



## İçme suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile doğal organik madde giderimi

Fuat ÖZYONAR\*, Bünyamin KARAGÖZOĞLU, Eyüp ATMACA

Cumhuriyet Üniversitesi, Çevre Mühendisliği Bölümü, TR-58140 Sivas-Türkiye

### ÖZET

Bu çalışmada içme sularından doğal organik maddelerin (DOM) Elektrokoagülasyon (EC) prosesiyle arıtılabilirliği incelenmiştir. Bu amaçla Sivas 4 Eylül Barajının sularının arıtıldığı, Sivas içme suyu arıtma tesisi girişinden ham su numuneleri alınmıştır. Arıtma verimliliğinin ölçülmesinde çözünmüş organik karbon (ÇOK) ve  $UV_{254}$  absorbans parametreleri dikkate alınmıştır. Demir ve alüminyum elektrotların monopolar paralel bağlı kullanıldığı EC reaktöründe ÇOK ve  $UV_{254}$  absorbans giderimi üzerine; başlangıç pH, akım yoğunluğu ve elektroliz süresi gibi işletme parametrelerinin etkisi incelenmiştir. Alüminyum elektrotlarının kullanıldığı EC prosesinde başlangıç pH, akım yoğunluğu ve elektroliz süresinin optimum değerleri sırasıyla; 5, 20 A/m<sup>2</sup> ve 20 dakika olarak bulunmuştur. Bu koşullar altında, ÇOK ve  $UV_{254}$  giderme verimleri sırasıyla; %78 ve %94,5 olarak elde edilmiştir. Demir elektrotları kullanılması durumunda, optimum işletme koşulları başlangıç pH 6, akım yoğunluğu 20 A/m<sup>2</sup> ve elektroliz süresi 20 dakika olarak bulunmuştur, bu koşullarda ÇOK ve  $UV_{254}$  giderme verimleri sırasıyla; %65,4 ve % 80,3'tür. Ayrıca enerji ve elektrot (alüminyum ve demir) harcamaları açısından işletme maliyeti hesaplanarak EC prosesinin ekonomik değerlendirilmesi yapılmıştır. Sonuç olarak EC prosesinin içme sularından DOM gideriminde etkili bir proses olduğu ortaya konulmuştur.

### Anahtar Kelimeler

Elektrokoagülasyon,  
Doğal organik madde,  
Demir ve Alüminyum elektrot,  
ÇOK ve  $UV_{254}$  giderimi.

## Removal of natural organic matter from drinking water by electrocoagulation process

### ABSTRACT

In this study, the treatability of natural organic matter (NOM) from drinking water by EC process was investigated. For this purpose, raw water samples were taken from the influent of Sivas Water Treatment Plant which is treating the water of Sivas 4 Eylül Dam. Dissolved organic carbon (DOC) and  $UV_{254}$  parameters were considered for the evaluation of treatment performance. The effects of various operating parameters such as initial pH, current density and electrolysis time on DOC and  $UV_{254}$  reduction were examined in an EC reactor using monopolar parallel connected aluminum and iron electrodes. The optimum values of initial pH, current density and electrolysis time for the EC process using aluminum electrode were found to be 5, 20 A/m<sup>2</sup> and 20 min, respectively. Under these conditions, removal efficiencies for DOC and  $UV_{254}$  were obtained as 78% and 94.5%, respectively. In the case of iron electrode, removal efficiencies of DOC and  $UV_{254}$  were 65.4% and 80.3%, respectively under the optimum operating conditions which were found to be pH: 6, current density: 20 A/m<sup>2</sup> and electrolysis time: 20 min. Besides, economical evaluation of the EC process was also made through calculating operating costs in terms of energy and electrode (aluminum and iron) consumptions. As a result, EC process was proved to be an effective treatment method for the removal of NOM from drinking water.

### Keywords

Electrocoagulation,  
Natural organic matter,  
Iron and aluminum electrodes,  
DOC and  $UV_{254}$  removal.

\* Sorumlu yazar (Corresponding author) e-posta: fozyonar@cumhuriyet.edu.tr

## 1. Giriş

İçme suyu kaynaklarının kirlenmesine sebep olan ve insan sağlığı açısından risk taşıyan en önemli unsurlardan birisi doğal organik maddelerdir. Doğal organik maddeler (DOM), makro-moleküler hümkik yapılar, küçük molekül ağırlıklı hidrofilik asitler, proteinler, yağlar, karboksilik asitler, amino asitler, karbonhidratlar, ve hidrokarbonlar gibi organik maddeleri içeren heterojen bir karışımdır [1,2,3]. İçme suyu arıtma işlemlerinde sulardaki DOM'un varlığı birçok probleme neden olmaktadır. DOM'lar koagülant ve oksidant ihtiyacını artırır, filtre ömrünü kısaltır, suya renk verirler ve şebeke sistemlerinde bakterilerin tekrar büyümesine yardımcı olurlar. Ayrıca içme suyunda dezenfeksiyon amaçlı klorlama işlemi süresince, klor doğal organik maddelerle reaksiyona girerek trihalometan (THM) ve haloasetik asit (HAA) gibi insan sağlığına zararlı olduğu belirtilen dezenfeksiyon yan ürünlerini (DYÜ) meydana getirir [3].

THM'ler içinde en çok bilinen DYÜ'leri kloroform, bromodiklorometan, klorodibromometan ve bromoform'dur [3,4,5]. THM'ler insan sağlığı açısından kanserojenik bileşiklerdir. Suda bulunması ile suya renk, tat ve koku verirler [6,7,8]. Bu nedenlerle DOM'lerin içme suyundan giderilmesi gerekmektedir. DYÜ öncü bileşiklerin giderimi için temel teknolojiler; zenginleştirilmiş koagülasyon, granüler aktif karbon adsorpsiyonu ve membran filtrasyonudur [4,5,8]. Koagülasyon prosesiyle DYÜ öncü bileşiklerin giderimi sınırlayan birkaç husus bulunmaktadır. Özellikle kullanılan kimyasal koagülant madde miktarının çokluğu, çamur oluşumunun fazlalığı ve suyun toplam çözünmüş madde miktarının (TDS) artması bu prosenin kullanımını sınırlamaktadır. Adsorpsiyon ve membran filtrasyon proseleri alternatif arıtma metodları olarak karşımıza çıkmasına rağmen bu proselerin pahalı oluşu kullanımını etkilemektedir. Bu nedenle yeni arıtma yöntemlerinin araştırılması zorunluluğunu ortaya çıkarmaktadır.

Son yıllarda elektrokoagülasyon (EC) prosesi kimyasal koagülasyon (CC) prosesine göre sağladığı çeşitli avantajlarından dolayı tercih edilen bir proses olarak karşımıza çıkmaktadır. EC prosesinde basit ekipman gereksinimi, kolay işletilme, düşük alıkonma süresi, kimyasal madde gereksiniminin olmaması, düşük miktarda çamur oluşumu, çamurun stabil ve kolay çökmesi, ayrıca oluşan flokların büyük, asidik ortama dayanıklı ve kolay filtrelenebilir olması bu prosenin sağladığı avantajlardır. EC prosesi ile çeşitli türde atıksuların ve içme sularının arıtılması çalışmalarında kirleticilerde yüksek giderme verimleri elde edilmiştir. Örneğin; evsel atıksuların arıtımı [9], restaurant atıksularının arıtımı [10], mermer sanayi atıksularının arıtımı [11], içme sularından  $Mn^{2+}$  giderimi [12], sertlik giderimi [13], florurlu suların arıtımı [14, 15], arsenik ve nitrat giderimi [16, 17] üzerine yapılan çalışmalarda araştırmacılar tarafından başarılı sonuçlar elde edilmiştir. Konuyla ilgili literatür araştırılması yapıldığında EC prosesiyle DOM giderimi ile ilgili birkaç çalışmaya rastlanmıştır. Yıldız, (2003) yapmış olduğu çalışmada sentetik olarak hazırlanmış yüksek miktarda humik madde içeren suları, demir ve alüminyum elektrotlarının kullanıldığı EC prosesiyle arıtılabilirliğini incelemiştir. Aynı şartlarda alüminyum elektrotları ile %99 oranında hümkik madde giderimi elde ederken, demir elektrotları ile %57'lik bir giderme verimi elde etmiştir[18]. Jiang vd (2006), yaptıkları diğer bir çalışmada elektrokoagülasyon prosesi ile yüzey

sularının arıtılabilirliği ile ilgili çalışmalarında klasik koagülasyon prosesine göre EC prosesinde %20 daha fazla ÇOK giderimi gerçekleştirmişlerdir [19]. Özer (2008) zenginleştirilmiş koagülasyon yöntemiyle Sivas içme suyundan doğal organik madde giderimi ile ilgili yaptığı çalışmada çeşitli türde koagülant madde ve polielektrolitler kullanmıştır. Çalışmada en yüksek giderme verimini demir klorür koagülant maddesi ve polialüminyum klorür polielektroliti ile elde etmiştir. Bu çalışmada ÇOK ve  $UV_{254}$  parametreleri için giderme verimleri sırasıyla; %66,6 ve %83,4 olarak bulunmuştur [20]. Sonuç olarak, bu konuda yapılan çalışmaların azlığı ve içme suyundan EC ile DOM giderimi ile ilgili bir benzer çalışmanın yapılmaması nedeniyle bu çalışmanın yapılmasının gerekliliğini ortaya çıkarmaktadır.

Bu nedenle çalışmamızda, içme sularından EC prosesiyle DOM giderimi üzerine EC prosenin performansını etkileyen temel işletme parametrelerinin etkisi incelenmiştir. Toplam organik karbon (TOK) konsantrasyonu ve ultraviyole absorbansı dezenfeksiyon yan ürün (DYÜ) bileşiklerinin konsantrasyonu belirlenmesinde vekil parametreler olarak işlev görmektedir [21]. Bu amaçla EC deneylerinde DOM giderimi olarak ÇOK ve  $UV_{254}$  absorbans parametrelerine bakılmıştır. Elektrokoagülasyon prosesinde ÇOK ve  $UV_{254}$  giderme verimi üzerine başlangıç pH'ı, akım yoğunluğunun ve elektroliz süresinin etkisi araştırılmıştır. Ayrıca her bir elektrot materyali (enerji ve elektrot tüketimi) için proselerin ekonomik açıdan değerlendirilmesi yapılmıştır.

## EC'nin teorisi

Elektrokoagülasyon (EC), elektroliz sonucu anotun çözünmesi ile temizlenecek su ve atıksu içerisinde metal hidroksit floklarının oluşturulmasından ibaret olan bir prostir. EC prosenin kirleticileri uzaklaştırmadaki prensibi koagülasyon, adsorpsiyon, çöktürme ve flotasyon giderme mekanizmalarının biri veya bir kaçına dayandığı, alüminyum ve demir gibi metal anotların anodik çözülmeye uğraması ve hidrolizi ile çok az çözünen  $Al(OH)_3$ ,  $Fe(OH)_2$  ve  $Fe(OH)_3$  gibi metal hidroksitlerin oluşması şeklindedir [22, 23]. Bu elektrotlardan çözünen metal iyonları ortam koşullarına göre metal-polimer kompleksleri oluşturmakta ve kirleticileri adsorplayarak koagüle olmaktadır. EC prosesinde genellikle ard arda üç aşamanın olduğu kabul edilmektedir; 1. Elektrolitik oksidasyonda çözünen elektrot ile koagülant türlerin oluşumu, 2. Kirleticilerin destabilizasyonu, partikül süspansiyonu ve emülsiyonların kırılması, 3. Destablize edilmiş fazlarda flokların toplanması [23, 24].

Alışılmış koagülasyon flokülasyon uygulamalarına kıyasla elektrokoagülasyon, elektriksel alanın varlığından dolayı en küçük kolloid tanecikleri uzaklaştırabilme avantajına sahiptir [25]. Ayrıca oluşan çamur, temel olarak metal oksitleri veya hidroksitleri içermesiyle kolay çökebilir ve susuzlaştırılabilir bir yapı sergilemektedir [26].

## 2. Materyal Metot

### 2.1 Materyal

Deneyisel çalışmada kullanılan su numunelerinin özellikleri çizelge 1'de verilmiştir. Ham su numuneleri Sivas 4 Eylül Barajından gelen suların arıtıldığı Sivas içme suyu arıtma tesisinin girişinden mart ayında alınmıştır.

**Çizelge 1.** Çalışmada kullanılan suyun özellikleri.

	İns. Am. Tüketilen Sul. Hak. Yön. [27]	Değerler
pH	6,5-9,6	7,9
Bulanıklık (NTU)	5	10
TDS (mg/L)	---	265
İletkenlik ( $\mu\text{S}/\text{cm}$ ) $25^\circ\text{C}$	2500	370
Alkalinite (mg $\text{CaCO}_3/\text{L}$ )	---	160
$\text{NO}_3\text{-N}$ (mg/L)	50	0,35
$\text{NO}_2\text{-N}$ (mg/L)	0,5	0,01
$\text{NH}_3\text{-N}$ (mg/L)	---	0,05
Top. Sertlik (mg $\text{CaCO}_3/\text{L}$ )	---	170
Demir(mg/L)	0,2	0,04
Çözünmüş organik madde (mg/l)	---	6,6
$\text{UV}_{254}$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	---	0,0756
Mangan (mg/L)	0,05	0,05

## 2.2 EC Deneyleri

Elektrokoagülasyon (EC) deneylerinin gerçekleştirildiği deney düzeneği Şekil 1'de gösterilmiştir. EC deneylerinde kullanılan reaktör 100x100x130 mm boyutlarında olup, çift cidarlı ve plexiglastan yapılmıştır. Reaktörde EC süresince sıcaklık  $25^\circ\text{C}$ 'de sabit kalması amacıyla ceketli olarak tasarlanmış ve sürekli su sirkülasyonu sağlanmıştır. Reaktöre elektrotlar monopolar paralel bağlı olarak 20 mm aralıklarla yerleştirilmiş ve 4 adet elektrot tamamen çözelti içerisine batırılmıştır. Elektrot materyali olarak 50x70x2 mm boyutlarında  $210\text{ cm}^2$  aktif yüzey alanına sahip alüminyum ve demir plakalar kullanılmıştır. Kullanılan alüminyum plakalar %99,53 Al içeriğine, demir plakalar ise %99,32 Fe içeriğine sahiptir. Akım ve voltaj kontrolü dijital bir güç kaynağı ile sağlanmıştır (GPC 6030D).

EC deneyleri 1000 ml su hacminde ve 200rpm karıştırma hızında gerçekleştirilmiştir. Daha sonra 45 rpm'de 15 dakika yavaş karıştırma gerçekleştirilmiş ve 1 saat çökelmeye bırakılmıştır. Çökeltme işlemi sonunda üst fazdan su numuneleri alınarak  $0,45\mu\text{m}$  gözeneklilikteki membran filtreden geçirilmiş ve gerekli analizler yapılmıştır. Her deneyden önce elektrotlar deney süresince elektrotların yüzeyinde biriken maddeleri gidermek amacıyla önceden hazırlanan temizleme çözeltisinde yıkanmıştır. Temizleme çözeltisi olarak %35'lik 10ml HCl ve %2,8'lik 200ml heksametilen tetramin ( $(\text{CH}_2)_6\text{N}_4$ ) çözeltisi kullanılmıştır [28]. Daha sonra elektrotlar saf su ile yıkanarak kurutulmuş ve bir sonraki deneye geçilmiştir.

## 2.3 Analitik metot

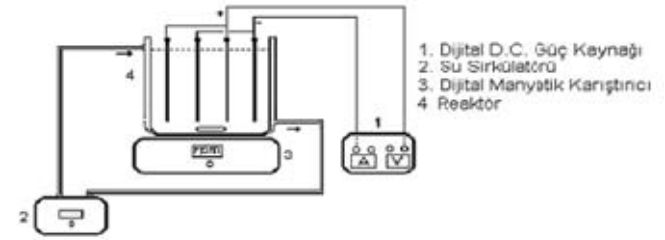
Çözünmüş organik madde (ÇOK), bulanıklık, alkanite ve toplam sertlik parametrelerinin ölçümleri standart metotlarda belirtilen analiz yöntemlerine göre yapılmıştır [29]. ÇOK analizi Apollo 9000 model TOK cihazında,  $\text{UV}_{254}$  absorbans ölçümü, amonyak, demir, mangan, nitrat ve nitrit analizlerinde Merck marka Pharo 300 UV-VIS su-atıksu spektrofotometresine uygun kitler kullanılarak ve dalga boyu seçilerek yapılmıştır. Analizlerde HF marka MicroTPI arazitipi turbidimetre, Consort marka C931 Model pH metre

ve WTW Marka 340i model arazi tipi iletkenlik cihazı kullanılmıştır.

Kirletici yüzde giderim verimi aşağıdaki eşitlikle hesaplanmıştır.

$$\text{Yüzde kirletici giderimi (\%)} = \left( \frac{(C_o - C)}{C_o} \right) \times 100 \quad (1)$$

Burada  $C_o$  suyun başlangıçtaki ÇOK konsantrasyonu veya  $\text{UV}_{254}$  absorbans değeri, C ise arıtıldıktan sonraki ÇOK konsantrasyonu veya  $\text{UV}_{254}$  absorbans değerini ifade etmektedir.



**Şekil 1.** Deneysel çalışmada kullanılan elektrokoagülasyon deney düzeneğinin şematik ve fotoğraflı görünüşü.

## 3. Sonuçlar ve Tartışmalar

### 3.1 Başlangıç pH'in etkisi

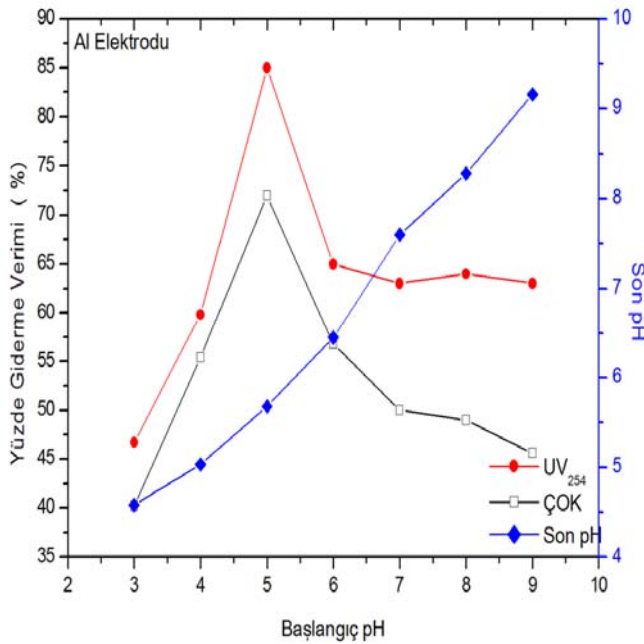
Elektrokoagülasyonda en önemli proses parametrelerinden biri çözeltinin başlangıç pH'idir. Araştırmacılar elektrokoagülasyon prosesiyle ilgili yaptıkları çeşitli çalışmalarda bu parametrenin önemini vurgulamışlardır [30, 31, 32]. Anot ve katotun sulu çözelti içerisindeki reaksiyonları sonucu çözeltinin pH değerinde değişimler olmaktadır. Bundan dolayıdır ki, çözeltinin pH'sına bağlı olarak elektrolitik olarak çözünen metal iyonları ( $\text{Al}^{+3}$ ,  $\text{Fe}^{+2}$  gibi) farklı pH değerlerinde farklı metal hidroksit türleri oluştururlar [22, 33]. Başlangıç pH'in EC prosesine olan etkisini belirlemek amacıyla su numuneleri istenilen pH aralığına NaOH ve  $\text{H}_2\text{SO}_4$  kullanılarak ayarlanmıştır.

Başlangıç pH değerleri 3-9 aralığında değiştirilerek uygulanmıştır. Kullanılan suyun kendi pH değerinin 8'e yakın olması nedeniyle başlangıç pH:8 için yapılacak olan deneylerde suyun pH değeri değiştirilmeyerek orijinal pH değerinde deneyler gerçekleştirilmiştir. Daha sonra alüminyum ve demir elektrotlarının kullanıldığı EC prosesinde başlangıç şartları olarak  $15\text{ A}/\text{m}^2$  akım yoğunluğu, 20 dk elektroliz süresi ve 200 rpm karıştırma hızı sabit alınarak deneyler gerçekleştirilmiştir. Alüminyum elektrotlarının kullanıldığı EC deneylerinde ÇOK ve  $\text{UV}_{254}$  absorbans giderme verimi üzerine başlangıç pH'in etkisi Şekil 2'de verilmiştir. Şekil 2'den de görüldüğü gibi pH 4-6 değerleri arasında giderme verimlerinin yüksek olduğu, pH>6 değerinden büyük olduğunda ya da pH<4 olduğunda giderme

verimlerinin düştüğü görülmüştür. En yüksek giderme verimleri pH 5'te elde edilmiştir. Bu pH değerinde ÇOK ve UV<sub>254</sub> giderimi sırasıyla %72 ve %85'tir. Demir elektrotu için ise başlangıç pH etkisi incelendiğinde pH 6 giderme verimlerinin maksimum olduğu ve bu değer altında ve üstünde giderme verimlerinin alüminyuma benzer şekilde azaldığı görülmektedir. Bu pH değerinde giderme verimleri, ÇOK için %56 ve UV<sub>254</sub> için %72 olarak bulunmuştur.

Kirleticilerin gideriminde rol oynayan metal hidroksit türlerinin pH 5-8 aralığında oluştuğu bilinmektedir. Yukarıda da ifade edildiği gibi hem alüminyum hem de demir elektrotları için pH 5-6 değerinde oluşan metal polimer türlerinin kirleticilerin gideriminde etkili olduğu ve giderimde adsorpsiyon ve çökeltme mekanizmalarının rol aldığı düşünülmektedir. Özellikle kirleticilerin gideriminde rol oynayan Al(OH)<sub>3</sub> ve Fe(OH)<sub>3</sub> flokların bu pH aralığında oluşmaktadır. pH'ın 9 ve daha yüksek olduğu durumlarda ise Me(OH)<sub>3</sub> flokları Me(OH)<sub>4</sub>'e dönüşmektedir. Bu kirleticilerin gideriminde olumsuz bir durumdur. Bazı araştırmacılar tarafından yapılan çalışmalarda bu sonucu desteklemektedir [9, 34, 35]. Yıldız yaptığı benzer çalışmada alüminyum elektrotu için pH 5 ve demir elektrotu için pH 6'da en yüksek humik madde giderme verimi elde etmiştir.

Şekil 2'de görüldüğü EC süresince başlangıç pH değerlerinde değişimler söz konusudur. Başlangıç pH değişiminin pH 3 ile 9 aralığında değiştiğinde sonuç pH değerlerinin alüminyum elektrotu için pH 4,58–9,21 ve demir elektrotu için pH 4,35–9,25 aralığında değiştiği görülmüştür. EC süresince pH'ın yükselmesi, katotta açığa çıkman OH<sup>-</sup> iyonları ile açıklanabilir. Giderme verimlerinin maksimum olduğu pH değerlerinde çıkış pH değeri, alüminyum elektrotu için pH 5,67 ve demir elektrotu için pH 6,5 olarak ölçülmüştür.

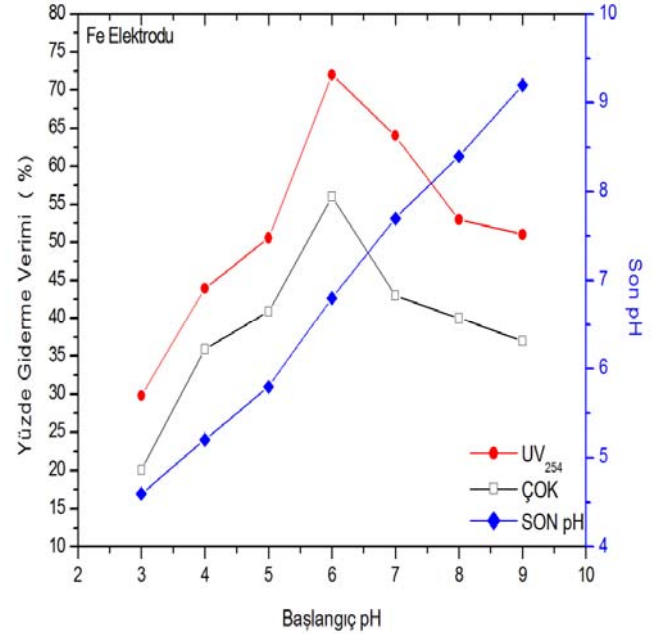


Şekil 2. Alüminyum elektrotunun kullanıldığı EC prosesinde başlangıç pH'nın ÇOK ve UV<sub>254</sub> giderme verimi üzerine etkisi.

### 3.2 Akım yoğunluğunun ve elektroliz süresinin etkisi

Akım yoğunluğu ve elektroliz süresi, EC prosesinde kirleticilerin gideriminde etkili olan önemli

parametrelerdendir. Sisteme uygulanan akım şiddetine bağlı olarak elektrotlardan çözünen (anot elektrotlar) metal miktarı arasında bir ilişki vardır. Akım yoğunluğu birim aktif elektrot yüzey alanına uygulanan akım miktarı (Amper veya mili Amper) olduğuna göre akım miktarının artması ile çözünen anot miktarının arttığı görülür (Faraday yasası). Özellikle su ve atıksu arıtımında oluşan kirleticilerin giderimi için yeterli miktarda akım yoğunluğunun sisteme verilmesi gereklidir. Bu da oluşan metal hidroksit türlerinin miktarı ile ilişkilidir. Ayrıca oluşan hidroksit miktarları açısından elektroliz süresi de elektrokoagülasyon prosesini etkilemektedir. Sonuç olarak EC prosesinde kirleticilerin gideriminde rol oynayan hidroksit türlerinin miktarı açısından akım yoğunluğu ve elektroliz süresi parametreleri önemlidir.



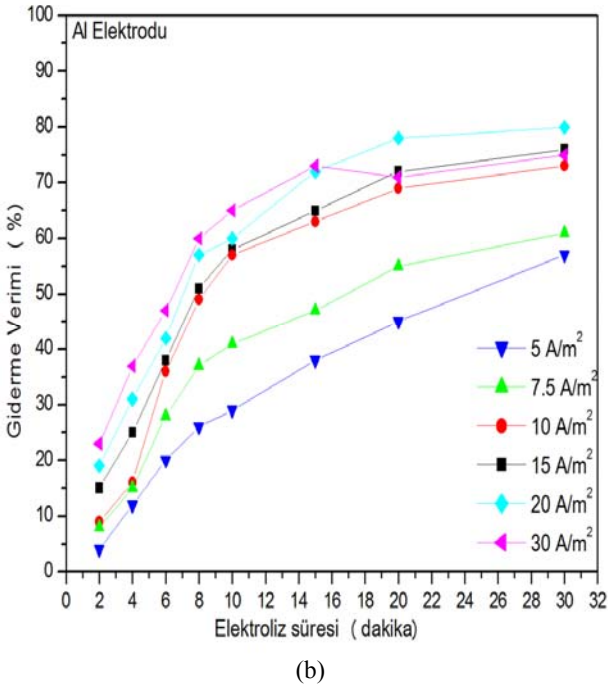
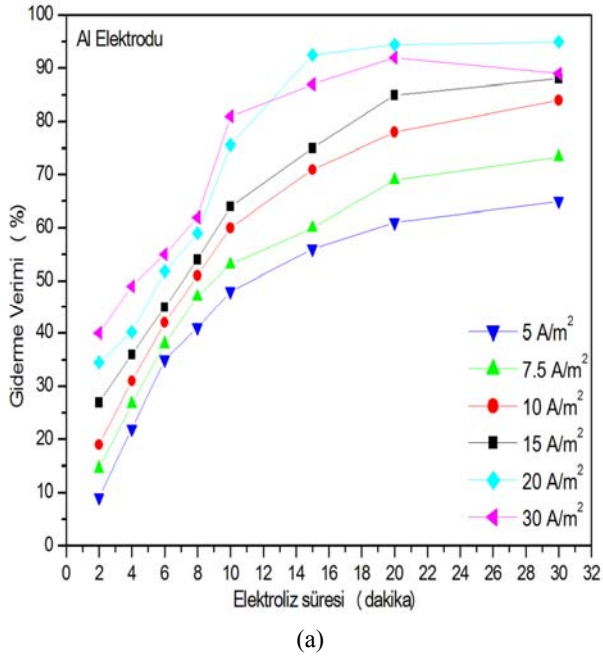
Şekil 3. Demir elektrotunun kullanıldığı EC prosesinde başlangıç pH'nın ÇOK ve UV<sub>254</sub> giderme verimi üzerine etkisi.

EC prosesinde DOM giderim verimi üzerine, akım yoğunluğunun ve elektroliz süresinin etkisini incelemek amacıyla akım yoğunluğu 5–50 A/m<sup>2</sup> ve elektroliz süresi 2–30 dakika aralığında değiştirilerek incelemiştir (Şekil 4).

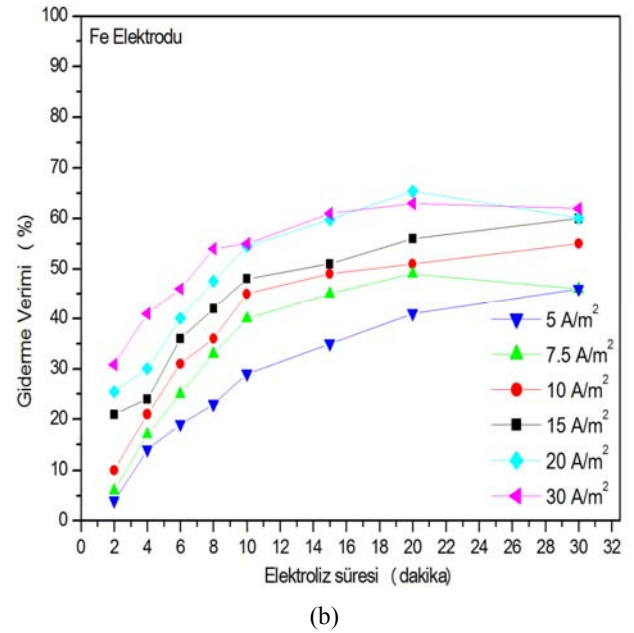
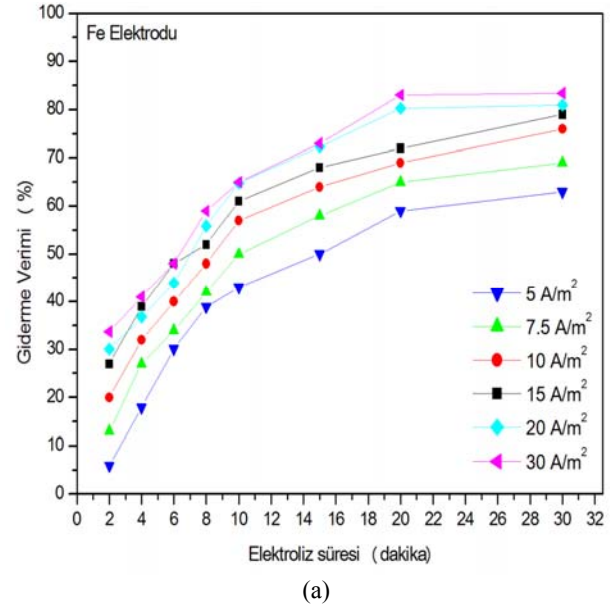
Alüminyum elektrotlarının kullanıldığı EC deneylerinde optimum pH 5 ve demir elektrotu için pH 6 olarak alınmış ve deneyler bu pH değerlerinde gerçekleştirilmiştir. Alüminyum elektrotuyla kirleticilerin gideriminde elde edilen en yüksek giderme verimleri 20 A/m<sup>2</sup> akım yoğunluğunda elde edilmiştir (Şekil 4). Şekil 4'te görüldüğü gibi 5–20 A/m<sup>2</sup> aralığında giderme verimi oldukça hızlı bir şekilde zamana bağlı olarak arttığı görülmektedir. Ancak 20 A/m<sup>2</sup> akım yoğunluğunda yüksek değerlerde ise giderme verimlerinde bir yükselme olmadığı aksine biraz düşüş olduğu görülmektedir. Bunun sebebi katotta oluşan H<sub>2</sub>'nin flotasyonu hızlandırması ve hızla oluşan Me(OH)<sub>3</sub> koagülanların kirletici ile buluşmamasıyla açıklanabilir [33].

Demir elektrotu için ise şekil 5'e bakıldığında, Alüminyum elektrotuna benzer bir yükseliş olmakta ve 20 A/m<sup>2</sup> akım yoğunluğunda en yüksek giderme verimlerine ulaşmaktadır. Bu değer üstündeki değerlerde giderme verimlerinde önemli bir değişim görülmemektedir.

Sonuç olarak elde edilen veriler değerlendirildiğinde, hem alüminyum hem de demir elektrotları için  $20 \text{ A/m}^2$  akım yoğunluğunun ve 20 dakika elektroliz süresinin kirleticilerin giderimi için gerekli olan  $\text{Me(OH)}_3$  floklarının oluşumu için yeterli olduğu görülmektedir.



**Şekil 4.** Alüminyum elektrotlarının kullanıldığı EC prosesinde akım yoğunluğunun ve elektroliz süresinin (a) UV<sub>254</sub> ve (b) ÇOK giderme verimi üzerine etkisi.



**Şekil 5.** Demir elektrotlarının kullanıldığı EC prosesinde akım yoğunluğunun ve elektroliz süresinin (a) UV<sub>254</sub> ve (b) ÇOK giderme verimi üzerine etkisi.

### 3.3. İşletme Maliyeti

İşletme maliyeti arıtma metodlarının seçilmesinde önemli bir parametre olarak karşımıza çıkmaktadır. İşletme maliyeti içinde elektrik, kimyasal malzeme, çamur taşıma ve uzaklaştırma gibi direk maliyetlerin yanı sıra, yatırım maliyetleri ile bunlara ait işçilik, bakım ve amortisman gibi dolaylı yatırım maliyetleri de yer almaktadır. Bu çalışmadaki maliyet hesaplarında ise, dolaylı maliyetler tam olarak bilinemediğinden sadece direk maliyetler göz önüne alınarak ekonomik bir değerlendirme yapılmıştır. EC prosesi için işletme maliyeti hesaplamalarında elektrot ve enerji tüketimi dikkate alınmıştır.

EC prosesinde anot elektrotların çözünerek çözeltiyeye iyonların geçişi Faraday kanunu ile ifade edilir;

$$C_{\text{elektrot-teorik}} = \frac{I * t_{EC} * M_w}{z * F * v} \quad (3)$$

Bu eşitlikte  $v$ : elektrolitik hücre hacmi,  $F$ : Faraday sabiti (96485,3 Cloumb/mol  $\approx$  96500 C/mol),  $z$ : anot metalin kimyasal ekvivalent değeri veya reaksiyonda transfer edilen elektron sayısı ( $z_{Al}$  ve  $z_{Fe} = +3$ ),  $M_w$ : anot metalinin molekül ağırlığı ( $M_{Al} = 27$  g/mol,  $M_{Fe} = 55$  g/mol),  $I$ : akım (Amper),  $t_{EC}$ : işletme süresi (sn) ve  $C_{\text{elektrot}}$ : EC reaktöründeki çözünen alüminyum veya demir metal elektrot miktarıdır (kg elektrot/m<sup>3</sup> arıtılan su miktarı). Enerji tüketimi ise aşağıdaki eşitlik ile hesaplanmıştır.

$$C_{\text{enerji}} = \frac{V * t_{EC} * I}{v} \quad (3)$$

Bu eşitlikte  $V$ : volt,  $v$ : elektrolitik hücre veya EC reaktörü hacmi,  $I$ : akım (Amper),  $t_{EC}$ : işletme süresi (sn) ve  $C_{\text{enerji}}$ : EC prosesindeki enerji tüketimidir (kWh/m<sup>3</sup>).

EC prosesinde işletme maliyeti esas itibarıyla elektrot ve enerji tüketiminden kaynaklanmaktadır. Burada birim enerji maliyeti=0.06 \$/kWh, birim elektrot maliyeti=1.8 \$/kg Al, 0.6 \$/kg Fe ve işletme maliyeti (\$/m<sup>3</sup>) olarak hesaplanmış olur. Enerji ve elektrot tüketimlerine göre aşağıdaki eşitlik yazılarak, işletme maliyeti hesaplanmıştır [36, 37];

Bu eşitlikte  $V$ : volt,  $v$ : elektrolitik hücre veya EC reaktörü hacmi,  $I$ : akım (Amper),  $t_{EC}$ : işletme süresi (sn) ve  $C_{\text{enerji}}$ : EC prosesindeki enerji tüketimidir (kWh/m<sup>3</sup>).

EC prosesinde işletme maliyeti esas itibarıyla elektrot ve enerji tüketiminden kaynaklanmaktadır. Burada birim enerji maliyeti=0.06 \$/kWh, birim elektrot maliyeti=1.8 \$/kg Al, 0.6 \$/kg Fe ve işletme maliyeti (\$/m<sup>3</sup>) olarak hesaplanmış olur. Enerji ve elektrot tüketimlerine göre aşağıdaki eşitlik yazılarak, işletme maliyeti hesaplanmıştır [36, 37];  
İşletme maliyeti = 0.06\*Cenerji + X\*Celektrot (4)

Çizelge 2'de 20 dakikalık elektroliz sonucu EC prosesinde alüminyum ve demir elektrotları için işletme maliyeti verilmiştir. Yapılan deneylerde akım yoğunluğunun ve elektroliz süresinin artmasıyla işletme maliyetinin de arttığı görülmektedir. Akım yoğunluğu 5-30 A/m<sup>2</sup> aralığında değiştiğinde, işletme maliyetin alüminyum elektrotu için 0,042-0,269 \$/m<sup>3</sup> ve demir elektrotu için 0,036-0,22 \$/m<sup>3</sup> olarak hesaplanmıştır. En yüksek giderme verimlerinin elde edildiği şartlarda ise işletme maliyeti alüminyum elektrotları için (pH:5, A.Y: 20 A/m<sup>2</sup>, elektroliz süresi: 20 dakika) 0.195 \$/m<sup>3</sup> olarak hesaplanırken, demir için (pH:6, A.Y: 20 A/m<sup>2</sup>, elektroliz süresi: 20 dakika) 0.159 \$/m<sup>3</sup> olarak hesaplanmıştır.

#### 4. Sonuçlar

Elektrokoagülasyon prosesiyle farklı metal elektrotlar (Al ve Fe) kullanılarak içme sularından organik madde gideriminin yapıldığı çalışmamızda, elektrokoagülasyon prosesi ile ÇOK ve UV<sub>254</sub> parametrelerinin gideriminde başarılı sonuçlar elde edilmiştir. ÇOK ve UV<sub>254</sub> absorbanının giderme verimleri üzerine başlangıç pH, akım yoğunluğu ve elektroliz süresinin etkili olduğu gözlemlenmiştir. Alüminyum elektrotlarının kullanıldığı elektrokoagülasyon prosesinde deneysel çalışmalar neticesinde optimum koşullar; pH 5, akım yoğunluğu 20 A/m<sup>2</sup> ve elektroliz süresi 20 dakika olarak, demir elektrotlarının kullanıldığı elektrokoagülasyon prosesinde ise optimum koşullar; pH 6, akım yoğunluğu 20 A/m<sup>2</sup> ve elektroliz süresi 20 dakika olarak belirlenmiştir.

Sonuçlar incelendiğinde organik madde giderme verimlerinde alüminyum elektrotlarının (%78 ÇOK, %94,5 UV<sub>254</sub>) kullanıldığı EC prosesinde demir elektrotlarına (%65,4 ÇOK, %80,3 UV<sub>254</sub>) göre daha yüksek giderme verimleri elde edilmiştir. Ayrıca demir elektrotlarının kullanıldığı uzun elektroliz sürelerinde Fe<sup>+2</sup> iyonlarının asidik ve nötral koşullarda sulu ortamda çözünmesiyle Fe<sup>+3</sup> e oksitlenip suda sarı renkte çökmesi zor demir hidroksit partikülleri oluşturması nedeniyle çözeltinin bulanıklığının arttığı gözlemlenmiştir. Yaptığımız çalışma, Özer'in (2008) yaptığı zenginleştirilmiş koagülasyon prosesiyle Sivas içme suyundan doğal organik madde giderimi (ÇOK %66,6, UV<sub>254</sub> %83,4) konusundaki çalışmasıyla karşılaştırıldığında [20], ÇOK ve UV<sub>254</sub> parametreleri açısından EC prosesiyle (ÇOK %80, UV<sub>254</sub> %95) her iki parametre içinde daha fazla giderme verimleri elde edilmiştir. Optimum koşullarda enerji ve elektrot tüketimi dikkate alınarak hesaplanan işletme maliyeti, alüminyum için 0.195 \$/m<sup>3</sup> ve demir için 0.159 \$/m<sup>3</sup> olarak hesaplanmıştır. Sonuçlar incelendiğinde işletme maliyeti açısından demir elektrotlarının kullanımı uygun iken ÇOK ve UV<sub>254</sub> giderme verimlerinin düşük olduğu görülmüştür. Sonuç olarak elektrokoagülasyon proselinin içme sularında doğal organik madde gideriminde etkili bir proses olduğu ortaya konulmuştur.

**Çizelge 2.** Alüminyum ve Demir elektrotlarının kullanıldığı EC prosesinde işletme maliyeti.

Alüminyum elektrot	Enerji maliyeti \$/m <sup>3</sup>	Elektrot maliyeti \$/m <sup>3</sup>	İşletme maliyeti \$/m <sup>3</sup>
Başlangıç pH			
3	0,093	0,086	0,179
4	0,083	0,086	0,169
5	0,109	0,086	0,195
6	0,128	0,086	0,214
7	0,148	0,086	0,234
7,89	0,177	0,086	0,263
9	0,195	0,086	0,281
Akım yoğunluğu (A/m <sup>2</sup> )			
5	0,020	0,022	0,042
7,5	0,033	0,033	0,066
10	0,052	0,044	0,096
15	0,084	0,066	0,150
20	0,109	0,086	0,195
30	0,160	0,109	0,269
Demir Elektrot			
Başlangıç pH			
3	0,077	0,057	0,134
4	0,084	0,057	0,141
5	0,097	0,057	0,154
6		0,057	0,172
7	0,120	0,057	0,177
7,89	0,146	0,057	0,203
9	0,176	0,057	0,233
Akım yoğunluğu (A/m <sup>2</sup> )			
5	0,021	0,015	0,036
7,5	0,030	0,022	0,052
10	0,047	0,030	0,077
15	0,076	0,045	0,121
20	0,102	0,057	0,159
30	0,146	0,074	0,22

- Tüm deneylerde işletme maliyeti hesaplanırken elektroliz süresi 20 dakika olarak alınmıştır.
- Elektrot tüketimi Faraday yasasına göre hesaplanmıştır.

## Kaynaklar

- Aiken, G. R., McKnight D. M., Wershaw R. L., and MacCarthy P., An introduction to humic substances in soil, sediment, and water, In: *Humic Substances in Soil, Sediment, and Water: Geochemistry, Isolation, and Characterization*, eds., G. R. Aiken, D. M. McKnight, R. L. Wershaw, ve P. MacCarthy, pp. 1-9, John Wiley & Sons, New York, NY, 1985.
- McKnight, D. M. and Aiken, G. R., Sources and Age of Aquatic Humus, In: *Aquatic Humic Substances: Ecology and Biogeochemistry*, eds., D. O. Hessen and L. J. Tranvik, *Ecological Studies*, 133, pp. 9-39, Springer-Verlag, Berlin, 1998.
- Singer, P.C., Humic substances as precursors for potentially harmful disinfection by-products, *Water Sci. Technol.* 9 (40), 25–30, 1999.
- El-Rehaili, M. A. Jr. and Weber, J.W., Correlation of humic substance THM formation potential and adsorption behavior to molecular weight distribution in raw and chemically treated waters, *Water Res.* 5 (21), 573–582, 1987.
- Aoaki, T., and Kawakami, K., Continuous flow method for determination of total THMS in drinking water with membrane separation, *Water Res.* 6 (23), 739–742, 1989.
- Eikebrokk, B., Coagulation-direct filtration of soft, low alkalinity humic waters, *Water Sci. Technol.* 9 (40), 55–62, 1999.
- Ratnaweera, E., Gjessing, O.E., Influence of physical-chemical characteristics of natural organic matter (NOM) on coagulation properties: an analysis of eight Norwegian water sources, *Water Sci. Technol.* 9 (40), 89–96, 1999.
- Teerman, I.P., and Jekel, M.R., Adsorption of humic substances onto  $\beta$ -FeOOH and its chemical regeneration, *Water Sci. Technol.* 9 (40), 199–206, 1999.
- Bukhari, A.A., Investigation of the electrocoagulation treatment process for the removal of total suspended solids and turbidity from municipal wastewater, *Bioresource Technol.*, Vol 99, 914-921, 2008.
- Chen, X., Chen, G. and Yue P.L., Separation of pollutants from restaurant wastewater by electrocoagulation, *Sep. Purif. Technol.*, 19, 65-76, 2000.
- Solak, M., Kılıç, M. and Yazıcı, H., Removal of suspended solids and turbidity from marble processing wastewaters by electrocoagulation: comparison of electrode materials and electrode connection systems, *J. Hazard. Mater.*, 172, 345-352, 2009.
- Shafari, A., Rezayee, M., Arami, M., and Nikazar, M., Removal of Mn<sup>2+</sup> ions from synthetic wastewater by electrocoagulation process, *Desalination*, 260, 23-28, 2010.
- Makalootian, M., Mansoorian, H.J., and Moosazadeh, M., Performance evaluation of electrocoagulation process using iron-for electrodes for removing hardness from drinking water, *Desalination*, 255, 67-71, 2010.
- Ghosh, D., Medhi, C.R., and Purkait, M.K., Treatment of fluoride containing drinking water by electrocoagulation using monopolar and bipolar electrode connections, *Chemosphere*, 73, 1393-1400, 2008.
- Zhao, H-Z., Yang, W., Zhu, J., and Ni, J-R., Defluoridation of drinking water by combined electrocoagulation: Effects of the molar ration of alkalinity and fluoride to Al(III), *Chemosphere*, 74, 1391-1395, 2009.
- Lakshmanan, D., Clifford, D.A., and Samanta, G., Comparative study of arsenic removal by iron using electrocoagulation and chemical coagulation, *Water Res.*, 44(19), 5641-5652, 2010.
- Kumar, N.S. and Goel, S., Factors influencing arsenic and nitrate removal from drinking water in a continuous flow electrocoagulation (EC) process, *J. Hazard. Mater.*, 173, 528-533, 2010.
- Yıldız, Y.Ş., Hümik Maddeler İçeren Atıksuların Elektrokoagülasyon Metoduyla Arıtımı, Doktora Tezi, Atatürk Üniversitesi, Erzurum, 2003.
- Qin, J.J., Ooa, M.H., Kekrea, K.A., Knopsb F., and Millerb, Peter., Impact of coagulation pH on enhanced removal of natural organic matter in treatment of reservoir water, *Sep. Purif. Technol.* 49 (3), 295-298, 2006.
- Özer, S., İçme suyunda zenginleştirilmiş koagülasyonla organik madde giderimi, Yüksek Lisans Tezi, Cumhuriyet Üniversitesi, Sivas, 2008.
- Singer, P.C., Control of Disinfection By-Product in Drinking water, *Journal of Environmental Engineering*, 120(4), 727-741, 1994.
- Mollah, M.Y.A., Schennach, R., Parga, J.R. and Cocke, D.L., Electrocoagulation (EC)-science and applications, *J. Hazard. Mater.*, 84, 29-41, 2001.
- Canizares, P., Carmona, M., Lobato, J., Martinez, F. and Rodrigo, M.A., Electrodissolution of aluminum electrodes in electrocoagulation processes, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 44, 4178-4185, 2005.
- Holt, P.K., Barton, G.W., Wark, M. and Mitchell, C.A., A quantitative comparison between chemical dosing and electrocoagulation, *Colloid Surface A*, 211, 233-248, 2002.
- Pouet, M.F. and Grasmick, A., Urban wastewater treatment by electrocoagulation and flotation, *Water Sci. Technol.*, 31, 275-283, 1995.
- Arslan, T., Kabdaşlı, I., Arslan-Alaton, İ., Ölmez, T., ve Tünay, O., Kompleks olarak bağlı metal içeren atıksuların elektrokoagülasyon prosesi ile arıtımı, *İ.T.Ü. Su Kirlenmesi Kontrolü Dergisi*. Cilt 18, Sayı 11, 42-52, 2008.
- İnsani Tüketim Amaçlı Sular Yönetmeliği, T.C. Sağlık Bakanlığı, Resmi Gazete, No: 25730, Ankara, 2005.
- Do, J.S. and Chen, M.L., Decolourization of dye-containing solutions by electrocoagulation, *J. App. Electroche.*, 24, 785-790, 1994.
- APHA, Standart Methods for examination of water and wastewater. 17th Ed.; American Public Health Association, American Water Works Associations, Water Environment Fedaration, Washington DC, U.S.A., 1992.
- Gurses, A., Yalcin, M. and Dogar, C., Electrocoagulation of some reactive dyes: a statistical investigation of some electrochemical variables, *Waste Manage.*, 22, 491–499, 2002.
- Bayramoglu, M., Can, O.T., Kobya, M., and Sozbir, M., Operating cost analysis of electrocoagulation of textile dye wastewater, *Sep. Purif. Technol.*, 37, 117-125, 2004.
- Daneshvar, N., Oladegaragoze, A., and Djafarzadeh, N., Decolorization of basic dye solutions by electrocoagulation: an investigation of the effect of operational parameters, *J. Hazard. Mater.*, 129, 116-122, 2006.
- Chen, G., Electrochemical technologies in wastewater treatment, *Sep. Purif. Technol.*, 38, 11-41, 2004.
- Muruganathan, M., Raju, G.B. and Prabhakar, S., Separation of pollutants from tannery effluents by electro flotation, *Sep. Purif. Technol.*, 40, 69-75, 2004.

35. Kobya, M., Hiz, H., Senturk, E., Aydiner, C. And Demirbas, E., Treatment of Potato Chips Manufacturing Wastewater By Electrocoagulation, Desalination, 190, 201-211, 2006.
36. Kobya, M., Demirbas, E., and Akyol, A., Electrochemical treatment and operating cost analysis of textile wastewater using sacrificial iron electrodes, Water Sci. Technol., 60, 2261-2270, 2009.
37. Kobya, M., Demirbas, E., Dedeli, A. and Sensoy, M.T., Treatment of rinse water from zincphosphate coating by batch and continuous electrocoagulation processes, J. Hazard. Mater., 17, 3326-334, 2010.