğu belirtilmektedir. Oluşan atıksu miktarı hastanedeki yatak kapasitesi, hastanenin yaşı, servisler (çamaşırhane, yemekhane gibi), tedavi birimlerinin sayısı ve tipi, iklim, kültürel ve coğrafik şartlara göre değişkenlik göstermektedir (Verlicchi vd., 2010). Hastane atıksularının içeriğinde genellikle röntgen kontrast maddeler, dezenfektanlar, ilaç aktif maddeler ve arıtma yüksek direnç gösteren mikrobiyolojik çeşitlilik yoğun olarak görülmektedir. Hastane atıksularındaki kirleticiler sınıflandırıldığında; ilaç aktif maddeler, (analjezikler ve anti-inflamatuarlar, anestezipler, antibiyotikler, psikiyatrik ilaçlar, beta blokerler, lipit düzenleyiciler, antihipertansifler) antifungallar, röntgen ilaçları, antineoplastikler, antiseptikler, antiviraller, hormonlar, reseptör antagonistleri ve uyarıcılar olduğu görülmektedir (Verlicchi vd., 2010). Hastane atıksuları makro ve mikro kirleticileri içermektedir. Makrokirleticiler başlıca BOİ₅, KOİ, azot ve fosfor bileşikleri olarak; mikrokirleticiler ise ilaç aktif maddeleri, pestisitler, adsorplanabilen organik halojenler, kişisel bakım ürünleri, endokrin bozucular, bulaşıcı idrar/dışkı gibi biyolojik sıvılar, solventler gibi kirleticiler olarak tanımlanmaktadır (Gönder vd., 2021). Türkiyede hastane atıksularının karakterizasyonu ile ilgili bazı çalışmalar gerçekleştirilmiştir (Yılmaz vd., 2017; Aydın vd., 2019; Gönder vd., 2021; Hocaoglu vd., 2021). Yılmaz vd. (2017) tarafından yapılan çalışmada, makrokirleticilerin yanı sıra ilaç aktif maddeleri ve metabolitleri, korozyon önleyiciler ve pestisitler analiz edilmiştir. Atıksularda toksisite analizi ve çevresel risk değerlendirmesi yapılmıştır. Çalışmada İstanbul'da bulunan Türkiye'nin en büyük iki tıp fakültesi hastanesinin ve bir eğitim araştırma hastanesinin atıksularında mikrokirletici ve toksisite analizleri yapılmıştır. Antibiyotikler ve analjezikler ve en yaygın tespit edilen mikrokirleticiler olarak tespit edilmiştir. Sık reçete edilen bir analjezik olan Parasetamol 3 hastanenin de atıksuyunda yüksek konsantrasyonlarda (65 µg/L) tespit edilmiştir. Araştırılan hastane atıksularından biri çok çeşitli ve yüksek konsantrasyonlarda antibiyotik içermesi nedeniyle antibiyotik dirençliliği açısından riskli olarak

değerlendirilmiştir. Türkiyede yapılan bir diğer çalışmada ise İstanbul'daki bir tıp fakültesi hastanesinin atıksuyunda makrokirleticilerin yanı sıra 20 antibiyotik, 8 analjezik ve antiinflamatuvar, 5 sitostatik madde, 7 β -bloker, 4 lipit düzenleyici, 13 psikiyatrik, 1 antidiyabetik, 1 reseptör antagonisti, 1 lokal anestezi, 1 antihipertansif ve 5 antihipertansif metaboliti, 8 hormon, 6 röntgen kontrast maddesi, 3 benzotriazol, 6 pestisit ile hastane atıksularındaki antibiyotik direnci araştırılmıştır (Gönder vd., 2021). Elde edilen sonuçlara göre; antibiyotik grubunda en yüksek konsantrasyonda sülfametoksazol (35 $\mu\text{g/L}$) ve metaboliti 4 N-asetil-sülfametoksazol (43 $\mu\text{g/L}$) saptanırken analjezik ve antiinflamatuvar grubunda yer alan parasetamol (210 $\mu\text{g/L}$) en yüksek konsantrasyonda tespit edilmiştir. İncelenen tüm mikrokirleticiler arasında hastane atıksuyundaki en yüksek konsantrasyona röntgen kontrast maddelerin sahip olduğu (3000 $\mu\text{g/L}$) vurgulanmıştır. Aydın vd. (2019) tarafından yapılan çalışmada, ülkemizdeki 16 farklı hastane atıksuyunda antibiyotikler analiz edilmiştir. Araştırılan antibiyotikler içinde en yüksek konsantrasyonlar azitromisin, klaritromisin ve siprofloksasin için ölçülmüştür. Hocaoglu vd. (2021) tarafından yapılan çalışmada ise, hastane atıksuyunda makrokirleticiler için ayrıntılı karakterizasyon, metal analizleri ve adsorplanabilen organik halojenler (AOX) analizleri yapılmıştır. Ayrıca, ana organik kirleticilerin boyut dağılımı ve KOİ fraksiyonasyonu araştırılmıştır. Tablo 1'de hastane atıksularının bazı makrokirleticiler ve ilaç kalıntılarında kalan bazı mikrokirleticiler için karakterizasyonu özetlenmektedir.

Tablo 1. Hastane atıksularının karakterizasyonu (Characterization of hospital wastewater)

Parametre	Birim	Konsantrasyon	Kaynak
pH	-	6.58-8.63 7.47 \pm 0.21 5.6-7.2	Aydın vd., 2019 Ouarda vd., 2019 Hocaoglu vd., 2021
KOİ	mg/L	500 155-405 633-1012 183-818 441 \pm 99 180-920 263-2325	Verlicchi vd.,2010 Nguyen vd.,2017 Mir-Tutusaus vd.,2017 Aydın vd., 2019 Ouarda vd., 2019 Gönder vd., 2021 Hocaoglu vd., 2021
TSS	mg/L	160 120-400 27-125 193-284 100-430 102-1060	Verlicchi vd.,2010 Verlicchi vd.,2015 Nguyen vd.,2017 Mir-Tutusaus vd.,2017 Gönder vd., 2021 Hocaoglu vd., 2021
NH ₄ -N	mg/L	3-11.2 9.9-36 21-58 25-55	Nguyen vd.,2017 Mir-Tutusaus vd.,2017 Gönder vd., 2021 Hocaoglu vd., 2021
TKN	mg/L	5-80 11.4-32.5 35-90 38-105	Verlicchi vd.,2010 Nguyen vd.,2017 Gönder vd., 2021 Hocaoglu vd., 2021
PO ₄ -P	mg/L	6-19 0.5-1.3 3-7.1	Verlicchi vd.,2015 Mir-Tutusaus vd.,2017 Gönder vd., 2021
TP	mg/L	0.2-13 1-3 3.8-10 0.7-15.5	Verlicchi vd.,2010 Nguyen vd.,2017 Gönder vd., 2021 Hocaoglu vd., 2021
AOX	$\mu\text{g/L}$	1371 550-10000 775-2200 3200-32000	Verlicchi vd.,2010 Verlicchi vd.,2015 Gönder vd., 2021 Hocaoglu vd., 2021
Parasetamol	$\mu\text{g/L}$	7.4-65 41-210	Yılmaz vd., 2017 Gönder vd., 2021
Diklofenak	$\mu\text{g/L}$	0.62-2.3 0.16 \pm 0.05 0.1-11	Yılmaz vd., 2017 Ouarda vd., 2019 Gönder vd., 2021
İbuprofen	$\mu\text{g/L}$	0.6 20 \pm 3 8	Yılmaz vd., 2017 Ouarda vd., 2019 Gönder vd., 2021
Sülfametoksazol	$\mu\text{g/L}$	8.5 0.0015-0.373 3 \pm 3 6.7-35	Yılmaz vd., 2017 Aydın vd., 2019 Ouarda vd., 2019 Gönder vd., 2021

Klaritromisin	µg/L	0.1-15 0.0015-2.07 0.06 ± 0.05 1.8-8.4	Yılmaz vd., 2017 Aydın vd., 2019 Ouarda vd., 2019 Gönder vd., 2021
Karbamazepin	µg/L	0.1-1.2 0.62 ± 0.80 0.54-2.5	Yılmaz vd., 2017 Ouarda vd., 2019 Gönder vd., 2021
Bisphenol A	µg/L	0.9-3.4 14	Cruz-Morató vd., 2014 Gönder vd., 2021
17-α-Estradiol	µg/L	0.031	Gönder vd., 2021
17-α-Ethinylestradiol	µg/L	0.03-0.4 0.68	Lin ve Tsai, 2009 Gönder vd., 2021
17-β-Estradiol	µg/L	0.03-2 0.14	Lin ve Tsai, 2009 Gönder vd., 2021
Ioheksol	µg/L	<20-1700 1.9-1000	Weissbrodt vd., 2009 Gönder vd., 2021
Iopamidol	µg/L	<10-1120 0.6-64	Weissbrodt vd., 2009 Gönder vd., 2021
Iopromide	µg/L	<5-1390 37-3000	Weissbrodt vd., 2009 Gönder vd., 2021

4. Hastane Atıksularının Arıtma Yöntemleri (Treatment Methods of Hospital Wastewater)

Günümüzdeki koşullar dikkate alındığında, hastane atıksuları konvansiyonel atıksu arıtma tesislerinde evsel atıksularla birlikte kısmen arıtmakta hatta bazı ilaç kalıntıları arıtılmadan sistemi terketmektedir. Hastane atıksularının yönetiminde uygulanan 4 farklı senaryo bulunmaktadır. Hastane atıksularının arıtımı için bu senaryoların geliştirilmesi gerekmektedir (Pauwels ve Verstraete, 2006). Bu atıksuların yönetiminde uygulanan senaryolar;

- 1- Herhangi bir arıtma prosedürü olmaksızın alıcı ortama direkt deşarj,
- 2- Evsel atıksu arıtma tesislerinde birlikte arıtım,
- 3- Kaynağında arıtma ve sonrasında çıkış suyunun alıcı ortama deşarjı,
- 4- İlk olarak yerinde ve sonra merkezi evsel atıksu arıtma tesisinde arıtmadır.

İlk senaryoda hastane atıksularının arıtılmaksızın direkt deşarjı sebebiyle kirleticiler yüzeysel sulara, içme sularına ulaşabilmekte ve tehlike oluşturabilmektedir. İkinci senaryoda, hastane atıksuları seyrelmekte ve çevreye direkt deşarj edilmemeleri sebebiyle tehlikenin daha az olduğu görülmektedir. Üçüncü senaryoda ise, çevresel yarar ve yüksek verimlilik sağlanabilmekte fakat sıkı izleme ve proses kontrolü gerektirmektedir. Dördüncü senaryo ise; tehlikesi en az olan arıtım yöntemidir (Pauwels ve Verstraete, 2006). Genel olarak hastane atıksularının, seyrelmeye neden olmaması adına kentsel atıksular ile birlikte arıtılmaları önerilmektedir. İçeriğindeki organik kirliliği gidermek için de biyolojik arıtımın kullanılması gerekmektedir. Hastane atıksuyunda bulunan mikrokirleticilerin çoğunun biyolojik olarak giderimi yetersiz olup; membran teknolojileri, adsorpsiyon, ileri oksidasyon gibi ileri arıtım teknolojilerine ihtiyaç duyulmaktadır (Pauwels ve Verstraete, 2006; Escher vd., 2011). Türkiye'deki mevcut durumda, çok çeşitli kirleticileri içeren hastane atıksularının evsel atıksulardan ayrı arıtılmasına ve hastane atıksularındaki kirletici konsantrasyonları ile ilgili sınır değerlerine dair yasal bir mevzuat bulunmamaktadır. Mikrokirleticilerin atıksu arıtma tesislerinde (AAT); birincil, ikincil ve üçüncül arıtmaları gerçekleşmektedir. AAT'lerde birincil arıtmada katı maddelerin giderilerek, prosesteki mekanik teçhizatın tıkanmaya karşı korunması temel amaçtır. Stasinakis vd. (2013) tarafından yapılan bir çalışmada, ön çökeltme tankında Nonilfenol monoeksholat ve Bisfenol A'nın giderim verimlerinin sırasıyla %13 ve %43 olduğu görülmektedir. Ayrıca birincil arıtımın sülfametoksazol, naproksen, ibuprofen ve estron mikrokirleticilerin giderimi üzerinde önemli bir etkisinin olmadığı belirtilmektedir (Luo vd., 2014; Akkurt vd., 2019).

İkincil arıtmada; biyolojik bozunma, çamurda tutunma, fiziksel ve kimyasal arıtım basamakları yer almaktadır (Akkurt vd., 2019). Klasik aktif çamur prosesi kullanılarak yapılan bir çalışmada, atenolol, sülfametoksazol, asetaminofen, 17β-estradiol, naproksen, ibuprofen ve kafein'in giderim verimlerinin sırasıyla %35, %62, %72, %51, %85, %88 ve %98 olduğu tespit edilmektedir (Choi vd., 2022). Birincil arıtmayla giderilemeyen sülfametoksazol, naproksen ve ibuprofen gibi bileşenlerin ikincil arıtmada giderilebildiği görülürken; estron hormonunun birincil ve ikincil arıtma proseslerinden etkilenmediği görülmektedir (Choi vd., 2022).

Üçüncül arıtım prosesleri, birincil ve ikincil arıtım yöntemlerine göre daha maliyetli olmakla birlikte yüksek kalitede çıkış suyu elde edebilmek amacıyla kullanılmaktadır (Luo vd., 2014). Mikrokirleticilerin gideriminde membran filtrasyonu ve biyolojik arıtmaya kıyasla aktif karbon kullanımının çok daha başarılı olduğu

belirtilmektedir (Türkyılmaz vd., 2020). MBR'ye 8 mg/L'lik toz aktif karbon ilavesiyle (TAK) diklofenak, karbamazepin ve propranolol giderimlerinin %91'in üzerinde olduğu vurgulanmaktadır (Akkurt vd., 2019). Ayrıca, MBR'ye TAK ilavesiyle sistemde büyük flokların oluştuğu, membran kirlenmesinin azaldığı ve filtrasyon performansının arttığı belirtilmektedir (Meng vd., 2007). Finlandiya'da yapılan bir çalışmada, antiepileptik olan karbamazepin'in klasik arıtma tesisinde arıtılmadığı, beta bloker türlerinden metoprolol, atenolol ve sotalol gibi bileşiklerin arıtımının yetersiz olduğu, ofloksazin gibi antibiyotik türlerinin ise, %80 verimle arıtıldığı ifade edilmektedir. Ayrıca üçüncül arıtım proseslerinden olan biyolojik filtrasyon ünitesinin de bu ilaç türlerini arıtamadığı vurgulanmaktadır (Eren vd., 2018).

5. Hastane Atıksularındaki Bazı Mikrokirleticilerin Klasik Aktif Çamur (AÇ) Tesislerinde Varlığı ve Giderim Verimleri (Presence and Removal Efficiencies of Some Micropollutants in Conventional Activated Sludge (CAS) Plants)

AÇ tesisleri, özellikle karmaşık kimyasal yapı ve/veya güçlü elektron çeken fonksiyonel gruplar içeren mikrokirleticilerin etkili bir şekilde uzaklaştırılması için özel olarak tasarlanmadığından (Asif vd., 2019; Hai vd., 2019); atıksu arıtma tesislerindeki farklı mikrokirleticiler arasında farklı giderim verimleriyle karşılaşmaktadır. Bu durumun, mikrokirletici özelliklerinden ve işletme koşullarından kaynaklandığı belirtilmektedir. Atıksu arıtımı sırasında mikrokirleticiler, çamura sorpsiyon, buharlaşma veya fizikokimyasal/biyolojik dönüşüm yoluyla düşük miktarlarda elimine edilebilmektedirler (Grandclément vd., 2017; Alvarino vd., 2018). Genel olarak, en yüksek konsantrasyonlara sahip bileşikler arasında (ortalama değer 10 µg/L) kafein, anti-inflamuar grubunda olan ibuprofen, β-bloker grubunda yer alan atenolol ve endokrin bozucu kimyasallar arasında olan nonilfenol bulunmaktadır. İspanyadaki bir atıksu arıtma tesisinde yapılan bir araştırmaya göre en fazla bulunan mikrokirleticinin 3.73 - 603 µg/L arasında değişen konsantrasyon seviyeleri ile ibuprofen olduğu görülmüştür (Santos vd., 2009). Çin'deki üç atıksu arıtma tesisinde bulunabilen ve miktarı ortalama 50 µg/L'ye ulaşan seviyelerde kafein tespit edilmiştir. Özellikle, atıksu arıtma tesislerindeki yüksek konsantrasyonların, yüksek tüketim sonucunda oluştuğunu ve diğer ilaçlara nazaran kolay erişilebilir olduğunu göstermektedir (Zhou vd., 2010). Steroit hormonlarına bakıldığında ve diğer mikrokirleticilerle karşılaştırıldığında atıksu arıtma tesislerinde daha düşük konsantrasyonlarda bulunduğu (çoğunlukla 1 µg/L'den az) görülmektedir. Tablo 2'de bazı mikrokirleticilerin AÇ prosesiyle giderim verimleri özetlenmiştir.

Atıksu arıtma tesislerinde en çok karşılaşılan mikrokirleticilerin nonsteroidal antiinflamatuvar ilaç (NSAEİ)'lar olduğu belirtilmektedir. Yapılan bir çalışmaya göre; kodein, naproksen ve ketoprofenin sırasıyla; % 18.8, % 93 ve %35'lik ortalama giderim verimliliğinin olduğu; tramadol'un ise, gideriminin olmadığı görülmektedir. Atıksu arıtma tesislerinde en kalıcı ilaç aktif madde olarak görülen, psikiyatrik ilaçlardan karbamazepinin giderilemediği tespit edilmiştir (Leiviskä vd., 2022).

Steroid hormonları için, giderim verimlerinin %44-95 arasında değiştiği görülmektedir. Ayrıca, lipit düzenleyicilerin giderim verimlerinin %50-98 arasında olduğu; β bloker ise etkin şekilde giderilemediği görülmektedir (Leiviskä vd., 2022). Pestisitlerin giderim verimleriyle ilgili az sayıda çalışma olmasına rağmen; tarımsal kaynaklı pestisitlerin atıksu arıtma tesislerinde yeterli ölçüde giderilebildiği belirtilmektedir (Köck-Schulmeyer vd., 2013).

Tablo 2. Mikrokirleticilerin klasik aktif çamur prosesinde giderim verimleri
(Removal efficiency of micropollutants in the conventional activated sludge process) (Leiviskä vd., 2022)

Kategori	Mikrokirletici	Ortalama Giriş Konsantrasyonu (ng/L)	Giderim Verimi (%)
Analjezik ve Anti-İnflamatuar	Kodein	1702	18.8
	Tramadol	528	g.y.
	Naproksen	6150	93
	Ketoprofen	484	35
Lipit düzenleyici	Benzafibrat	56	50
	Simvastatin	1218	97.9
Antibiyotik	Sülfametaksozol	117	54.7
	Trimethoprim	728	38.7
	Sülfadiazin	697	66.4
β bloker	Atenolol	200	12.5
	Metoprolol	749	g.y.
	Bisoprolol	693	<5
Antikonvülzan	Karbamazepin	221	g.y.
	Gabapentin	26275	83
	Levetirasetam	8467	95
	Pirimidon	5.8	g.y.
Hormon	Testosteron	25	44
	Progesteron	28	95
	Estron	37	87.3
	17β-estradiol	19	71.5

*g.y. : giderim yoktur.

6. Hastane Atıksularının MBR'de Arıtımı (Treatment of Hospital Wastewater in MBR)

MBR'lerin, AÇ prosesine göre çok daha avantajlı olmaları ve mikrokirleticileri arıtılabilmeleri sebebiyle MBR sistemleri incelenmiştir. MBR'lerin, yüksek çamur yaşı (SRT) ile yüksek askıda katı madde (AKM) konsantrasyonunda işletilebilmesi sayesinde dayanıklı mikrokirleticilerin bozunabilmeleri üzerinde önemli etkisi olduğu belirtilmektedir (Asif vd., 2020). MBR'ler; partiküller, karbonlu maddeler, besinler ve patojenik mikroorganizmalar gibi çeşitli kirletici maddelerin arıtımı amacıyla tasarlanmıştır (Mir-Tutusaus vd., 2018). MBR teknolojisi, membran filtrasyonu ile doğrudan katı-sıvı ayrımı sayesinde AÇ ve biyodegradasyonu birleştirmektedir. MBR'lerin, klasik atıksu arıtma tesisine kıyasla bazı mikrokirleticilerin gideriminin daha yüksek olması (Abtahi vd., 2018), daha az yer gereksinimi, yüksek kalitede çıkış suyu, daha az atık çamur üretimi, yüksek hacimsel yüklemelerde işletim gibi çeşitli avantajları bulunmaktadır. Bu nedenle, MBR'ler birçok gelişmiş ve gelişmekte olan ülkede suyun yeniden kullanımı için anahtar teknoloji olarak kabul edilmektedir (Hai vd., 2014). Asif vd. (2019) tarafından yapılan kapsamlı bir literatür araştırmasına göre, geniş bir mikrokirletici spektrumunun MBR ile gideriminin ortalama %70'e kadar olduğu, AÇ prosesleri için ise, giderim verimlerinin %60'a kadar olduğu belirtilmektedir.

Atıksu arıtımında MBR'de mikrokirleticilerin gideriminde temel olarak meydana gelen prosesler, biyodegradasyon, çamura sorpsiyon ve buharlaşma olarak tanımlanmıştır. MBR'de hastane atıksularının gideriminde biyodegradasyon ve sorpsiyon temel mekanizma olarak tanımlanmaktadır (Gao vd., 2012; Guerra vd., 2014; Trinh vd., 2016). MBR'nin uzun çamur yaşlarıyla işletilebilmesi sayesinde yüksek konsantrasyonda tutulan biyokütle tarafından gerçekleştirilen biodegradasyon, birinci giderim mekanizması olarak ifade edilmektedir. İkinci giderim mekanizması olarak ise, MBR prosesinde tutulan biyokütlenin yüzey alanının büyük, flok boyutunun küçük olması nedeniyle çamura sorpsiyon olarak tanımlanmakta ve sorpsiyonun maksimum seviyede gerçekleştiği belirtilmektedir (Fernandez-Fontaina vd., 2013). Çeşitli mikrokirletici türlerine bakıldığında, sucul ortamda 10-5 µg/L'den daha düşük konsantrasyonlarda bulunabilen kişisel bakım ürünlerinin buharlaşma vasıtasıyla giderimlerinin olmadığı görülmüştür (Ternes vd., 2004a,b; Stevens-Garmon vd., 2011). Mikrokirletici türlerinden olan endokrin bozucu bileşenlerin (Bisphenol A, Estrone, 17β-Estradiol, Estriol, Octylphenol) her birinin konsantrasyonu 1-5 µg/L aralığında olduğu ve MBR ile giderim verimlerinin %92-%99 arasında değiştiği görülmektedir (Gruchlik vd., 2018).

Salisilik asit ve propilparaben gibi kişisel bakım ürünlerinin MBR sistemlerinde tümüyle giderilebildiği belirtilmektedir. MBR'ler kullanılarak triklosan, atenolol ve β blokerlar için giderim verimlerinin sırasıyla %99,

%97 ve %70–80 oranında değiştiği görülmektedir (Vyrides, 2010).

Bazı antibiyotiklerin (ofloksasin, sülfametaksazol ve eritromisin) ve analjeziklerin (lorazepam, sitalopram, ibuprofen, karbamazepin ve primidon) %75 ve %95 aralığında değişebilen giderim verimiyle artırıldığı belirtilmektedir (Besha vd., 2017). Genel olarak, MBR’lerde farklı mikrokirleticilerin giderim verimliliği; endokrin bozucu bileşikler > beta blokerleri > pestisitler şeklinde sıralanmaktadır (Gruchlik vd., 2018). Makrolit ve sülfonamid gibi birkaç antibiyotiklerin giderim verimine bakıldığında %15-42 oranında değişen verimlerde olduğu ve giderim veriminin AÇ’ye kıyasla daha yüksek olduğu belirtilmektedir (Sahar vd., 2011). Bazı ilaç kalıntılarında kaynaklanan mikrokirleticilerin MBR ve AÇ’deki giderim verimleri, linkomisin MBR’de %62, AÇ’de %42; azitromisin MBR’de %91, AÇ’de %78; sulfametazin MBR’de %88, AÇ’de %80; tetrasilin MBR’de %92, AÇ’de %67; oksitetrasilin MBR’de %93, AÇ’de %80; trimetoprin MBR’de %69, AÇ’de %33 ve triklokarbon ise MBR’de %80 AÇ’de %70 olarak bulunmuştur (Tran vd., 2016). Kişisel bakım ürünlerine bakıldığında giderim verimlerinde MBR ve AÇ prosesleri arasında önemli bir farklılığın olmadığı belirtilmektedir (Radjenovic vd., 2009).

Tablo 3’te hastane atıksularının MBR ile arıtımı üzerine yapılmış çalışmalar detaylı olarak özetlenmektedir. SRT’nin ve hidrolik bekletme süresinin (HRT) artmasıyla ketaprofen, noproksen, roksitromisin, sülfametoksazol, trimetoprim gibi mikrokirleticilerin giderim verimlerinde artış olduğu görülmektedir (Tambosi vd., 2010). Kaya vd. (2013) tarafından ilaç aktif madde içeren atıksularla ve dört farklı tipte mikrofiltrasyon membranı (MP005, CA, MCE, MV02) kullanılarak yapılan bir çalışmada, 3 farklı SRT’de işletilen MBR’de non-steroid antiinflatuar olan etodolak ve KOİ giderimleri incelenmiştir. 15 gün, 30 gün ve sonsuz çamur yaşlarında KOİ giderimlerinin yüksek olduğu (>%82) ve üç farklı SRT’de giderim verimlerinde büyük farklılık olmadığı görülmektedir. SRT’nin artışıyla, her dört farklı tipteki membranda da etodolak gideriminin arttığı görülmektedir. Yılmaz vd. (2018) TÜBİTAK projesinde 3 farklı SRT’de toz aktif karbon ilaveli ve ilavesiz olmak üzere 2 MBR sistemi hastane atıksuyu ile işletilmiş ve mikrokirletici giderimi izlenmiştir. Mikrokirleticilerin giderimi için optimum SRT 30 gün olarak belirlenmiştir. Toz aktif karbon ilavesinin ilavesinin ölçülen hemen hemen tüm mikrokirleticilerin gideriminde etkili olduğu görülmüştür. İki farklı SRT’de işletilen bir başka MBR çalışmasında, SRT’nin 21 günden 60 gün’e çıkarılması makrokirleticilerin giderim verimlerinde büyük bir değişiklik görülmezken, metoprolol giderimlerinde SRT’nin artışıyla giderim veriminde de artış olduğu görülmektedir. Atenolol-Bisoprolol giderimlerinin ise SRT’den bağımsız olduğu görülmektedir (Gurung vd., 2019). Sentetik atıksu ve gerçek hastane atıksuyunun belirli oranlarda karıştırılmasıyla yapılan bir çalışmada, hastane atıksuyu oranının artmasıyla karbamazepin giderim veriminin azaldığı görülmektedir. Hastane atıksuyu biyokütle konsantrasyonundaki düşüşün, giderim veriminin azalması üzerinde etkili olduğu belirtilmiştir (Tiwari vd., 2021).

Tablo 3. Hastane Atıksularının MBR ile arıtımı üzerine yapılmış çalışmalar
(Studies on treatment of hospital wastewater with MBR)

Reaktör Tipi	Atıksu Türü	İşletme Süresi	SRT (gün)	HRT (saat)	Giderim Verimi (%)	Kaynak		
Aerobik MBR	Hastane Atıksuyu	4 hafta	15	9	Asetaminofen: 100 Ketaprofen: 98 Noproksen: 86 Roksitromisin: 57 Sülfametoksazol: 55 Trimetoprim: 86	Tambosi vd., 2010		
Aerobik MBR	Hastane Atıksuyu	4 hafta	30	13	Asetaminofen: 100 Ketaprofen: 100 Noproksen: 89 Roksitromisin: 81 Sülfametoksazol: 64 Trimetoprim: 94	Tambosi vd., 2010		
MBR	İlaç aktif madde içeren atıksu	-	15-30-∞	24	SRT:15 gün	SRT: 30 gün	SRT: ∞ gün	Kaya vd., 2013
					KOİ: 85,3, Etodolak: 31.7 (MP005 Tipi MFM)	KOİ: 84, Etodolak: 46 (MP005 Tipi MFM)	KOİ: 87,3, Etodolak: 65 (MP005 Tipi MFM)	
					KOİ: 86,6, Etodolak: 27 (CA Tipi MFM)	KOİ: 82,6, Etodolak: 44,7 (CA Tipi MFM)	KOİ: 86,6, Etodolak: 81 (CA Tipi MFM)	
					KOİ: 85,3, Etodolak: 25,8 (MCE Tipi MFM)	KOİ: 84,6, Etodolak: 43,5 (MCE Tipi MFM)	KOİ: 86,6, Etodolak: 81,1 (MCE Tipi MFM)	
KOİ: 85,3, Etodolak: 31,7 (MV02 Tipi MFM)	KOİ: 86, Etodolak: 46 (MV02 Tipi MFM)	KOİ: 87,3, Etodolak: 66,8 (MV02 Tipi MFM)						

MBR	İlaç aktif madde içeren atıksu	145 gün	Sonsuz	2.7-9	OLR: 1kgKOİ m ⁻³ .gün ⁻¹ (TAK'sız)	OLR: 1kgKOİ m ⁻³ .gün ⁻¹ (OLR:TAK = 0.5)	OLR: 1.5kgKOİ m ⁻³ .gün ⁻¹ (OLR:TAK = 0.75)	OLR: 2kgKOİ m ⁻³ .gün ⁻¹ (OLR:TAK = 1)	Kaya vd., 2016
					KOİ: 81-91, Etodolak:73	KOİ: 85-98, Etodolak:99	KOİ: 89-95, Etodolak:95	KOİ:90-97, Etodolak:97	
MBR	Hastane Atıksuyu	76 gün	27	3	KOİ: 66-72 Sülfametoksazol: 78.5, İbuprofen: 100				Prasertkulsak vd., 2016
Aerobik MBR	Yarı Sentetik Hastane Atıksuyu KOİ: 1750 mg/L, TN: 125 mg/L , TP: 25 mg/L	153 gün	20	36	KOİ: 98 TN: 94 Siklofosfamid: 97				Seira vd.,2016
MBR	Mikrokirletici İçeren Endüstriyel Atıksu	180 gün	40	24	KOİ: 92 PAH (metilnaftalin, fluoren, benzoapiren): <50				Özcan, 2017
Aerobik MBR (FS MBR)	Hastane Atıksuyu KOİ: 155-405 mg/L NH ₄ -N: 3-11,2 mg/L TKN: 11,4-32,5 mg/L TP: 1-3 mg/L	-	20	-	Norfloksasin: 93-99 Ofloksasin: 73-93 Siprofloksasin: 76-93 Tetrasiklin: 100 Trimetoprim: 60-97 Eritromisin: 67-78				Nguyen vd., 2017
MBR	Hastane Atıksuyu KOİ:700-1100 mg/L NH ₃ : 150-160 mg/L P: 16-19 mg/L	63 gün	25	4-8	KOİ: 73.6 NH ₃ : 84.9 P: 58				Alsahya vd., 2018
sMBR/ eMBR*	Hastane Atıksuyu- Onkoloji Birimi Atıksuyu	160/180 gün	-	1-2	KOİ: >90 NH ₄ : 100 Kodein: ort.72, Siklofosfamid: ort.60, İfosfamid: ort.49, Sülfametoksazol: ort.75				Hamon vd., 2018
MBR+Elektro kimyasal ileri oksidasyon (EO)	Sentetik Hastane Atıksuyu KOİ: 2000 mg/L	140 gün	140	18	Karbamazepin: <5 Venlafaksin: >10 İbuprofen: >97 Estradiol: >97				Ouarda vd., 2018
MBR MBR+toz aktif karbon	Hastane atıksuyu KOİ:180-920 mg/L NH ₄ -N: 21-58 mg/L TP: 3.8-10 mg/L	750 gün	10-30-60	-	MBR - SRT 10 gün: Giderim verimi >%99: hormonlar. Giderim verimi >%70: Atenolol, Atorvastatin, Cilastatin, Clarithromycin, Cortisone, Cyclophosphamide, Enalapril, İbuprofen, Mefenamic acid, Metformin, Metronidazole, 4N-Acetyl-Sulfadiazine, 4N-Acetyl-Sulfamethoxazole, Naproxen, Paracetamol, Ranitidine, Rosuvastatin, Roxithromycin, Simvastatin, Sulfamethoxazole, Sulfapyridine, Sotalol ve Trimethoprim				Yılmaz vd., 2018
MBR	Organik mikrokirletici (antibiyotik, β-bloker, analjezik, antiepileptik, antikoagülant) ve steroid hormonu içeren belediye atıksuyu	4 hafta	21 - 60	42.13	SRT: 21 gün	SRT: 60 gün			Gurung vd., 2019
					KOİ: 93.03 NH ₄ : >99.96 TP: 87.40 Atenolol-Bisoprolol: 92-97 Metoprolol: 50-60 Diklofenak: 45	KOİ: 92.43 NH ₄ : >99.96 TP: 88.12 Atenolol-Bisoprolol: 92-97 Metoprolol: 82-84 Diklofenak: 38			
MBR	Hastane Atıksuyu	45 gün	-	24	Dahili MBR	Uzun Havalandırmalı MBR			Morabet vd., 2020
					KOİ: 72 BOİs: 78	KOİ: 85 BOİs: 91			
MBR	Sentetik ve Gerçek Hastane Atıksuyu (SHA ve GHA) KOİ: 200-350 mgO ₂ /L NH ₄ : 24.48 mgN/L	40 gün	100	18	Faz:1 (SHA:GHA) (75:25) h/h	Faz:2 (SHA:GHA) (50:50) h/h	Faz:3 (SHA:GHA) (25:75) h/h		Tiwari vd., 2021
					KOİ: 90.9; N-NH ₄ : 88.9 P-PO ₄ : 20.2 Sülfametaksazol: 86.2 Venlafaksin: 55.2 İbuprofen: >99 Karbamazepin: 45.4	KOİ: 80.9; N-NH ₄ : 86.4 P-PO ₄ : 19.2 Sülfametaksazol: 54 Venlafaksin: 34 İbuprofen: 99.9 Karbamazepin: 28.4	KOİ: 73.9; N-NH ₄ : 77.1 P-PO ₄ : 17.8 Sülfametaksazol: 64 Venlafaksin: 10 İbuprofen: 97 Karbamazepin: 10.4		
MBR	Mikrokirletici içeren kentsel atıksu	55 gün	200	21	KOİ: >91; Sülfametaksazol: >68.3; Trimetoprim: >61.1; Siprofloksazin: >71.4; Kafein: >99.6; Asetaminofen: >99.7				Isik vd., 2022

*sMBR: batık MBR, eMBR: harici MBR, PAH: Polisiklik aromatik hidrokarbonlar, OLR: Organik Yükleme Hızı, MFM: Mikrofiltrasyon membranı, ∞:Sonsuz

7. MBR İşletme Parametrelerinin Hastane Atıksularındaki Mikrokirletici Giderimine Etkileri (The Effects of Operation Parameters on the Removal of Micropollutants)

MBR'de işletme parametrelerinin farklı oluşu sebebiyle mikrokirleticilerin giderim verimleri de farklılık göstermektedir. Hastane atıksuyundaki ilaç aktif maddelerin fizikokimyasal özellikleri ve MBR'nin işletme parametreleri (sorpsiyon, çamur yaşı, hidrolik bekletme süresi, pH ve sıcaklık) mikroorganizmaların metabolik aktivitesini etkilemekte, dolayısıyla mikrokirletici giderim verimini ve MBR'deki çıkış suyu kalitesini değiştirmektedir. Çeşitli literatür çalışmalarında mikro kirletici giderimlerinin farklı işletme parametreleriyle bağlantılı olarak MBR verimliliği üzerindeki etkisi araştırılmıştır.

7.1. Çamur Yaşı (Sludge Retention Time)

SRT, MBR verimini etkileyen en önemli işletme parametrelerinden birisidir. SRT'nin viskozite, biyokütle konsantrasyonu, mikrobiyal topluluğun bileşimi, flok boyutu ve viskozite gibi çamur özelliklerini etkileyebildiği vurgulanmaktadır (Hocaoğlu vd., 2011; Nadeem vd., 2022). Çok yüksek SRT'lerde, AKM konsantrasyonundaki artışa bağlı olarak çözünürlüğü yüksek ve partiküllü maddeler birikebilmekte ve vizkozitede meydana gelen artışla membranların geri yıkamasında daha yüksek hava akımına ihtiyaç duyulduğu belirtilmektedir (Krzeminski vd., 2012). Bazı ilaç aktif maddelerin, SRT'nin artışıyla daha yüksek giderim verimiyle artırıldığı belirtilmektedir (Kruglova vd., 2016, Goswami vd., 2018). Phan vd. (2016) tarafından yapılan bir çalışmada, MBR'lerin yüksek SRT'de işletilebilmeleri sayesinde yavaş gelişen nitrifikasyon bakterileri gelişebilmekte ve giderilemeyen bazı mikrokirleticilerin de giderimi sağlanabilmekteyken; ibuprofen, diklofenak, naproksen, ketoprofen ve karbamazepinin gideriminin SRT'den bağımsız olduğu vurgulanmaktadır (Li vd., 2015). Yılmaz vd. (2018) TÜBİTAK projesinde SRT değeri 10 günden 30 güne çıkarıldığında, mikrokirletici giderim verimlerinin önemli ölçüde iyileştiği; ancak SRT'nin 60 güne çıkarılmasıyla bazı ilaç aktif madde giderim verimlerinin bozulduğu görülmüştür. Bu nedenle mikrokirleticilerin giderimi için optimum SRT 30 gün olarak belirlenmiştir. Gurung vd. (2019) tarafından yapılan bir çalışmada, SRT 21 gün ve 60 gün olarak işletilen bir MBR'de her iki SRT değerinde parasetamol, ibuprofen, ketoprofen, naproksen, tetrasiklin, siprofloksasin ve trimetoprim giderim verimlerinin %90'ın üzerinde olduğu belirtilmekteyken; SRT'nin 21 günden (%50-60) 60 güne (%82-84) çıkarılmasıyla, metoprolol ve propranolol giderim verimlerinin arttığı belirtilmektedir. Bununla birlikte MBR'de mikrokirleticilerin çoğunun giderilebilmesi için, çamur yaşlarının 20 gün ve 30 gün aralığında tutulmasının yeterli olduğu belirtilmektedir.

MBR sistemlerinde yeterli SRT değerlerine ulaşıldığında mikrokirletici giderimlerinin yüksek olduğu ifade edilmektedir (Liu vd., 2022). Prasertkulsak vd. (2019) tarafından yapılan bir çalışmada, SRT'nin 15 günden 30 güne çıkarılmasıyla diklofenak, trimetoprim, naproksen, ibuprofen ve triklosanın gideriminin %43.33'ten %80.75'e çıktığı vurgulanmaktadır. Sülfametoksazolün gideriminin araştırıldığı bir diğer çalışmada, SRT'den bağımsız olarak yaklaşık %80 oranında giderim veriminin olduğu bildirilmektedir (Gobel vd., 2007). Antiepileptik bir ilaç olan karbamazepinin SRT'den bağımsız olarak giderilemediği, karbamazepinin ana metabolitinin 10,11 epoksi-karbamazepin olduğu ve glukuronid olarak vücuttan dışarı atıldığı belirtilmektedir. Glukuronid bileşiğinin biyolojik proseslerde parçalanmasının ardından, atıksu giriş konsantrasyonlarında artış olabildiği görülmektedir (Ternes, 1998). Karbamazepinin MBR'de parçalanabilirliğinin zayıf olmasına bağlı olarak giderilemediği ve inatçı bir bileşik olduğu birçok çalışmada vurgulanmaktadır (Clara vd., 2005b; Radjenovic vd., 2007; Wijekoon vd., 2013). İki farklı SRT'de işletilen bir MBR'de karbamazepinin biyotransformasyona karşı yüksek direnç gösterdiği ve bu nedenle atıksuda yüksek oranda tespit edildiği belirtilmektedir (Gurung vd., 2019). Klofibrik asit gideriminin araştırıldığı bir çalışmada, SRT'nin 15 günden 65 güne çıkarılmasıyla giderim veriminin %50'den %82'ye yükseldiği belirtilmektedir (Kimura vd., 2007).

7.2. pH Etkisi (Effect of pH)

İyonize olabilen mikrokirleticileri içeren bir MBR sistemi için pH, giderim veriminde önemli bir rol oynamaktadır. Biyolojik arıtma için genellikle pH değerlerinin 6-7 arasında olması gerektiği belirtilmektedir (Tadkaew vd., 2010). İbuprofen ve ketoprofen gibi bileşiklerin MBR'lerde giderim verimlerine bakıldığında asidik koşullar altında bu bileşiklerin giderim verimlerinde önemli bir artış olduğu belirtilmektedir (Urase vd., 2005). İbuprofen, diklofenak ve ketoprofen gibi bileşikler oldukça hidrofobiktir ve bu nedenle AÇ'ye oldukça kolay bir şekilde adsorbe olabilmektedir. Hidrofobik bileşenlerin MBR'larda yüksek giderim verimleriyle artırılabilmesinin, biyolojik olarak parçalanabilirliklerine ve çamura adsorbe olabilmeye kapasitelerine bağlı olduğu belirtilmiştir. Statik abiyotik çamurda adsorpsiyon testleri sonuçlarına bakıldığında; pH 5'e doğru düştüğünde adsorpsiyon kapasitelerinde artış olduğu belirtilmektedir. Biyolojik sistemlerde pH 5'in üzerinde sülfametoksazolün giderim verimlerinde ciddi düşüşlerin olduğu görülmektedir (Urase vd., 2005; Tadkaew vd., 2010; Taheran vd., 2016).

7.3. Sıcaklığın Etkisi (Effect of Temperature)

Düşük sıcaklık değeri atıksu arıtma tesislerinde bazı mikrokirleticilerin giderimini olumsuz yönde etkilemektedir. MBR'deki sıcaklık 15°C'nin altına düştüğünde, karbamazepinin gideriminin %10'dan %0'a indiği belirtilmektedir (Li vd., 2011). Mikroorganizma gelişimi ve aktivitesinin sıcaklık değişiminden etkilendiği, ancak MBR kullanılarak ibuprofen, asetaminofen, bezafibrat ve naproksen gibi mikrokirleticilerin çoğunun gideriminin oda sıcaklığında gerçekleşebildiği tespit edilmiştir (Chon vd., 2011).

18–23°C arasındaki sıcaklıkların; sülfametoksazol, eritromisin, atenolol, ibuprofen gibi antibiyotiklerin gideriminde etkili olduğu belirtilmektedir (Suarez vd., 2012; Kim vd., 2014). MBR ve AÇ prosesinde mikrokirleticilerin giderimi genellikle ortam sıcaklığında sağlanabilmekteyken, karbamazepin ve diklofenak gibi mikrokirleticilerde ise arıtılabilirliğin ortam sıcaklığından bağımsız olduğu belirtilmektedir (Radjenovic vd., 2007; Chon vd., 2011). Tiwari vd. (2021a) tarafından yapılan bir çalışmada, hastane atıksularından sülfametoksazol, klaritromisin, diklofenak, hidroksi diklofenak ve venlafaksin'in MBR ile giderimi esnasında sıcaklığın 10°C'den 20°C'ye çıkarılmasıyla giderim veriminin %10-50 aralığından %40-90 aralığına yükseldiği ifade edilmektedir. Giderim verimindeki artışın çamur konsantrasyonunun artması ve mikroorganizmaların artan sıcaklıkla birlikte metabolik aktivitelerinin artması olduğu düşünülmektedir. Hai vd. (2011b) tarafından yapılan benzer bir çalışmada, hidrofobik özellik gösteren mikrokirleticilerin kararlı bir şekilde giderildiği; ketoprofen, fenoprop ve pentaklorofenol gibi hidrofilik bazı bileşiklerin giderim verimlerinin sıcaklık artışıyla (10°C'den 35 °C 'ye) arttığı vurgulanmaktadır. Mikrokirleticilerin giderimi esnasında, MBR'de sıcaklık değerlerinin 45°C'ye yükselmesiyle metabolik aktivite engellenmekte ve arıtım gerçekleşmemektedir. Aynı zamanda yüksek sıcaklık değerlerinde, çamurun parçalanmasıyla mikrokirleticilerin adsorpsiyonunun engellendiği de vurgulanmaktadır (Hai vd., 2011b).

7.4. Redoks Şartlarının Etkisi (Effect of Redox)

MBR farklı redoks koşullarında işletildiğinde, yüksek mikrobiyal aktivitenin sağlandığı belirtilmektedir. Aerobik koşullar altında naproksen, 17 α -etinilestradiol ve ibuprofen gibi bazı mikrokirleticilerin önemli miktarda biyolojik olarak bozunduğu belirtilirken; galaksolit ve tonalit gibi bazı bileşiklerin de hem aerobik hem de anoksik koşullar altında bozunduğu belirtilmektedir (Suarez vd., 2012). MBR'deki anoksik koşulların mikrokirleticilerin giderimi için yeterli olduğu vurgulanmaktadır (Stasinakis vd., 2009). Gemfibrozil, diklofenak, bezafibrat ve ketoprofen, gibi mikrokirleticilerin anoksik şartlarda kısmen giderilebildiği belirtilmektedir. Alvarino vd. (2014) tarafından yapılan bir çalışmada, sülfametoksazol ve trimetoprim'in sülfonil grubu gibi elektron çeken grupların varlığı nedeniyle anaerobik koşullar altında yüksek oranda giderilmekteyken, aerobik koşullar altında biyolojik bozunmanın sınırlı olduğu ifade edilmektedir.

7.5. Hidrolik Bekletme Süresi (Hydraulic Retention Time)

Hidrolik bekletme süresi (HRT), atıksuda bulunan biyokütle ve kirleticiler arasındaki ortalama reaksiyon süresi olarak tanımlanmaktadır. HRT, atıksudaki organik yüklemeye hızı ve besin/mikroorganizma oranını etkilemektedir. Sülfametoksazol ve ibuprofen gibi birçok mikro kirleticinin azalan hidrolik bekletme süresi ile biyolojik bozunabilirliğinde düşüş gözlenmektedir (Zhao vd., 2015). MBR'de HRT'nin düşüşüyle organik bileşenlerin de giderim veriminin azaldığı belirtilmektedir (Ng vd., 2014). Ayrıca HRT'nin düşüşüyle akının ve membran tıkanmasının arttığı vurgulanmaktadır (Nadeem vd., 2022). HRT'nin asetaminofen, bezafibrat, ofloksasin, gemfibrozil ve metronidazol gibi bileşiklerin gideriminde etkisinin olmadığı belirtilmektedir (Hemmati vd., 2012). Prasertkulsak vd. (2019) tarafından yapılan bir çalışmada, HRT'nin 3 saat olduğu bir MBR'de 17 β -estradiol ve triklosan bileşiklerinin uzaklaştırılmasının adsorpsiyon mekanizması ile gerçekleştiği ve giderim veriminin %80'den fazla olduğu vurgulanmaktadır.

Alvarino vd. (2014) tarafından yapılan bir çalışmada ise 17 β -estradiol'ün 24 saatlik HRT'de aerobik koşullar altında, yüksek oranda biyolojik olarak parçalanabilir olduğunu belirtilmektedir. Mikrokirleticilerin gideriminde yavaş gelişen mikroorganizmaların biyolojik degradasyonu gerçekleştirebilmeleri için 3 saatlik HRT'nin yeterli olduğu ve bu sürede mikroorganizmaların iyi gelişebildiği belirtilmektedir (Prasertkulsak vd., 2019). Boonorat vd. (2016) tarafından yapılan bir çalışmada, fenollerin ve ftalatların biyolojik olarak parçalanmasından sorumlu bakterilerin büyümesi için optimum HRT'nin 12 saat olduğu vurgulanırken; MBR'lerde karbamazepin ve diklofenak'ın biyodegradasyonunun sağlanması için daha uzun HRT'lere ihtiyaç duyulduğu belirtilmektedir. Anaerobik MBR kullanılarak Chen vd. (2019) tarafından yapılan bir çalışmada, belediye atıksuyunda mikrokirletici giderimi incelenmiş ve HRT'nin 4.5 saatten 7.5 saate yükseltilmesiyle, naproksen gideriminin %63.8'den %72.1'e ulaştığı belirtilmektedir. Bununla birlikte, MBR'nin yüksek verimlilikte çalışabilmesi için SRT ve HRT parametrelerinin, 10-80 gün ve 4-48 saat aralığında olması gerektiğini ifade edilmektedir (Smith vd., 2012; Pathak vd., 2020).

7.6. Sorpsiyonun Etkisi (Effect of Sorption)

Kirleticilerin sorpsiyonunun değerlendirilmesinde adsorpsiyon (pozitif yüklü mikrokirletici gruplarının, negatif yüklü mikroorganizmaların yüzeyi ile elektrostatik etkileşimi) ve absorpsiyon (mikroorganizmaların lipofilik hücre zarı ve çamurun lipit fraksiyonları ile kirleticilerin hidrofobik etkileşimi) olmak üzere iki temel faktörün olduğu bilinmektedir (Cirja vd., 2008; Sipma vd., 2010). MBR'de sorpsiyon, mikrokirleticilerin birikmesiyle ilave ikincil tabakanın oluşumuna bağlı olarak gerçekleşmektedir (Liv vd., 2011). MBR'de sorpsiyonun gerçekleşebilmesinde kirleticilerin türlerinin de önemli bir faktör olduğu belirtilmektedir. Hidrofobik (apolar) kirleticilerin gideriminde, AÇ üzerinde öncelikle biyosorpsiyon, ardından biyodegradasyon gerçekleşmektedir. Hidrofilik (polar) kirleticilerin gideriminde ise; öncelikli prosesin biyolojik bozunma olduğu ve sorpsiyonun sınırlı olduğu görülmektedir (Bo vd., 2009). Prasertkulsak vd. (2019) tarafından yapılan bir çalışmada, sülfametoksazol, trimetoprim, karbamazepin, tramadol, naproksen, propanolol, 17 β -estradiol ve triklosan giderimlerinin esas olarak adsorpsiyonla gerçekleştiği; diklofenak, ibuprofen ve gemfibrozil giderimlerinin ise esas olarak biyolojik bozunma yoluyla gerçekleştiği vurgulanmaktadır.

HRT'nin 3 saatten az olduğu çalışmalarda hidrofobik bileşenlerin çoğunun çamura ya da kolloidal partiküller üzerine adsorpsiyon yoluyla uzaklaştırıldığı ifade edilmektedir. Orta derecede hidrofobik bir bileşik olan karbamazepin'in kolloidal partiküller üzerine adsorbe olduğu belirtilmektedir (Alvarino vd., 2014). Diklofenak, naproksen, ibuprofen ve gemfibrozil gibi negatif yüklü bileşiklerin sülfametoksazol ve trimetoprim gibi nötr bileşiklerden daha iyi uzaklaştırıldığı, ancak bu bileşiklerin gideriminden sorumlu ana mekanizmanın farklı olabileceği vurgulanmaktadır (Stevens-Garmon vd., 2011; Prasertkulsak vd., 2019). Diklofenakın adsorpsiyon yoluyla kısmen uzaklaştırıldığı (%25.8), büyük çoğunluğunun biyolojik bozunma yoluyla (%49) giderildiği belirtilmektedir (Stevens-Garmon vd., 2011). Gemfibrozil giderimi üzerine yapılan bir çalışmada, adsorpsiyon (%29) ve biyodegradasyon (%34) mekanizmaları ile bu bileşenin toplam %63 giderim verimiyle uzaklaştırıldığı görülmektedir. Aynı çalışmada naproksenin %28 adsorpsiyon ve %15 biyodegradasyon olmak üzere %43 giderim verimiyle giderildiği görülmektedir (Prasertkulsak vd., 2019). Grenni vd. (2013) tarafından yapılan bir çalışmada gemfibrozilin naproksene göre daha kalıcı olduğunu bildirilirken; Stumpf vd. (1999) tarafından yapılan bir çalışmada da, gemfibrozilin doğal sularla ve kanalizasyon sularında parçalanmadığı belirtilmektedir.

8. Sonuç ve Tartışma (Result and Discussion)

Mikrokirleticiler nehirler, göller ve yeraltı suyu gibi önemli içme suyu kaynaklarında tespit edilmiştir. Birçok mikro kirleticinin birincil kaynağının hastaneler ve atıksu arıtma tesisleri olduğu kabul edilmektedir. Klasik atıksu arıtma tesislerinde birçok mikrokirleticinin yeterince giderilememesi ve kullanılabilir su kaynaklarının azalması sebebiyle, mikrokirleticilerin giderimine yönelik araştırmaların sayısı gün geçtikçe artmaktadır. MBR'lar; klasik atıksu arıtma tesislerinde giderilemeyen mikrokirleticilerin giderilmesi açısından umut verici bir teknoloji olarak görülmektedir. Klasik atıksu arıtma tesislerinde kirletici giderimlerinin tasarım parametrelerine bağlı olmasına benzer olarak, MBR'lerin işletme şartları ya da optimize edilen parametreleri atıksu ortamındaki kirleticilerin yüksek verimle uzaklaştırılmasını ve membran kirlenmesinin kontrolünü sağlamaktadır. Bu nedenle MBR'de optimum performansın sağlanabilmesi için mikrokirletici giderimlerinde SRT ve HRT gibi işletme koşullarının detaylı olarak ortaya konması gerekmektedir.

Bu çalışmada, hastane atıksularının AÇ ve MBR'lerde arıtılabilirlikleri değerlendirilmiş ve MBR'deki işletme parametrelerinin (sorpsiyon, pH, sıcaklık, SRT, HRT) giderim verimine etkisi incelenmiştir. Artan SRT'nin yavaş gelişen mikroorganizmaların gelişimine olanak sağladığı ve diklofenak gibi bileşiklerin giderimlerinin arttığı görülmektedir. Mikrokirletici giderim mekanizmalarının, bileşiğin kimyasal özelliklerine bağlı olarak adsorpsiyon ve/veya biyodegradasyon yoluyla gerçekleşebildiği görülmektedir. SRT'nin artışıyla AKM konsantrasyonlarının arttığı, buna bağlı olarak adsorpsiyonla giderimin artabileceği düşünülmektedir. Artan AKM konsantrasyonlarıyla geri yıkamada zorluklar oluşarak membran kirlenmesinin hızlanacağı görülmektedir. Ayrıca kullanılan membranların da giderim verimi ve kirliliğin kontrolü üzerinde ciddi etkileri olduğu bilinmektedir. Mikrofiltrasyon ve ultrafiltrasyon gibi gözenekli membranların yerine ileri osmoz gibi düşük kirlenme eğilimine sahip olan membranların tercih edilebileceği düşünülmektedir. Kullanılan farklı membran materyallerinin de KOİ gideriminde ciddi farklılıklar oluşturmadığı, mikrokirletici gideriminde ise etodolak gibi bazı bileşiklerin gideriminde SRT ile birlikte farklılıklar oluşturabileceği görülmektedir.

Hastane atıksularının arıtımında ikincil arıtma proseslerinden AÇ ve MBR kıyaslandığında, MBR'nin mikrokirleticilerin gideriminde ortalama %70'e varan giderim verimi sağladığı belirtilmiştir. MBR ile giderilemeyen bazı mikrokirleticilerin giderilebilmesi için farklı stratejiler/kombinasyonlar kullanılmaktadır. Bu amaçla, farklı ileri arıtma teknikleriyle MBR'ye toz aktif karbon (TAK) ilavesi ya da MBR/UV, MBR/ileri oksidasyon, MBR/adsorpsiyon uygulamaları sayesinde daha etkin giderim sağlanabilmektedir. MBR'ye eklenen TAK ilavesiyle kirlenmenin azalabileceği de görülmektedir.

Ayrıca mikrokirleticilerin çevre üzerinde ne gibi olumsuzluklar oluşturduğu henüz bilinmemektedir. Mikrokirleticilerin çevre üzerinde sebep olduğu zararların daha net anlaşılabilmesi için kapsamlı çalışmalara ihtiyaç duyulmaktadır.

Teşekkür (Acknowledgement)

Bu çalışma, 114Y192 numaralı TÜBİTAK (1001) projesi ile desteklenmiştir.

Bu çalışma, İstanbul Üniversitesi-Cerrahpaşa Bilimsel Araştırma Projeleri (BAP) Koordinasyon Birimi tarafından FDK-2019-34246 nolu proje kapsamında desteklenmiştir.

Çıkar Çatışması (Conflict of Interest)

Yazarlar tarafından herhangi bir çıkar çatışması beyan edilmemiştir. No conflict of interest was declared by the authors.

Kaynaklar (References)

- Abtahi, S.M., Petermann, M., Flambard, A.J., Beaufort, S., Terrisse, F., Trotouin, T., Cassan, C.J., Albasi, C., 2018. Micropollutants removal in tertiary moving bed biofilm reactors (MBBRs): contribution of the biofilm and suspended biomass. *Science of the Total Environment*, 643, 1464-1480.
- Aemig Q., Helias, A., Patureau, D., 2020. Impact assessment of a large panel of organic and inorganic micropollutants released by wastewater treatment plants at the scale of France. *Water Research*, 188, 116524.
- Aherne, G.W., English, J., Marks, V., 1985. The role of immuno assay in the analysis of micro contaminants in water samples. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 9, 79-83.
- Akkurt, Ş., Oğuz, M., 2019. Atıksu Arıtma Tesislerinde Mikro Kirleticilerin Arıtılabilirliği. *Kahramanmaraş Sutcu Imam University Journal of Engineering Sciences*, 22(2), 58-77.
- Almeida, Á., Calisto, V., Esteves, V., Soares, A.M.V.M., Figueira, E., Freitas, R., 2014. Presence of carbamazepine in coastal systems: effects on bivalves. *Aquatic Toxicology*, 156, 74-87.
- Alsahya, Q.F., Al-Anib, F. H., Al-Najarb, A. E., 2018. A new Sponge-GAC-Sponge membrane module for submerged membrane bioreactor use in hospital wastewater treatment. *Biochemical Engineering Journal*, 133, 130-139
- Alvarez-Muñoz, D., Huerta, B., Fernandez-Tejedor, M., Rodríguez-Mozaza, S., Barceló, D., 2015. Multi-residue method for the analysis of pharmaceuticals and some of their metabolites in bivalves. *Talanta*. 136, 174-182.
- Alvarino, T., Suarez, S., Lema, J.M., Omil, F., 2014. Understanding the removal mechanisms of PPCPs and the influence of main technological parameters in anaerobic UASB and aerobic CAS reactors. *Journal of Hazardous Materials*. 278, 506-513.
- Alvarino, T., Suarez, S., Lema, J., Omil, F., 2018. Understanding the sorption and biotransformation of organic micropollutants in innovative biological wastewater treatment technologies. *Science of the Total Environment*, 615, 297-306.
- Asif, M. B., Ansari, A.J., Chen, S.-S., Nghiem, L.D., Price, W.E., Hai, F.I., 2019. Understanding the mechanisms of trace organic contaminant removal by high retention membrane bioreactors: a critical review. *Environmental Science and Pollution Research*, 26, 34085-34100.
- Asif, M.B., Ren, B., Li, C., Maqbool, T., Zhang, X., Zhang, Z., 2020. Powdered activated carbon-Membrane bioreactor (PAC-MBR): Impacts of high PAC concentration on micropollutant removal and microbial communities. *Science of the Total Environment*, 745, 141090.
- Aydin, S., Aydin, M.E., Ulvi, A., Kilic, H., 2019. Antibiotics in hospital effluents: occurrence, contribution to urban wastewater, removal in a wastewater treatment plant, and environmental risk assessment. *Environmental Science and Pollution Research*, 26, 544-558.
- Bebiano, M.J., Gonzalez-Rey, M., 2015. *Ecotoxicological Risk of Personal Care Products and Pharmaceuticals in Claude Amiard-Triquet, Jean-Claude Amiard and Catherine Mouneyrac, Aquatic Ecotoxicology, Advancing Tools for Dealing with Emerging Risks*, vol. 16. Academic Press Ch, pp. 383-416.
- Benedetti, M., Ciaprini, F., Piva, F., Onorati, F., Fattorini, D., Notti, A., Ausili, A., Regoli, F., 2012. A multidisciplinary weight of evidence approach toward polluted sediments: integrating sediment chemistry, bioavailability, biomarkers responses and bioassays. *Environment International*, 38, 17-28.
- Berendonk, T.U., Manaia, C.M., Merlin, C., Fatta-Kassinos, D., Cytryn, E., Walsh, F., Bürgmann, H., Sørum, H., Norström, M., Pons, M.-N., 2015. Tackling antibiotic resistance: the environmental framework. *Nature Reviews Microbiology*, 13 (5), 310.
- Besha, A. T., Gebreyohannes, A.Y., Tufa, R. A., Bekele, D.N., Curcio, E., Giorno, L., 2017. Removal of Emerging Micropollutants by Activated Sludge Process and Membrane Bioreactors and the Effects of Micropollutants on Membrane Fouling: A Review. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 5(3), 2395-2414
- Bo, L., Urase, T., Wang, X. 2009. Biodegradation of trace pharmaceutical substances in wastewater by a membrane bioreactor. *Frontiers of Environmental Science & Engineering*, 3, 236-240.
- Boonnorat, J., Chiemchaisri, C., Chiemchaisri, W., Yamamoto, K., 2014. Microbial adaptation to biodegrade toxic organic micropollutants in membrane bioreactor using different sludge sources. *Bioresour Technology*, 165, 50-59.
- Chen, W., Wong, Y., Huang, T., Chen, W., Lin, J., 2019. Removals of pharmaceuticals in municipal wastewater using a staged anaerobic fluidized membrane bioreactor. *International Biodeterioration & Biodegradation*, 140, 29-36.
- Chitescu, C.L., Kaklamanos, G., Nicolau, A.I., Stolker, A.A., 2015. High sensitive multiresidue analysis of pharmaceuticals and antifungals in surface water using U-HPLC-QEactive Orbitrap HRMS. Application to the Danube river basin on the Romanian territory. *Science of the Total Environment*, 532, 501-511.
- Choi, S., Yoom, H., Son, H., Seo, C., Kim, K., Lee, Y., Kim, Y. M., 2022. Removal efficiency of organic micropollutants in successive

- wastewater treatment steps in a full-scale wastewater treatment plant: Bench-scale application of tertiary treatment processes to improve removal of organic micropollutants persisting after secondary treatment. *Chemosphere*, 288, 132629.
- Chon, K., Sarp, S., Lee, S., Lee, J. H., Lopez-Ramirez, J.A. Cho, J., 2011. Evaluation of a membrane bioreactor and nanofiltration for municipal wastewater reclamation: Trace contaminant control and fouling mitigation. *Desalination*, 272, 128-134.
- Cirja, M., Ivashechkin, P., Schäffer, A., Corvini, P. F. 2008. Factors affecting the removal of organic micropollutants from wastewater in conventional treatment plants (CTP) and membrane bioreactors (MBR), *Reviews in Environmental Science and Bio/Technology*, 7,61-78.
- Clara, M., Kreuzinger, N., Strenn, B., Gans, O., Kroiss, H., 2005. The solids retention time a suitable design parameter to evaluate the capacity of wastewater treatment plants to remove micropollutants. *Water Resource*, 39, 97-106.
- Comber, S., Gardner, M., Sörme, P., Leverett, D., Ellor, B., 2018. Active pharmaceutical ingredients entering the aquatic environment from wastewater treatment works: a cause for concern. *Science of the Total Environment*, 613-614, 538-547.
- CPMP/SWP/4447/00 Guideline on the Environmental Risk Assessment of Medicinal Products for Human Use, 2006. European medicines agency.
- Cruz-Morató, C., Lucas, D., Llorca, M., Rodriguez-Mozaz, S., Gorga, M., Petrovic, M., Barceló, D., Vicent, T., Sarrà, M., Marco-Urrea, E., 2014. Hospital wastewater treatment by fungal bioreactor: removal efficiency for pharmaceuticals and endocrine disruptor compounds. *Science of the Total Environment*, 15, 365-376.
- Directive 2001/83/EC of the European Parliament and of the Council of 6 November 2001 On the Community code relating to medicinal products for human use.
- Directive 2008/105/EC of the European Parliament and of the Council of 16 December 2008 On environmental quality standards in the field of water policy, amending and subsequently repealing Council Directives 82/176/EEC, 83/513/EEC, 84/156/EEC, 84/491/EEC, 86/280/EEC and amending Directive 2000/60/EC of the European.
- Ebele, A.J., Abou-Elwafa Abdallah, M., Harrad, S., 2017. Pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in the freshwater aquatic environment. *Emerging Contaminants*, 3, 1-16.
- Eren, Z., 2018. Su Kaynaklarındaki İlaç Kalıntılarının İleri Oksidasyon Yöntemleri ile Arıtılabilirliğinin İncelenmesi. *Academic Platform Journal of Engineering and Science*, 6-3, 153-163.
- Escher, B.I., Baumgartner, R., Koller, M., Treyer, K., Lienert, J., Mc Ardell, C.S., 2011. Environmental toxicology and risk assessment of pharmaceuticals from hospital wastewater, *Water Research*, 45, 75-92.
- Fent, K., Weston, A.A., Caminada, D., 2006. Ecotoxicology of human pharmaceuticals. *Aquatic Toxicology*, 76, 122-159.
- Fernandez-Fontaina, E., Pinho, I., Carballa, M., Omil, F., Lema, J.M., 2013. Biodegradation kinetic constants and sorption coefficients of micropollutants in membrane bioreactors. *Biodegradation* 24, 165-177.
- Fong, P.P., Ford, A.T., 2014. The biological effects of antidepressants on the molluscs and crustaceans: a review. *Aquatic Toxicology*, 151, 4-13.
- Gao, P., Ding, Y., Li, H., Xagorarakis, I., 2012. Occurrence of pharmaceuticals in a municipal wastewater treatment plant mass balance and removal processes. *Chemosphere*, 88, 17-24.
- Gobel, A., Mc Ardell, C.S., Joss, A., Siegrist, H., Giger, W., 2007. Fate of sulfonamides, macrolides, and trimethoprim in different wastewater treatment technologies. *Science of the Total Environment*, 372 (2-3), 361-371.
- Gönder, B. Z., Kara, M. E., Celik, O. B., Vergili, I., Kaya, Y., Altinkum, S. M., Bagdatli, Y., Yilmaz, G., 2021. Detailed characterization, antibiotic resistance and seasonal variation of hospital wastewater. *Environmental Science and Pollution Research* 28, 16380-16393.
- Grandclément, C., Seyssiecq, I., Piram, A., Wong-Wah-Chung, P., Vanot, G., Tiliacos, N., Roche, N., Doumenq, P., 2017. From the conventional biological wastewater treatment to hybrid processes, the evaluation of organic micropollutant removal: A review. *Water Resources*, 111, 297-317.
- Gros, M., Rodríguez-Mozaz, S., Barceló, D., 2012. Fast and comprehensive multi-residue analysis of a broad range of human and veterinary pharmaceuticals and some of their metabolites in surface and treated waters by ultra-high-performance liquid chromatography coupled to quadrupole-linear ion trap tandem mass spectrometry. *Journal of Chromatography A*, 1248, 104-121.
- Gruchlik, Y., Linge, K., Joll, C., 2018. Removal of organic micropollutants in waste stabilisation ponds: A review. *Journal of Environmental Management*. 206, 202-214.
- Guerra, P., Kim, M., Shah, A., Alaei, M., Smyth, S. A., 2014. Occurrence and fate of antibiotic, analgesic/anti-inflammatory and antifungal compounds in five wastewater treatment processes. *Science of the Total Environment*, 473-474, 235-243.
- Guruge, K.S., Goswami, P., Tanoue, R., Nomiyama, K., Wijesekara, R.G.S., Dharmaratne, T.S., 2019. First nationwide investigation and environmental risk assessment of 72 pharmaceuticals and personal care products from Sri Lankasurface waterways. *Science of the Total Environment*, 690, 683-695.
- Gurung, K., Ncibi, M. C., Sillanpää, M., 2019. Removal and fate of emerging organic micropollutants (EOMs) in municipal wastewater by a pilot-scale membrane bioreactor (MBR) treatment under varying solid retention times. *Science of the Total Environment*, 667, 671-680.
- Gwenzi, W., Mangori, L., Danha, C., Chaukura, N., Dunjana, N., Sanganyado, E., 2018. Sources, behaviour, and environmental and human health risks of high-technology rare earth elements as emerging contaminants. *Science of the Total Environment*, 636, 299-313.
- Hai, F. I., Yamamoto, K., Lee, C. H., 2014. *Membrane biological reactors*. IWA Publishing, UK. ISBN 9781780400655.
- Hai, F.I., Li, X., Price, W.E., Nghiem, L.D., 2011a. Removal of carbamazepine and sulfamethoxazole by MBR under anoxic and aerobic conditions. *Bioresource Technology*, 102 (22), 10386-10390.
- Hai, F.I., Nghiem, L.D., Khan, S.J., Asif, M.B., Price, W.E., Yamamoto, K., 2019. Removal of emerging trace organic contaminants (TrOC) by MBR. In: Hai, F.I., Yamamoto, K., Lee, C. (Eds.), *Membrane Biological Reactors: Theory, Modeling, Design, Management and Applications to Wastewater Reuse*. IWA publishing, London, United Kingdom, pp. 413-468.
- Hamon, P., Moulina, P., Ercoleib, L., Marrota, B., 2018. Oncological ward wastewater treatment by membrane bioreactor: Acclimation feasibility and pharmaceuticals removal performances. *Journal of Water Process Engineering*. 21, 9-26.
- Hemmati, A., Dolatabad, M.M., Naeimpoor, F., Pak, A., Mohammadi, T., 2012. Effect of hydraulic retention time and temperature

- on submerged membrane bioreactor (SMBR) performance. *Korean Journal of Chemical Engineering*, 29, 369–376.
- Hignite, C., Azarnoff, D.L., 1977. Drugs and drugs metabolites as environmental contaminants: chlorophenoxyisobutyrate and salicylic acid in sewage water effluent. *Life Sciences*, 20, 337–341.
- Hocaoglu, S. M., Insel, G., Ubay Cokgor, E., Orhon, D., 2011. Effect of sludge age on simultaneous nitrification and denitrification in membrane bioreactor. *Bioresour Technol*, 102, 6665–6672.
- Hocaoglu, S. M., Celebi, M.D., Basturk, I., Partal, R., 2021. Treatment-based hospital wastewater characterization and fractionation of pollutants, *Journal of Water Process Engineering*, 43, 102205.
- Isik, O., Erbil, M. C., Abdelrahman, A. M., Ersahin, M. E., Koyuncu, I., Ozgun, H., Demir, I., 2022. Removal of micropollutants from municipal wastewater by membrane bioreactors: Conventional membrane versus dynamic membrane. *Journal of Environmental Management* 303, 114233.
- Janex-Habibi, M. L., Huyard, A., Esperanza, M., Bruchet, A., 2009. Reduction of endocrine disruptor emissions in the environment: the benefit of wastewater treatment. *Water Research*, 43, 1565–76.
- Karakas, I., 2022. Hastane Atıksularının Toz Aktif Karbon İlavesiyle Membran Biyoreaktörde Arıtımı. Yayınlanmamış Doktora Tezi. İstanbul Üniversitesi-Cerrahpaşa, İstanbul.
- Kasonga, T. K., Coetzee, A. A. M., Kamika, I., Ngole-Jeme, M. V., Ndombo, M., Momba, B. 2021. Endocrine-disruptive chemicals as contaminants of emerging concern in wastewater and surface water: A review. *Journal of Environmental Management*, 277, 111485.
- Kaya, Y., Ersan, G., Vergili, I., Gönder, B. Z., Yılmaz, G., Dizge, N., Aydiner, C., 2013. The treatment of pharmaceutical wastewater using in a submerged membrane bioreactor under different sludge retention times. *Journal of Membrane Science*, 442, 72–82.
- Kaya, Y., Bacaksiz, M.A., Golebatmaz, U., Vergili, I., Gonder, Z. B., Yılmaz, G., 2016. Improving the performance of an aerobic membrane bioreactor (MBR) treating pharmaceutical wastewater with powdered activated carbon (PAC) addition. *Bioprocess and Biosystems Engineering*, 39, 661–676.
- Kim, M., Guerra, P., Shah, A., Parsa, M., Alae, M., Smyth, S.A., 2014. Removal of pharmaceuticals and personal care products in a membrane bioreactor wastewater treatment plant. *Water Science and Technology*, 69, 2221–2229.
- Klatte, S., Schaefer, H.-Ch, Hempel, M., 2017. Pharmaceuticals in the environment: a short review on options to minimize the exposure of humans, animals and ecosystems. *Sustainable Chemistry and Pharmacy*, 5, 61–66.
- Kolpin, D.W., Skopec, M., Meyer, M.T., Furlong, E.T., Zaugg, S.D. 2004. Urban contribution of pharmaceuticals and other organic wastewater contaminants to streams during differing flow conditions. *Science of the Total Environment*, 328, 119–30.
- Köck-Schulmeyer, M., Villagrasa, M., Lopez de Alda, M., Cespedez-Sanchez, R., Ventura, F., Barcelo, D. 2013. Occurrence and behavior of pesticides in wastewater treatment plants and their environmental impact. *Science of the Total Environment*, 458, 466–76.
- Kruglova, A., Kråkström, M., Riska, M., Mikola, A., Rantanen, P., Vahala R., Kronberg, L., 2016. Comparative study of emerging micropollutants removal by aerobic activated sludge of large laboratory-scale membrane bioreactors and sequencing batch reactors under low-temperature conditions. *Bioresour Technol*, 214, 81–88.
- Krzeminski, P., Iglesias-Obelleiro, A., Madebo, G., Garrido, J.M., van der Graaf, J.H.J.M., van Lier, J.B., 2012. Impact of temperature on raw wastewater composition and activated sludge filterability in full-scale MBR systems for municipal sewage treatment. *Journal of Membrane Science*, 423(424), 348–361.
- Leiviskä, T., Risteelä, S., 2022. Analysis of pharmaceuticals, hormones and bacterial communities in a municipal wastewater treatment plant – Comparison of parallel full-scale membrane bioreactor and activated sludge systems. *Environmental Pollution* 292, 118433.
- Li, X., Hai, F. I., Nghiem, L. D., 2011. Simultaneous activated carbon adsorption within a membrane bioreactor for an enhanced micropollutant removal. *Bioresour Technol*, 102(9), 5319–5324.
- Li, W.C., 2014. Occurrence, sources, and fate of pharmaceuticals in aquatic environment and soil. *Environ. Pollut.* 187, 193–201.
- Li, C., Cabassud, C., Guigui, C., 2015. Evaluation of membrane bioreactor on removal of pharmaceutical micropollutants: a review. *Desalination and Water Treatment*, 55, 845–858.
- Lin, A.Y.-C., Tsai, Y.-T., 2009. Occurrence of pharmaceuticals in Taiwan's surface waters: impact of waste streams from hospitals and pharmaceutical production facilities. *Sci Total Environ* 407, 3793–3802
- Liu, J., Lu, G., Xie, Z., Zhang, Z., Li, S., Yan, Z., 2015. Occurrence, bioaccumulation and risk assessment of lipophilic pharmaceutically active compounds in the downstream rivers of sewage treatment plants. *Science of the Total Environment*, 511, 54–62.
- Liu, W., Song, X., Na, Z., Li, G., Luo, W., 2022. Strategies to enhance micropollutant removal from wastewater by membrane bioreactors: Recent advances and future perspectives. *Bioresour Technol*, 344, 126322.
- Luo, Y., Guo, W., Ngo, H. H., Nghiem, L. D., Hai, F. I., Zhang, J., Wang, X. C., 2014. A review on the occurrence of micropollutants in the aquatic environment and their fate and removal during wastewater treatment. *Science of the Total Environment*, 473–474, 619–641.
- Meng, F., Shi, B., Yang, F., Zhang, H., 2007. Effect of hydraulic retention time on membrane fouling and biomass characteristics in submerged membrane bioreactors. *Bioprocess Biosyst Engineering*, 30, 359–367.
- Mezzelani, M., Gorbi, S., Da Ros, Z., Fattorini, D., d'Errico, G., Milan, M., Bargelloni, L., Regoli, F., 2016a. Ecotoxicological potential of Non-Steroidal Anti-Inflammatory Drugs (NSAIDs) in marine organisms: bioavailability, biomarkers and natural occurrence in *Mytilus galloprovincialis*. *Marine Environmental Research*, 121, 31–39.
- Mezzelani, M., Gorbi, S., Fattorini, D., d'Errico, G., Benedetti, M., Milan, M., Bargelloni, L., Regoli, F., 2016b. Transcriptional and cellular effects of non-Steroidal Anti-inflammatory drugs (NSAIDs) in experimentally exposed mussels, *Mytilus galloprovincialis*. *Aquatic Toxicology*, 180, 306–313.
- Mezzelani, M., Gorbi, S., Fattorini, D., d'Errico, G., Consolandi, G., Milan, M., Bargelloni, L., Regoli, F., 2018. Long-term exposure of *Mytilus galloprovincialis* to Diclofenac, Ibuprofen and Ketoprofen: insights into bioavailability, biomarkers and transcriptomic changes. *Chemosphere*, 198, 238–248.
- Mir-Tutusaus, J.A., Parlade, E., Llorca, M., Villagrasa, M., Barcelo, D., Rodriguez-Mozaz, S., Martinez-Alonso, M., Gaju, N., Caminal,

- G., Sarra, M., 2017. Pharmaceuticals removal and microbial community assessment in a continuous fungal treatment of non-sterile real hospital wastewater after a coagulation-flocculation pretreatment. *Water Research*, 116, 65-75.
- Mir-Tutusaus, J.A., Baccar, R., Caminal, G., Sarrà, M., 2018. Can white-rot fungi be a real wastewater treatment alternative for organic micropollutants removal A review. *Water Research*, 138, 137-151.
- Morabet, R. E., Khan, R. A., Mallick, J., Khan, N. A., Ahmed, S., Dhingra, A., Khan, A. R., Alsubih, M., Alqadhi, S., Bindajam, A., 2020. Comparative study of submerged membrane bioreactor and extended aeration process coupled with tubessettler for hospital wastewater treatment. *Alexandria Engineering Journal*, 59, 4633-4641.
- Morehead, M. S., Scarbrough, C. 2018. Emergence of global antibiotic resistance. *Primary Care: Clinics in Office Practice*, 45, 467-484.
- Nadeema, K., Alliet, M., Plana, Q., Bernier, J., Azimi, S., Rocher, V., Albasi, C., 2022. Modeling, simulation and control of biological and chemical P-removal processes for membrane bioreactors (MBRs) from lab to full-scale applications: State of the art. *Science of the Total Environment*, 809, 151109.
- Nguyen, T., Bui, X. T., Luu, V. P., Nguyen, P. D., Wenshan Guo, W., Ngo, H. H., 2017. Removal of antibiotics in sponge membrane bioreactors treating hospital wastewater: Comparison between hollow fiber and flat sheet membrane systems. 240, 42-49.
- Noutsopoulos, C., Koumaki, E., Sarantopoulos, V., Mamais, D., 2019. Analytical and mathematical assessment of emerging pollutants fate in a river system. *Journal of Hazardous Materials*, 364, 48-58.
- Ouarda, Y., Tiwari, B., Azais, A., Vaudreuil, M. A., Ndiaye, S. D., Drogui, P., Tyagi, R. D., Sauve, S., Desrosiers, M., Buelna, G., Dube, R., 2018. Synthetic hospital wastewater treatment by coupling submerged membrane bioreactor and electrochemical advanced oxidation process: Kinetic study and toxicity assessment. *Chemosphere*, 193, 160-169.
- Ouarda, Y., Bouchardb, F., Azaisa, A., Vaudreuilc, M. A., Drogua, P., Tyagia, R. D., Sauvéc, S., Buelnad, G., Dubéd, R., 2019. Electrochemical treatment of real hospital wastewaters and monitoring of pharmaceutical residues by using surrogate models. *Journal of Environmental Chemical Engineering* 7, 103332.
- Özcan, Ö., Kayseri Organize Sanayi Bölgesi Atıksularında Mikrokirleticilerin Pilot Ölçekli Membran Biyoreaktör ve Ters Ozmoz Sistemleri ile Arıtılabilirliğinin İncelenmesi, 2017, Yüksek Lisans Tezi, Erciyes Üniversitesi.
- Padhye, L.P., Yao, H., Kung'u, F.T., Huang, C.H., 2014. Year-long evaluation on the occurrence and fate of pharmaceuticals, personal care products, and endocrine disrupting chemicals in an urban drinking water treatment plant. *Water Resource*, 51, 266-276.
- Pal, A., Gin, A.Y.-C., Reinhard, M., 2010. Impacts of emerging organic contaminants on freshwater resources: review of recent occurrences, sources, fate and effects. *Science of the Total Environment*, 408, 6062-606.
- Pathak, N., Tran, V.H., Merenda, A., Johir, M.A.H., Phuntsho, S., Shon, H., 2020. Removal of organic micro-pollutants by conventional membrane bioreactors and high-retention membrane bioreactors. *Applied Sciences*. 10 (8), 2969.
- Phan, H. V., Hai, F. I., Zhang, R., Kang, J., Price, W. E., Nghiema, L. D., 2016. Bacterial community dynamics in an anoxic-aerobic membrane bioreactor – Impact on nutrient and trace organic contaminant removal. *International Biodeterioration & Biodegradation*. 109, 61-72.
- Parliament and of the Council. Directive 2013/39/EU of the European Parliament and of the Council of 12 August 2013 Amending Directives 2000/60/EC and 2008/105/EC as regards priority substances in the field of water policy Text with EEA relevance.
- Pauwels, B., Verstraete, W., 2006. The treatment of hospital wastewater: an appraisal. *Journal of Water and Health*, 4(4), 405-476.
- Peake, B. M., Braund, R., Tong, Y.C.A., Tremblay, L. A., 2016. Detection and presence of pharmaceuticals in the environment. *The Life-Cycle of Pharmaceuticals in the Environment*. 77-107.
- Prasertkulsak, S. Chiemchaisri, C., Chiemchaisri, W., Itonaga, T., Yamamoto, K., 2019. Removals of pharmaceutical compounds from hospital wastewater in membrane bioreactor operated under short hydraulic retention time. *Chemosphere*, 150, 624-631.
- Radjenovic, J., Petrovic, M., Barcelo, D., 2007. Analysis of pharmaceuticals in wastewater and removal using a membrane bioreactor. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 387, 1365-1377.
- Radjenovic, J., Petrovic, M., Barcelo, D., 2009. Fate and distribution of pharmaceuticals in wastewater and sewage sludge of the conventional activated sludge (CAS) and advanced membrane bioreactor (MBR) treatment. *Water Resource*, 43, 831-841.
- QuintilesIMS and its affiliates, 2015. *Global Medicines Use in 2020. Outlook and Implications*, pp. 9-21.
- Richardson, M.L., Bowron, J.M., 1985. The fate of pharmaceutical chemicals in the aquatic environment. *Journal of Pharmacy and Pharmacology*, 37, 1-12.
- Sabri, N., Schmitt, H., Van der Zaan, B., Gerritsen, H., Zuidema, T., Rijnaarts, H., Langenhoff, A., 2018. Prevalence of antibiotics and antibiotic resistance genes in a wastewater effluent-receiving river in the Netherlands. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 8(1), 102245.
- Sahar, E., Messaleem, R., Cikurel, H., Aharoni, A., Brenner, A., Godehardt, M., Jekel, M., Ernst, M., 2011. Fate of antibiotics in activated sludge followed by ultrafiltration (CAS-UF) and in a membrane bioreactor (MBR). *Water Research*, 45, 4827-4836.
- Santos, J.L., Aparicio, I., Callejon, M., Alonso, E., 2009. Occurrence of pharmaceutically active compounds during 1-year period in wastewaters from four wastewater treatment plants in Seville (Spain). *Journal of Hazardous Materials*, 164, 1509-1516.
- Santos, L.H.M.L.M., Araújo, A.N., Fachini, A., Pena, A., Delerue-Matos, C., Montenegro, M.C.B.S.M., 2010. Ecotoxicological aspects related to the presence of pharmaceuticals in the aquatic environment. *Journal of Hazardous Materials*, 175, 45-95.
- Sangion, A., Gramatica, P., 2016. PBT assessment and prioritization of contaminants of emerging concern: pharmaceuticals. *Environmental Research*, 147, 297-306.
- Seiraa, J., Sablayrolles, C., Montréjaud-Vignoles, M., Albasi, C., Joannis-Cassan, C., 2016. Elimination of an anticancer drug (cyclophosphamide) by a membrane bioreactor: Comprehensive study of mechanisms, 114, 155-163.
- Sipma, J., Osuna, B., Collado, N., Monclús, H., Ferrero, G., Comas, J., Rodriguez-Roda, I., 2010. Comparison of removal of pharmaceuticals in MBR and activated sludge systems, *Desalination*, 250, 653-659.
- Sharma, V.K., Johnson, N., Cizmas, L., McDonald, T.J., Kim, H., 2016. A review of the influence of treatment strategies on antibiotic resistant bacteria and antibiotic resistance genes. *Chemosphere* 150, 702-714.

- Smith, A.L., Stadler, L.B., Love, N.G., Skerlos, S.J., Raskin, L., 2012. Perspectives on anaerobic membrane bioreactor treatment of domestic wastewater: a critical review. *Bioresource Technology*, 122, 149–159.
- Stevens-Garmon, J., Drewes, J.E., Khan, S.J., MacDonald, J.A., 2011. Sorption of emerging trace organic compounds onto wastewater sludge solids. *Water Resource*, 45, 3417–3426.
- Stasinakis A. S, Gatidou G, Mamais D, Thomaidis N. S, Lekkas T. D., 2008. Occurrence and fate of endocrine disrupters in Greek sewage treatment plants. *Water Resource*, 42, 1796–804
- Stasinakis, A. S., Thomaidis, N. S., Arvaniti, O. S., Asimakopoulos, A. G., Samaras, V. G., Ajibola, A., Lekkas, T. D., 2013. Contribution of primary and secondary treatment on the removal of benzothiazoles, benzotriazoles, endocrine disruptors, pharmaceuticals and perfluorinated compounds in a sewage treatment plant. *Science of the Total Environment*, 463(464), 1067–1075.
- Stevens-Garmon, J., Dreves, J. E., Khan, S. J., Mc-Donald, J. A., Dickenson, E. R. V., 2011. Sorption of emerging trace organic compounds onto wastewater sludge solids. *Water Resource*, 45, 3417–3426.
- Stülten, D., Zühlke, S., Lamshöft, M., Spittler, M., 2008. Occurrence of diclofenac and selected metabolites in sewage effluents. *Science of the Total Environment*, 310–316.
- Suárez, S., Reif, R., Lema, J. M., Omil, F., 2012. Mass balance of pharmaceutical and personal care products in a pilot-scale single-sludge system: Influence of T, SRT and recirculation ratio. *Chemosphere*, 89(2), 164–171.
- Tadkaew, N., Sivakumara, M., Khan, S. J., McDonald, J. A., DucNghiem, L., 2010. Effect of mixed liquor pH on the removal of trace organic contaminants in a membrane bioreactor. *Bioresource Technology*, 101, 1494–1500.
- Taheran, M., Brar, S. K., Verma, M., Surampalli, R. Y., Zhang, T.C., Valero, J.R., 2016. Membrane processes for removal of pharmaceutically active compounds (PhACs) from water and wastewaters. *Science of the Total Environment*, 547, 60–77.
- Tambosi, J. L., Sena, R. F., Favier, M., Gebhardt, W., José, H. J., Schröder, H. F., Regina de Fátima Peralta Muniz Moreira, R. F. P. M. (2010). Removal of pharmaceutical compounds in membrane bioreactors (MBR) applying submerged membranes. *Desalination*, 261, 148–156.
- Ternes, T. A., 1998. Occurrence of drugs in German sewage treatment plants and rivers. *Water Resource*, 32(11), 3245–3260.
- Ternes, T. A., Joss, A., Siegrist, H., 2004a. Peer reviewed: scrutinizing pharmaceuticals and personal care products in wastewater treatment. *Environment Science & Technology*, 38, 392A–399A.
- Ternes, T. A., Janex-Habibi, M. L., Knacker, T., Kreuzinger, N., Siegrist, H., 2004b. Assessment of Technologies for the removal of pharmaceuticals and personal care products in sewage and drinking water facilities to improve the indirect potable water reuse (POSEIDON), 61.
- Tiwari, B., Sellamuthu, B., Choquette, S. P., Drogui, P., Tyagi, D. R., Vaudreuil, M. A., Sauve, S., Buelna, G., Dube, R., 2021. Acclimatization of microbial community of submerged membrane bioreactor treating hospital wastewater. *Bioresource Technology*, 319, 124223.
- Tiwari, B., Sellamuthu, B., Piché-Choquette, S., Drogui, P., Tyagi, R.D., Buelna, G., Vaudreuil, M.A., Sauvée, S., Dube, R., Surampalli, R.Y., 2021a. Compositional microbial-community shift of submerged membrane bioreactor treating hospital wastewater at varying temperatures. *Journal of Environmental Engineering*, 147 (2), 4020152.
- Tran, N. H., Chen, H., Reinhard, M., Mao, F., Yew-Hoong Gin, K., 2016. Occurrence and removal of multiple classes of antibiotics and antimicrobial agents in biological wastewater treatment processes. *Water Research*, 104, 461–472.
- Trinh, T., van den Akker, B., Coleman, H.M., Stuetz, R.M., Drewes, J.E., Le-Clech, P., Khan, S.J., 2016. Seasonal variations in fate and removal of trace organic chemical contaminants while operating a full-scale membrane bioreactor. *Science of the Total Environment*, 550, 176–183.
- Türkyılmaz, A., Işınkaralar, K., 2020. Sulu Çözeltilerden Aktif Karbon Üzerine Adsorpsiyon ile Antibiyotiklerin (Tetrasiklin ve Penisilin G) Giderimi. *Mühendislik Bilimleri ve Tasarım Dergisi*, 8(3), 943 – 951.
- Urase, T., Kagawa, C., Kikuta, T., 2005. Factors affecting removal of pharmaceutical substances and estrogens in membrane separation bioreactors. *Desalination*, 178, 107–113.
- Verlicchi, P., Galletti, A., Petrovic, M., Barcelo, D., 2010. Hospital effluents as a source of emerging pollutants: an overview of micropollutants and sustainable treatment options, *Journal of Hydrology*, 389, 416–428.
- Verlicchi, P., Al Aukidy, M., Zambello, E., 2015. What have we learned from worldwide experiences on the management and treatment of hospital effluent? - An overview and a discussion on perspectives. *Science of the Total Environment*, 514, 467–491.
- Vyrides, I., Conteras, P.A., Stuckey, D.C., 2010. Post-treatment of a submerged anaerobic membrane bioreactor (SAMBR) saline effluent using powdered activated carbon (PAC). *Journal of Hazardous Materials*, 177, 836–841.
- Weissbrodt, D., Kovalova, L., Ort, C., Pazhepurackel, V., Moser, R., Hollender, J., Siegrist, H., Mcardell, C.S., 2009. Mass flows of X-ray contrast media and cytostatics in hospital wastewater. *Environmental Science & Technology*, 43, 4810–4817.
- Wijekoon, K.C., Hai, F.I., Kang, J., Price, W.E., Guo, W., Ngo, H. H., Nghiem, L.D., 2013. The fate of pharmaceuticals, steroid hormones, phytoestrogens, UV-filters and pesticides during MBR treatment. *Bioresource Technology*, 144, 247–254.
- Yamamoto, H., Nakamura, Y., Moriguchi, S., Honda, Y., Tamura, I., Hirata, Y., Hayashi, A., Sekizawa, J., 2009. Persistence and partitioning of eight selected pharmaceuticals in the aquatic environment: laboratory photolysis, biodegradation, and sorption experiments. *Water Research*, 43, 351–362.
- Yang, Y., Ok, Y.S., Kim, K.-H., Kwon, E.E., Tsang, Y.F., 2017. Occurrences and removal of pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in drinking water and water/ sewage treatment plants: a review. *Science of the Total Environment*, 596–597, 303–320.
- Yilmaz, G., Kaya, Y., Vergili, I., Gönder, B. Z., Özhan, G., Celik, O. B., Altinkum, M. S., Bagdatli, Y., Boergers, A., Tuerk, J., 2017. Characterization and toxicity of hospital wastewaters in Turkey, *Environmental Monitoring and Assessment*, 189: 55.
- Yılmaz, G. (yürütücü), Kaya, Y., Vergili, I., Gönder, B. Z., Özhan, G., Celik, O. B., Altinkum, M. S., Bagdatli, Y., Karakas, I., Ilyasoglu, G., 2018. Hastane atıksularının karakterizasyonu ve toz aktif karbon ilaveli membran biyoreaktörde arıtımı, TÜBİTAK 1001 Projesi, Proje no: 114Y192.
- Zhang, Y., Geissen, S.U., Gal, C., 2008. Carbamazepine and diclofenac: removal in wastewater treatment plants and occurrence in water bodies. *Chemosphere* 73, 1151–1161.

- Zhou, H., Wu, C., Huang, X., Gao, M., Wen, X., Tsuno, H., 2010. Occurrence of selected pharmaceuticals and caffeine in sewage treatment plants and receiving Rivers in Beijing, China. *Water Environ Research*, 82, 2239-2248.
- Zhu, Y., Wang, Y., Zhou, S., Jiang, X., Ma, X., Liu, C., 2018. Robust performance of a membrane bioreactor for removing antibiotic resistance genes exposed to antibiotics: Role of membrane foulants. *Water Resource*, 130, 139-150.