



ELEKTROKOAGÜLASYON PROSESİ İLE HASTANE ATIKSUYUNDA TOPLAM ORGANİK KARBON GİDERİMİ

***Sevil VELİ, Ayla ARSLAN, Emrah YILMAZ**

Kocaeli Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Çevre Mühendisliği Bölümü, 41380, Kocaeli, sevilv@kocaeli.edu.tr
Kocaeli Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Çevre Mühendisliği Bölümü, 41380, Kocaeli, ataberk@kocaeli.edu.tr
Kocaeli Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Çevre Mühendisliği Bölümü, 41380, Kocaeli, emrh.ylmz61@gmail.com

Geliş Tarihi: 01.09.2015

Kabul Tarihi: 03.12.2015

ÖZ

Bu çalışmada ham hastane atıksuyunun elektrokoagülasyon prosesi ile arıtımı çalışılmıştır. Alüminyum, demir ve paslanmaz çelik elektrotların kullanıldığı çalışmada, pH, akım yoğunluğu ve süre gibi proses değişkenlerinin toplam organik karbon (TOK) giderimi üzerine etkileri incelenmiştir. Demir elektrotla yapılan deneylerde maksimum giderim verimi, pH=7.56, akım yoğunluğu 4,46mA/cm² çalışma şartlarında %98 olarak belirlenmiştir. Aynı giderim verimine Alüminyum elektrotla pH=5.44, akım yoğunluğu 4,46mA/cm² şartlarında ulaşılmıştır. Paslanmaz çelik elektrotla yürütülen çalışmada ise pH =7.56, akım yoğunluğu 2,45mA/cm² için %99 giderim verimi sağlanmıştır. Her üç elektrot için optimum reaksiyon süresi 20 dakika olarak belirlenmiştir. Çalışma sonucunda hastane atıksularının arıtımında elektrokoagülasyon prosesinin uygulanabilirliği ortaya konmuştur.

Anahtar Kelimeler: *Hastane atıksuyu, elektrokoagülasyon, demir elektrot, alüminyum elektrot, paslanmaz çelik elektrot.*

TOC REMOVAL FROM HOSPİTAL WASTEWATER BY ELECTROCOAGULATION

ABSTRACT

In this work, the treatment of raw hospital wastewater by electrocoagulation process was studied. In the experiments which were used the aluminium, iron and stainless steel electrodes, the effects of process variables such as pH, current density and time on the TOC removal were examined. In experiments with iron electrode, the maximum removal efficiency was 98% at the studied conditions of pH 7.56, current density 4.46 mA/cm². Also, the same removal efficiency was achieved with aluminium electrode at pH 5.44 and current density 4.46 mA/cm². In the experiments with stainless steel electrode, 99% of the removal efficiency was obtained at pH 7.56, current density 2.45 mA/cm². The optimal reaction time was determined as 20 minute for all three electrodes. The results of study shown that the electrocoagulation process was applicable for the treatment of hospital wastewater.

Keywords: *Hospital wastewater, electrocoagulation, iron electrode, aluminium electrode, stainless steel electrode.*

1.GİRİŞ

Son yıllarda Türkiye’de ve dünyada nüfusun hızlı artışı ve gelişen endüstrileşme sonucunda çevre kirliliği önemli bir sorun haline gelmiştir. Artan nüfus ile beraber hastanelerde çeşitli nedenlerden dolayı tedavi gören hasta sayısında da artış gözlenmektedir. Bunun sonucunda hastane atıksu miktarı artış göstermekte ve çevre açısından olumsuz etkiler yaratmaktadır.

Hastane atıksuları yapısında çok çeşitli kirleticileri barındırmakta ve bu özelliği ile diğer atıksulardan ayrılmaktadır. Hastanede kullanılan su miktarı yatak sayısına göre 200 ile 1200 lt/yatak*gün arasında değişmektedir [1].

Hastanede tedavi ve sterilizasyon için pek çok kimyasal madde kullanılmaktadır. Röntgen filmi çekimlerinde ve kanser, guatr gibi bazı özel hastalıkların tedavilerinde de radyoaktif maddelerin kullanıldığı bilinmektedir. Özellikle tedavi ve teşhis amacıyla hastalara verilen ilaçlar hastane içinde veya dışında idrarla kanalizasyona verilmektedir. Bu nedenle hastane atıksularında yüksek miktarda organik ve toksik madde bulunmaktadır [2].

Kajitvichyanukul ve Suntraviport, (2006), hastane atıksularının fotofenton prosesi ile ön arıtımını incelemişler, atıksu içerisindeki kirleticilerin oksidasyon derecelerinde ve biyolojik parçalanabilirliklerinde meydana gelen iyileşmeyi değerlendirmişlerdir. pH=3 değerinde KOİ:H₂O₂:Fe(II) oranları 1:4:0.1 olduğu zaman biyolojik parçalanabilirliklerinde önemli miktarda artış olduğu gözlemlenmiştir. Bu şartlarda BOİ:KOİ oranı 0.3'ten 0.52'ye yükselmiştir [3].

Vasconcelos ve diğ. (2009), hastane atıksularından ciprofloksacin'in (CIP) ozon ve foto prosesler ile degradasyonunu incelemişlerdir. CIP ozonlaması için sadece 30 dakika yeterli olmuştur. Yüksek pH değerlerinde CIP ozon reaktifliğinin arttığı gözlenmiştir. Ozonlamanın KOİ giderimi üzerine fazla etkisi olmamıştır [4].

Balcıoğlu ve Ötker (2003), sentetik antibiyotik atıksuyu ile çalışmışlardır. Bu çalışmanın sonuçlarına göre nötral pH değerlerinde ozonlama antibiyotik gideriminde oldukça iyi bir tekniktir. O₃/H₂O₂ kombinasyonu pH=7de direkt ozon uygulamasına oranla KOİ gideriminde fazla bir avantaja sahip değildir. Ancak KOİ ve absorbandsa en yüksek giderim verimlerine ozon/hidrojen peroksit prosesiyle ulaşılmıştır [5].

Elektrokoagülasyon da hastane atıksularının arıtımında uygulanabilecek ileri arıtım yöntemlerinden biridir ve az çamur oluştuğu için tercih edilmektedir. Elektrokoagülasyon yönteminde genellikle demir, alüminyum ve paslanmaz çelik elektrotlar kullanılmaktadır [6].

Elektrokoagülasyon prosesinde anot olarak demir veya alüminyum elektrotlar kullanılması halinde bu elektrotlar çözünerek çözülmeye Al⁺³, Fe⁺² ve Fe⁺³ iyonları vermekte olup, bu iyonlar sudaki hidroksil iyonları ile birleşerek çok az çözünen Al(OH)₃, Fe(OH)₂ ve Fe(OH)₃ gibi metal hidroksitler oluşturmaktadır [7, 8]. Elektrokoagülasyonda anında oluşan metal hidroksit partiküllerinin adsorpsiyon özellikleri çok yüksektir [9].

Elektrokoagülasyon prosesinin mekanizması su ortamının kimyasına; özellikle de iletkenliğine bağlıdır. Ek olarak, pH, partikül boyutu, kimyasal bileşen konsantrasyonları gibi diğer karakteristikler de elektrokoagülasyon prosesinde etkilidir [10]. Elektrokoagülasyon ile iyonların uzaklaştırılma mekanizması atıksu arıtımında çok yaygın olarak kullanılan demir ve alüminyum metalleri için açıklanmıştır [11, 12].

Bu çalışmada hastane atıksuyunun demir, alüminyum ve paslanmaz çelik elektrotlar kullanılarak elektrokoagülasyon prosesi ile arıtımı incelenmiştir. Arıtılabilirlik TOK parametresi üzerinden değerlendirilmiştir. Proses değişkenleri olan pH, akım yoğunluğu ve süre için optimum değerler belirlenmiştir.

2. MATERYAL VE METOT

Bu çalışmada kullanılan atıksu, Kocaeli Üniversitesi Tıp Fakültesi kanalizasyon sisteminden alınmıştır. Çalışılan ham atıksuyun karakterizasyonu Tablo1.'de verilmiştir [13].

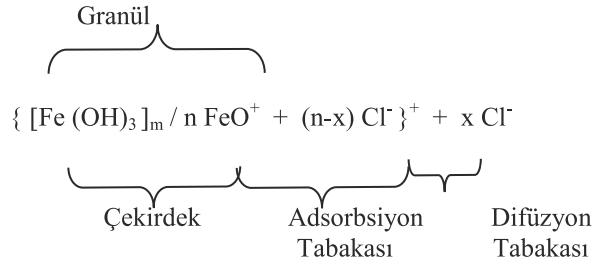
Çizelge 1. Hastane atıksuyu karakterizasyonu [10]

Parametre	Ortalama ± standart sapma
TOK (mg/L)	276 ± 155
AKM	228± 65
BOİ ₅	387± 197
KOİ	807± 325
Toplam Fe(mg/L)	0.54 ± 0.28
İletkenlik (µs/cm)	1085±394
Cl ⁻ (mg/L)	212 ± 161
pH	8.1 ± 0.74

Deneysel çalışmada TOK parametresi analizleri Standart Yöntemler'de [14] belirtilen Persülfat-Oksidasyon 5310-C'e uygun olarak yapılmıştır. pH tayininde Thermo Orion 3 Star marka pH metre cihazı kullanılmıştır. Çalışmada 0.1N HCl ve 0.1N NaOH çözeltileri kullanılarak pH ayarlaması yapılmıştır. İletkenlik parametresi ise Sens Direct Lovibond Con200 cihazı ile ölçülmüştür.

Deneysel çalışmalar laboratuvar ölçekli, 2L hacimli Elektrokoagülasyon reaktöründe gerçekleştirilmiştir (Şekil 1). Reaktörde karşılıklı 7 adet demir, alüminyum ve paslanmaz çelik elektrotlar bulunmaktadır.

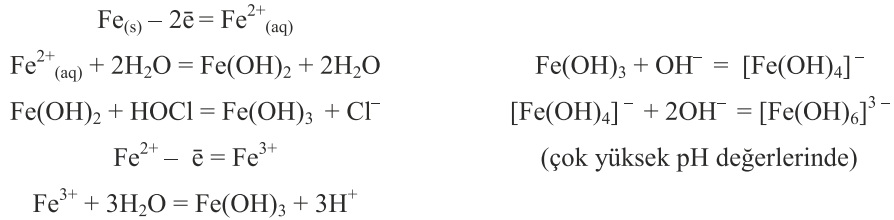
Demir ve alüminyum elektrotla yapılan Elektrokoagülasyon ile arıtım metal hidroksitlerin oluşmasıyla başlar. Elektrokoagülasyonda koagülasyon işlemi suya elektrik akımı verilerek gerçekleştirilir. Bu şekilde metallerin çözülmesi ve oluşan kolloidal partiküllerin yapısı (Fe(OH)₃-örneği) aşağıda gösterilmiştir.



Alüminyum ve demir elektrotlar kullanıldığında anot ve katotta oluşabilen reaksiyonlar ise Çizelge 2 de verilmiştir[15].

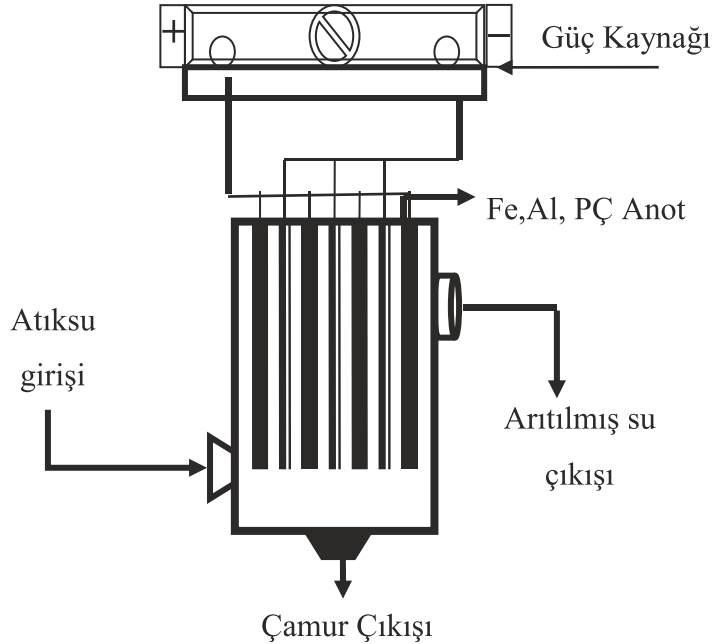
Çizelge 2. Anot ve katotta oluşan reaksiyonlar[15].

Anot	Katot
$4 \text{OH}^- - 4\bar{e} = 2\text{H}_2\text{O} + \text{O}_{2(g)}$	$2\text{H}_3\text{O}^+ + 2\bar{e} = \text{H}_{2(g)} + 2\text{H}_2\text{O}$ (asidik ortam)
$2\text{H}_2\text{O} - 4\bar{e} = \text{O}_{2(g)} + 4\text{H}^+$	$2\text{H}_2\text{O} + 2\bar{e} = \text{H}_{2(g)} + 2\text{OH}^-$ (bazik ortam)
$2\text{Cl}^- - 2\bar{e} = \text{Cl}_{2(g)}$	$\text{O}_2 + 2\text{H}_2\text{O} + 4\bar{e} = 4\text{OH}^-$
$\text{Cl}_{2(g)} + \text{H}_2\text{O} = \text{HOCl} + \text{H}^+ + \text{Cl}^-$	
<u>Al-anot</u>	
$\text{Al}_{(s)} - 3\bar{e} = \text{Al}^{3+}_{(aq)}$	$\text{Al}_{(s)} + 4\text{OH}^- = [\text{Al}(\text{OH})_4]^- + 3\bar{e}$
$\text{Al}^{3+}_{(aq)} + 3\text{H}_2\text{O} = \text{Al}(\text{OH})_3 + 3\text{H}^+$	(çok yüksek pH değerlerinde)
<u>Fe-anot</u>	



Paslanmaz çelik elektrot kullanıldığında ise Elektrooksidasyon gerçekleşmekte olup, elektrotlar vasıtasıyla çıkan gazlar (O_2 ve H_2) ile istenilen oksidasyon sağlanır ve organik bileşikler CO_2 ve H_2O gibi son ürünlere dönüştürülmektedir. Elektrooksidasyon prosesinde aktif rolü oynayan elektrot anottur. Bundan dolayı bu süreçte etkili olan parametrelerin başında anodun katalitik aktivitesi gelir [16].

Bu elektrotlar 14 adet paralel levhadan oluşmaktadır. Her bir levha 11cm x 16cm boyutlarındadır. Akım ve voltaj kontrolü MERSAN MR12 (24V-50A) model güç kaynağı ile sağlanarak, direkt akım elektrotlara uygulanmıştır. Anot ve katot olarak elektrotların iki grubu dikey olarak yerleştirilmiştir. Deneylerden önce elektrotlar %1'lik HCl ile 8 saat muamele görmüştür. Elektrokoagülasyon proseslerinde elektrotların malzemesi, reaksiyonlar bakımından önemlidir. Kullanılan her üç elektrot ucuzdur ve üretimleri basittir.



Şekil 1. Elektrokoagülasyon reaktörü

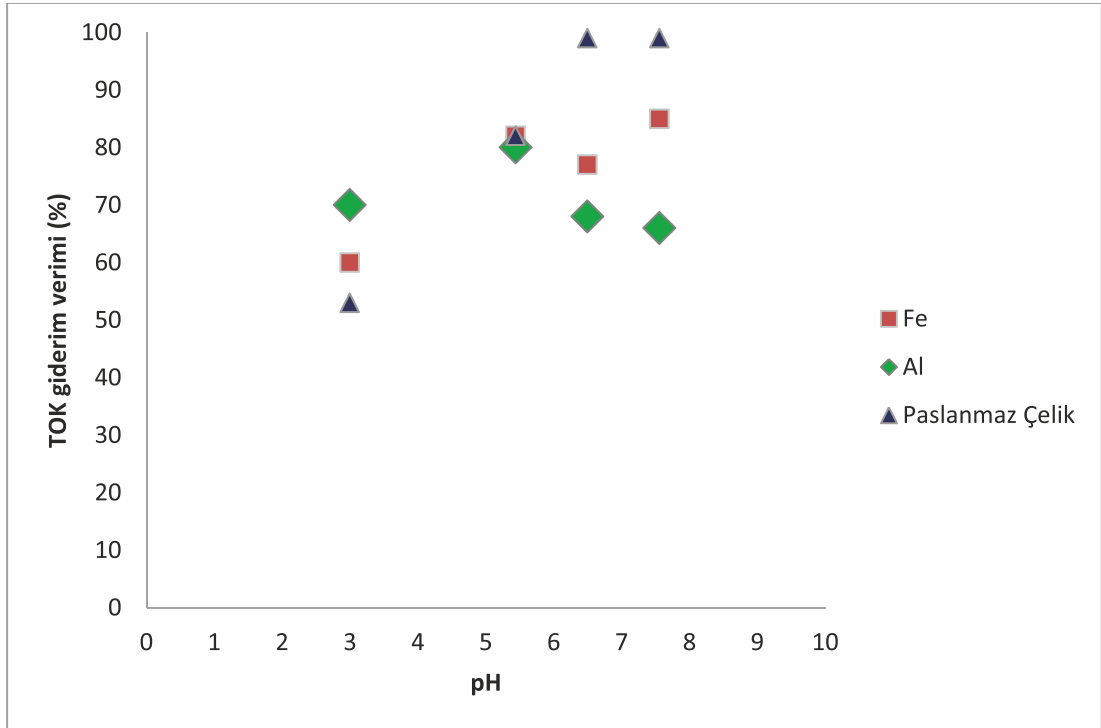
Başlangıçta ham hastane atıksuyu kaba filtreden (Cod.HJ-1535/400400 Loteno 9515) geçirilmiştir. pH ayarı yapılan 2L'lik numuneler elektrokoagülasyon reaktörüne aktarılmıştır. Çalışma şartlarında belirtilen elektrot tipi reaktöre yerleştirilmiştir ve akım değeri cihazın güç kaynağından ayarlanmıştır. Atıksuyun orijinal iletkenlik değerinde çalışılmış olup, herhangi bir iletkenlik ayarı yapılmamıştır. Deneyler oda sıcaklığında yürütülmüştür.

3. DENEYSEL SONUÇLAR VE TARTIŞMA

3.1. pH'm etkisi

Elektrokoagülasyon prosesinde önemli proses değişkenlerinden biri başlangıç çözeli pH değeridir. Çözelti pH'ına bağlı olarak elektrolitik çözünen metal iyonları farklı metal hidroksit türleri oluştururlar.

Çalışmada çözelti pH'ı 3.0-7.0 arasında değişmektedir. pH parametresinin TOK giderim verimi üzerine etkisi alüminyum, demir ve paslanmaz çelik elektrotları için ayrı ayrı belirlenmiş ve Şekil 2.'de verilmiştir.



Şekil 2. pH'ın TOK giderimine etkisi (Reaksiyon şartları: 2.45 mA/cm² akım yoğunluğu, süre 20 dk., numune hacmi 2L)

Şekil 2’den görüldüğü gibi demir ve paslanmaz çelik elektrotlar için en yüksek giderim verimlerine pH 7,56 değerinde, alüminyum elektrot için ise pH 5,44 değerinde ulaşılmıştır.

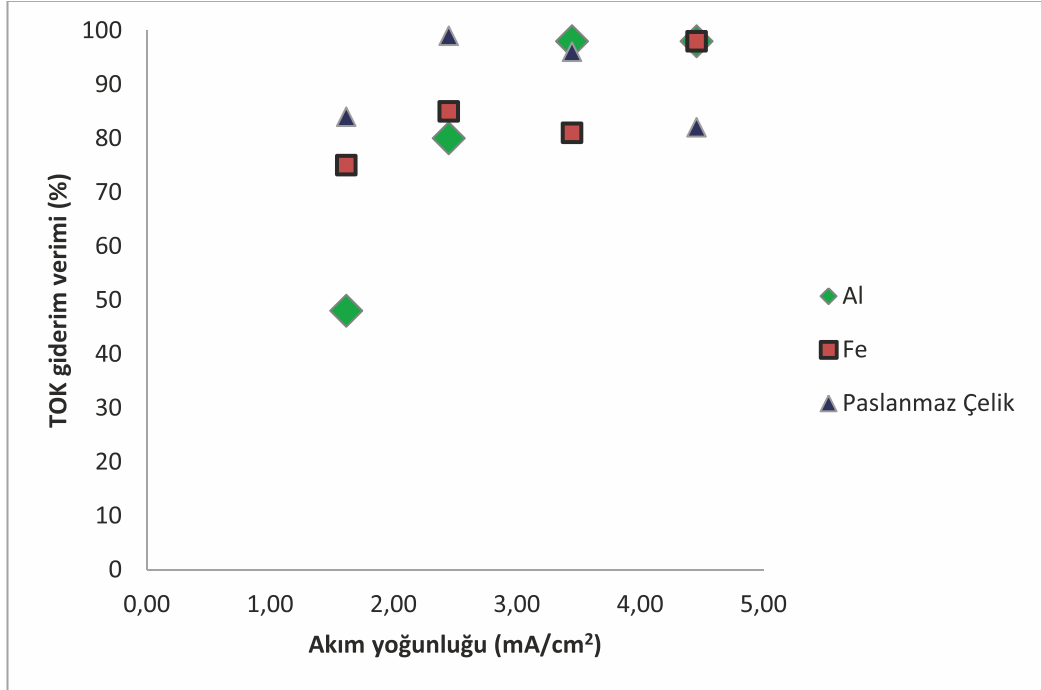
Demir elektrotlarla elektrokoagülasyon işleminde, alkali ortamda (pH=7.56)’ da %85 TOC giderimi sağlanmıştır. Bu ortamda demirin koagülant etkisi yüksek olan $Fe(OH)_4^-$ komplekslerinin oluşmasını, bunun yanı sıra $Fe(OH)_2$ ve $Fe(OH)_3$ floklarını da oluşturarak kirleticileri çöktürmesi ile açıklanmaktadır [17].

Paslanmaz çelik elektrotlarla elektrooksidasyon işleminde ise, yüksek pH değerlerinde %99 TOC giderimi sağlanmıştır. Bu atıksuda bulunan Cl^- iyonlarının Cl_2 ’e oksitlenerek oksidasyonu hızlandırmakta ve verimi arttırmaktadır[18].

Alüminyum elektrotlarla elektrokoagülasyon işleminde düşük pH’larda alüminyumun koagülasyon ekisi önemsiz olan Al^{+3} formunda olduğu, pH 5.5’de kirleticiler için etkin monomerik ve polimerik koagülantlar olan $Al(OH)_3$, $Al(OH)^{+2}$, $Al_{17}(OH)_{32}^{+7}$ gibi kompleksleri formunda olduğu, yüksek pH değerlerinde ise atıksu arıtımında etkisiz olan çözülebilir $Al(OH)_4^-$ formuna dönüşeceği gösterilmiştir [19]. Şekil 2’den de görüldüğü gibi pH=5.44’de ortamda yeterli koagülantların bulunması en verimli arıtımın gerçekleştiğini ifade etmektedir.

3.2. Akım Yoğunluğunun Etkisi

Elektrokoagülasyon işleminde akıma bağlı olarak kirleticilerin koagüle olma verimi değişmektedir. Demir, alüminyum ve paslanmaz çelik elektrotlar için farklı akım değerlerine karşılık elde edilen TOK giderim verimleri Şekil 3’de verilmiştir.



Şekil 3. Akımın TOK giderimine etkisi (Reaksiyon şartları: pH_{Al} 5.44, pH_{Fe} 7.56, $pH_{Pç}$ 7.56, süre 20 dk., numune hacmi 2 L)

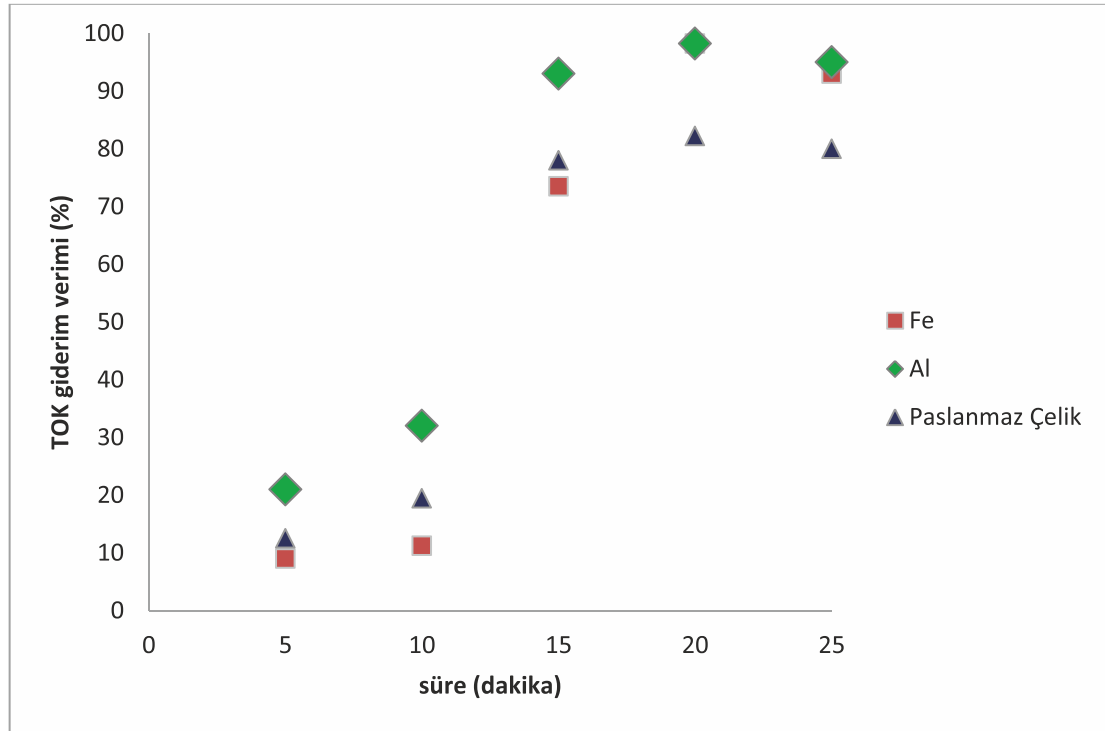
Şekilde 3’den görüldüğü gibi demir ve alüminyum elektrotlar için $4,46\text{mA/cm}^2$ akım yoğunluğunda maksimum TOK giderim verimleri elde edilmiştir. Paslanmaz çelik elektrot kullanılan çalışmada ise $2,45\text{mA/cm}^2$ akım değerinde maksimum giderim verimi gerçekleşmiştir.

Yüksek akım yoğunluğunda elektrotların anodik çözünmesiyle kirleticilerin giderilmesinde önemli olan flokların oluşumu artmaktadır. Ayrıca Faraday yasasına göre akım yoğunluğu arttıkça elektrotlarda üretilen iyon miktarı artar. Bu da oluşan flok miktarını arttırmakta ve sonuçta kirleticilerin giderimi artmaktadır [20].

3.3. Reaksiyon Süresinin Etkisi

Elektrokoagülasyon prosesinde reaksiyon süresinin etkisini incelemek amacıyla her bir elektrot için optimum akım yoğunluğu ve pH’ da, elektroliz süresi 5-25 dk arasında deneyler gerçekleştirilmiştir (Şekil 4).

Elektrokoagülasyon prosesinde anodik çözünmenin başlamasıyla koagülasyon oluşur. Çözeltilerden kirletici parametrelerin gideriminde direkt olarak elektrotlar tarafından üretilen iyon konsantrasyonu önemlidir. Elektroliz süresi artarsa, iyonların konsantrasyonu ve onların hidroksit flokları artar. Yani Elektrokoagülasyon prosesinde uygun ve yeterli miktarda flokların oluşması zamana bağlı olarak gerçekleşir [21].



Şekil 4. Reaksiyon süresinin TOK giderimine etkisi (Reaksiyon şartları: pH_{Al} 5.44 ve $4.46mA/cm^2$, pH_{Fe} 7.56 ve $4.46mA/cm^2$, $pH_{Pç}$ 7.56 ve $2.45mA/cm^2$, numune hacmi 2 L)

Şekil 4'den görüldüğü gibi her üç elektrot için en yüksek giderim verimlerine 20 dakikada ulaşılmış olup, bu çalışma için optimum süre olarak belirlenmiştir.

SONUÇLAR VE TARTIŞMA

Hastane atıksuyunun elektrokoagülasyon yöntemi ile arıtılabilirliği alüminyum, demir ve paslanmaz çelik elektrotlarla değerlendirilmiştir. Bu çalışmada her üç elektrot tipi için de yüksek TOK giderim verimleri elde edilmiştir. Alüminyum elektrot için optimum pH değeri 5.44; demir ve paslanmaz çelik elektrotlar için 7.56 olarak belirlenmiştir. Optimum deneysel şartlar sağlandığında alüminyum ve demir elektrotlar için kompleks yapıda olan monomerik, polimerik koagülantların, elektrotlarda üretilen iyon konsantrasyonlarının ve flokların artması ile yüksek giderim verimlerine ulaşılabileceği gösterilmiştir. Paslanmaz çelik elektrotlarda ise oksidasyonun hızlanması ve flokların artması verimi arttırmaktadır. Atıksuların artımında sadece yüksek giderim verimlerine ulaşmak değil, bu verimleri ekonomik olarak minimum kılacak deneysel şartların da belirlenmesi gerekir.

KAYNAKLAR

- [1] P.Verlicchi, A. Galletti, M. Petrovic, and D. Barcelo, “Hospital effluent as a source of emerging pollutant: an overview of micropollutants and sustainable treatment options”, *Journal of Hydrology*, 389, 416 (2010).
- [2] Q. Liu, Y. Zhou, L. Chen, and X. Zheng, “Application of MBR for hospital wastewater treatment in China”, *Desalination*, 250, 605 (2010).
- [3] P. Kajitvichyanukul, N. Suntronvipart, “Evaluation of biodegradability and oxidation degree of the hospital wastewater using photo-Fenton process as the pretreatment method”, *Journal of Hazardous Materials*, B138, 384-391 (2006).
- [4] T.G. Vasconcelos, K. Kümmerer, D.M. Henriques, A.F. Martins, “Ciprofloxacin in hospital effluent: degradation by ozone and photoprocesses”, *Journal of Hazardous Materials*, 169, 1154 (2009).
- [5] A.M. Balcıoğlu, M. Ötker, “ Treatment of pharmaceutical wastewater containing antibiotics by O₃ and O₃/H₂O₂ processes”, *Chemosphere*, 50, 85-95 (2003).
- [6] M. Malakootian, and N. Yousefi, “The efficiency of electrocoagulation process using aluminum electrodes in removal of hardness from water”, *Iran. J. Environ. Health. Sci.Eng.*, 6(2), 131 (2009).
- [7] S. Veli, T. Öztürk, and A. Dimoglo, “Treatment of municipal solid wastes leachate by means of chemical- and electro-coagulation”, *Separation and Purification Technology*, 61, 82 (2008).

- [8] M. Kobya, and S. Delipınar, "Treatment of the baker's yeast wastewater by electrocoagulation." *Journal of Hazardous Materials*, 154(1-3), 1133 (2008).
- [9] H.A. Moreno-Casillas, D.L. Cocke, J.A.G. Gomes, P. Morkovsky, J.R. Parga, and E. Peterson, "Electrocoagulation mechanism for COD removal", *Separation and Purification Technology*, 56, 204 (2007).
- [10] A. Alinsafi, M. Khemi, M.N. Pons, J.P. Leclerc, A. Yaacoubi, A. Benhammou, and A. Nejmeddine, "Electro-coagulation of reactive textile dyes and textile wastewater", *Chemical Engineering and Processing*, 44 (4), 461 (2005).
- [11] T. Öztürk, S. Veli, and A. Dimoglo, "The effect of seawater conductivity on the treatment of leachate by electrocoagulation", *Chem. Biochem. Eng. Q.*, 27(3), 347 (2013).
- [12] M. İşgören, S. Veli, and M.A. Yıldız, "Tekstil endüstrisi atıksuyunun elektrokimyasal yöntemler ile arıtımında KOİ, TOK ve renk giderimi", 3. Uluslararası Bursa Su kongresi ve Sergisi, Bursa, 879 (2013) .
- [13] A. Arslan, S. Veli, and D. Bingöl, "Use of response surface methodology for pretreatment of hospital wastewater by O₃/UV and O₃/UV/H₂O₂ processes" , *Separation and Purification Technology*, 132, 561 (2014).
- [14] APHA., "Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater", 21st ed., American Public Health Association, Washington D.C. (2005).
- [15] K. Scott, "Electrochemical Processes for Clean Technology", The Royal Society of Chemistry, Cambridge, UK (1995).
- [16] F. İlhan, U. Kurt, Ö. Apaydın, E. Arslankaya, ve M.T. Gönüllü, "Elektrokimyasal arıtım ve uygulamaları: Katı atık sızıntı suyu çalışması", TÜRKAY 2007 AB Sürecinde Türkiye'de katı Atık Yönetimi ve Çevre Sorunları Sempozyumu, İstanbul (2007).
- [17] D. Ghernaout, A. Badis, A. Kellil, B. Ghernaout, "Application of electrocoagulation in *Escherichia coli* culture and two surface waters", *Desalination* 219, 118-125 (2008).
- [18] L.C. Chiang, J.E. Chang, T.C. Wen, "Electrochemical treatability of refractory pollutants in landfill leachate", *Hazardous Wastes and Hazardous Materials*, 12(1), 71-82. (1995).
- [19] M. Zaied, N. Bellakhal, "Electrocoagulation treatment of black liquor from paper industry", *Journal of Hazardous Materials*, 163(2): 995-1001 (2009).

[20] M.Y.A. Mollah, S.R Pathak, P.K Patil, M. Vayuvegula, T.S. Agrawal, J.A.G. Gomes, M. Kesmez, D.L. Cocke, "Treatment of orange II azo-dye by electrocoagulation (EC) technique in a continuous flow cell using sacrificial iron electrodes", Journal of Hazardous Materials. B. 109, 165-171 (2004).

[21] F. Özyonar, ve B. Karagözoğlu, "Elektrokoagülasyon Prosesi ile Tekstil Sanayi Atıksuyunun Arıtımı", Erciyes Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi, 28(1): 29-37 (2012).

