

Parasetamolün İçme Sularından Koagülasyonla Giderimi ve Sıcaklığın Etkisi

Mesut BAŞIBÜYÜK¹, Fatma Elçin ERKURT*¹

¹Çukurova Üniversitesi, Mühendislik Mimarlık Fakültesi, Çevre Mühendisliği Bölümü, Adana

Geliş tarihi: 02.06.2016

Kabul tarihi: 23.11.2016

Öz

Bu çalışmada, parasetamolün içme sularından koagülasyonla giderimi, dört farklı koagülant ($\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$, $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$) kullanılarak araştırılmıştır. Tüm koagülasyon deneyleri jar test analizleri kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Optimum pH ve koagülant dozlarının belirlenmesinden sonra sıcaklığın etkisinin incelenmesi amacıyla dört farklı sıcaklıkta (10, 15, 20 ve 25°C) koagülasyon çalışmaları yapılmıştır. Parasetamolün en yüksek giderim verimi (%46) $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile pH 11’de elde edilmiştir. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile optimum değerlerde 10°C’de parasetamol giderim verimi %22 iken aynı şartlarda sıcaklık 25°C’ye çıkarıldığında yüzde giderim verimi %53 olarak elde edilmiştir. Tüm koagülasyon deneylerinde sıcaklığın artmasıyla yüzde giderim veriminin arttığı tespit edilmiştir.

Anahtar Kelimeler: Parasetamol, Koagülasyon, İçme suyu

Removal of Paracetamol from Drinking Water by Coagulation and Effect of Temperature

Abstract

In this study, the removal of paracetamol by using four different coagulants ($\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$, $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$) from drinking water was investigated. All of the coagulation experiments were performed by using jar test. After the determination of optimum coagulant dosage and pH, coagulation experiments were performed at four different temperatures to determine the effect of temperature. The highest removal efficiency of paracetamol was obtained with $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ and at pH 11. While paracetamol removal efficiency was determined 22% with $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ under optimum conditions, at 10°C, it was removed with 53% efficiency at 25°C under same conditions. It was determined that the removal efficiency increased with increasing temperature for all coagulation experiments.

Keywords: Paracetamol, Coagulation, Drinking water

* Sorumlu yazar (Corresponding author): Fatma Elçin ERKURT, eerhurt@cu.edu.tr

1. GİRİŞ

Farmasötiklerin günümüzde insan kullanımı ve veteriner amaçlı kullanımının giderek yaygınlaşıp, artması neticesinde kirleticiler arasında önemli ve acil önlem alınması gereken gruplar arasına girmiştir. Farmasötik olarak aktif olan bileşikler (FAM), insan ve hayvanlarda görülebilen bir takım hastalıkların, düzensizliklerin, anormal fiziksel durumların veya bunların semptomlarının teşhisi, tedavisi, hafifletilmesi amacı ile üretilen bir veya birkaç etken madde karışımını ihtiva edebilen bileşiklerdir [1]. Farmasötik terimi geniş bir aralık sınıfında, değişken yapıda, fonksiyonda, davranışta ve aktivitede bileşikler kapsar [2].

Farmasötikler karaciğer, bağırsak, böbrek, akciğer gibi vücut dokularında bir takım enzimatik transformasyonlara uğrarlar. Vücut kendisine yabancı olan bu maddeleri gidermek ve detoksifikasyon amacıyla metabolize ederek tepki verir. Metabolizmanın önemli bir kısmı karaciğerde gerçekleşir. Her ilaç vücutta, etken maddenin bir kısım veya tüm farmasötik aktivitesini giderecek şekilde farklı seviyelerde daha polar metabolitlerine dönüştürülür. Farmasötiklerin sucul ortamlara geçişindeki en yaygın yol insani tüketim neticesinde vücut tarafından kanalizasyon sistemine atılması buradan atıksu arıtma tesislerine ve neticede yüzey sularına ulaşmasıdır. FAM'ların vücuttan atılması neticesinde bu kimyasal maddeler veya onların vücut içerisinde oluşan metabolit ürünleri idrar ve dışkı yoluyla su ortamına karışabilmektedir. FAM'lar bu yüzden toprakta, yüzey sularında, dip çamurlarında, evsel atıksularda, arıtma çamurlarında ve yer altı sularında tespit edilmektedir [3]. Farmasötiklerin vücut tarafından metabolize edilmesi farmasötik türüne göre değişiklik göstermektedir. Örneğin Karbamazepin %97 metabolize olurken bir antibiyotik olan amoksisilin %80-90 arasında vücuttan ana formda atılmaktadır [4]. Kullanıma hazır içme sularında FAM'ların mevcudiyetini bildiren sınırlı sayıda çalışma vardır. Bu durum içme sularında bulanabilecek FAM'ların çok düşük ng/L mertebelerinde olmasından dolayı oluşan analitik zorluklardan kaynaklanmaktadır. Bu

konsantrasyonlar çoğu zaman tespit limitlerinin altında kalabilmektedir. Musluk sularında FAM'ların bu kadar düşük konsantrasyonda bulunmaları, bu konuyu önemsiz bir duruma getireceği asla düşünülmemelidir. Sıradan bir insanın günde 2 litre su içtiği farz edilirse kalıntı şeklinde alınması mümkün olan ilaç miktarları tedavi amaçlı alınan miktarların çok altında kalmaktadır. Ancak bu kalıntı miktarlarının sürekli alınması ayrıca bir ilaç kokteyli şeklinde alınması da önem arz etmektedir. Burada etken maddelerin birbirleriyle sinerjistik etki sergilemesi söz konusu olabilmektedir. Ayrıca bu durum yetişkinlerin yanında bebek ve çocuklarda daha büyük önem arz etmektedir. FAM'ların içme sularında mevcudiyetinin en önemli nedeni su kaynağında bulunan FAM'ların geleneksel içme suyu arıtma proseslerine karşı dirençli olmasından kaynaklanmaktadır. Bu kimyasallar genellikle; yüksek kimyasal kararlılığa, düşük biyolojik indirgenmeye, suda yüksek oranda çözünme ve düşük sorpsiyon katsayılarına sahiptirler [5].

Koagülasyon içme sularında doğal organik maddelerin ve bulanıklılığın giderilmesinde etkili bir yöntem olmasından dolayı yaygın kullanılan bir işlemdir [6]. Literatürde yapılan bazı çalışmaların sonucuna göre içme sularında koagülasyon ile ilaçların giderim verimleri genellikle düşük kalmıştır [7,8,9]. Bu durum büyük olasılıkla ilaçların genellikle düşük hidrofobikliği ve flok içine adsorbe olacak mekanizmanın eksikliğinden kaynaklanmaktadır [7].

Çoğu analjezikler (ağrı kesiciler) anti-inflamatuar ve antipiretik özelliklere sahiptir. Pek çok ağrı kesici ilaç grupları pek çok ülkede çok miktarlarda kullanılıp aynı zamanda reçetesiz olarak satılmaktadır. Parasetamol ve asetilsalisilik asit dünyada en yaygın kullanılan ağrı kesicilerdir. Almanya'da 2001 yılında yıllık asetilsalisilik asit satışı 500 tonun üzerinde olarak hesaplanmıştır. Bunu yanında yine Almanya'da diğer ağrı kesicilerden ibuprofen veya diklofenağın yıllık satış miktarları yaklaşık olarak 75 ve 180 ton olarak hesaplanmıştır. Ternes 1998'de yaptığı çalışmasında Asetilsalisilik asit konsantrasyonunun

Almanya atıksu arıtma tesisi çıkış sularında yaklaşık olarak 0,22 µg/L olarak saptamıştır [10].

Parasetamol (asetaminofen), ağrı kesici ve ateş düşürücü etkiye sahip bir ilaç etken maddesidir. Günümüzde analjezik ve antipiretik amaçlı en sık kullanılan ilaçlardan biri olan parasetamol (asetaminofen; para-asetil-amino-fenol) ilk kez 1878 yılında sentezlenmiş, ve 1893 yılında tıbbi kullanıma girmiştir [11,12]. Parasetamol özellikle çocuk, yaşlı, gebe gibi özel gruplar başta olmak üzere tıbbi kullanımdaki en güvenilir analjezik/antipiretik ilaçlardan biri olarak kabul edilmektedir ve günümüzde tüm dünyada milyonlarca hasta tarafından kullanılmaktadır [13].

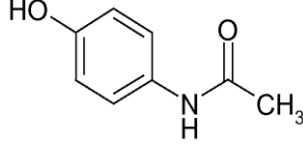
2. MATERYAL VE METOT

2.1. Materyal

2.1.1. Kullanılan İlaç ve Koagülantlar

Çalışmada yaygın olarak kullanılan bir ilaç etken maddesi olan parasetamol kullanılmıştır. Parasetamol (Asetaminofen) Sigma firmasından temin edilmiştir. Parasetamolün bazı özellikleri Çizelge 1’de verilmiştir.

Çizelge 1. Parasetamolün bazı özellikleri

PARASETAMOL	
Kimyasal yapısı	
Kimyasal formül	C ₈ H ₉ NO ₂
CAS No	103-90-2
Molekül Ağırlığı	151,2 g/mol
Log K _{ow}	0,46
pK _a	9,4
Diğer isimler	Acetaminophen, N-(4-Hydroxyphenyl) acetamide
Erime Noktası	170 °C(338°F)
Toksosite	LD50: 338 mg/kg (fare)
Yoğunluk	1,3 g/cm ³

Gerek endüstriyel atıksuların arıtılmasında ve gerekse içme suyu arıtımında yaygın olarak kullanılan koagülantlar seçilmiştir. Çalışmada kullanılan koagülantlar Merck firmasından temin edilmiştir. Kullanılan koagülantlar, kimyasal formülleri ve molekül ağırlıkları Çizelge 2’de verilmiştir.

Çizelge 2. Çalışmada kullanılan koagülantlar

Koagülant madde	Kimyasal formülü	Mol. ağırlığı (g/mol)
Alüminyum sülfat	Al ₂ (SO ₄) ₃ .18H ₂ O	666,42
Demir III Klorür	FeCl ₃ .6H ₂ O	270,33
Demir II Sülfat	FeSO ₄ .7H ₂ O	278,02
Magnezyum Klorür	MgCl ₂ .6H ₂ O	203,30

2.2. Metod

2.2.1. Jar Test Analizi

Jar test deneyleri, rpm ayarlı, 6’lı jar test düzeneğinde gerçekleştirilmiştir. Jar testi deneylerinde giderimi araştırılan ilaç etken maddesinin her bir koagülant için optimum çalışma şartları belirlenmiştir. Yapılan tüm jar testleri, 100 rpm’de 1 dk hızlı karıştırma, 30 rpm’de 30 dk yavaş karıştırma ve 30 dk çökeltme işlemleri sırasıyla gerçekleştirilmiştir. Çalışmanın birinci aşamasında kullanılan her koagülant için optimum pH değeri belirlenmiştir. Bu aşamada ilaç konsantrasyonu 5 mg/L ve koagülant konsantrasyonları 100 mg/L olarak sabit tutularak farklı pH değerlerinde (3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12) ilaç giderimi çalışılmıştır. Çalışmanın ikinci aşamasından her koagülant için ayrı ayrı belirlenmiş olan optimum pH değerlerinde optimum koagülant dozu belirleme deneyleri gerçekleştirilmiştir. Bu aşamada ilaç konsantrasyonu 5 mg/L’de sabit tutularak farklı koagülant dozları denenmiştir (10, 25, 50, 75, 100, 125, 150, 175 mg/L). Daha sonra 5 mg/L ilaç konsantrasyonu için optimum koagülant dozu ve optimum pH değerlerinde, ilaç giderimi üzerine sıcaklığın etkisini araştırmak için farklı sıcaklık

değerleri (10, 15, 20 ve 25°C) çalışılmıştır. Sıcaklık ayarlaması su ceketini ile sağlanmıştır. Çalışmada kullanılan jar test düzeneği Şekil 1'de gösterilmiştir.



Şekil 1. Jar test düzeneği

2.2.2. İlaç Etken Madde Ölçümleri

Çalışmada ilaç etken maddesinin (parasetamol) ölçümü UV detektöre sahip Perkin Elmer marka HPLC'de (yüksek basınçlı sıvı kromatografisi) yapılmıştır. Parasetamol için dalga boyu taraması yapılmış maksimum adsorbans veren dalga boyu seçilmiş ve literatüre uygunluğu kontrol edilmiştir.

2.2.3. Katı Faz Ayırma Metodu

HPLC'de analiz öncesi örneklerde katı faz ekstraksiyon teknikleri kullanılarak örnek hazırlama basamağı gerçekleştirilmektedir. Katı faz ekstraksiyonunu kullanmamızın nedeni örneklerin istenmeyen bileşiklerden temizlenmesi ve yoğunlaştırılmasıdır. Temizleme işlemi ile analizin yanlış sonuçlanmasına neden olabilecek, aranan maddenin tespit edilmesini engelleyebilecek veya analiz cihazının kirlenmesine neden olabilecek kirliliklerin uzaklaştırılması sağlamaktır. Numunelerdeki yoğunlaştırma işlemi ise atıksudaki ilaç konsantrasyonlarının HPLC/UV sisteminde doğrudan tespitini mümkün kılmayacak düşük seviyelerde olmasından kaynaklanmaktadır.

Katı faz ekstraksiyonu (solid phase extraction, SPE) yöntemi, sıvı-sıvı ekstraksiyon (liquid-liquid extraction, (LLE) yöntemine göre; daha kısa sürede uygulanabilmesi ve daha yüksek geri kazanım oranına sahip olmasından dolayı tercih edilmiştir. HPLC analizlerinden önce numuneler

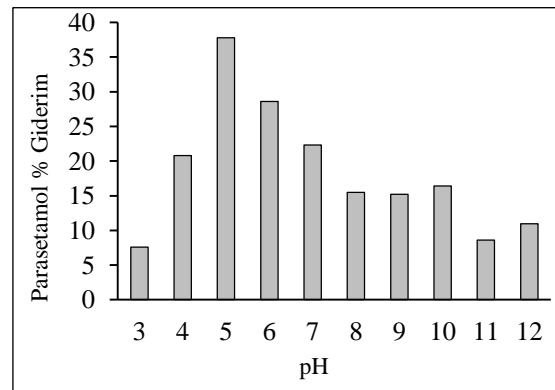
Oasis HLB 3 cc 60 mg SPE kartuşu kullanılarak ekstrakte edilmekte, böylece analizlerde girişim yapacak diğer organik bileşiklerden ve kolonu tıkayabilecek inorganik iyonlardan arındırılmaktadır. Numuneler 1 N hidroklorik asit (HCL) ile pH=2'ye ayarlanmıştır. Seçilen farmasötik bileşikler asidik olduklarından atıksu numunelerinin pH'ını düşürmek bu maddelerin ekstraksiyon kartuşu üzerinde daha fazla tutunmasını sağlayarak geri kazanımını artırır. Yapılan çalışmalarda asidik ilaçların katı faz ekstraksiyonunda en iyi geri kazanımı pH=2'de sağlanmıştır [14,15].

3. BULGULAR VE TARTIŞMA

3.1. FeSO₄.7H₂O Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminin İncelenmesi

3.1.1. Optimum pH'ın Belirlenmesi

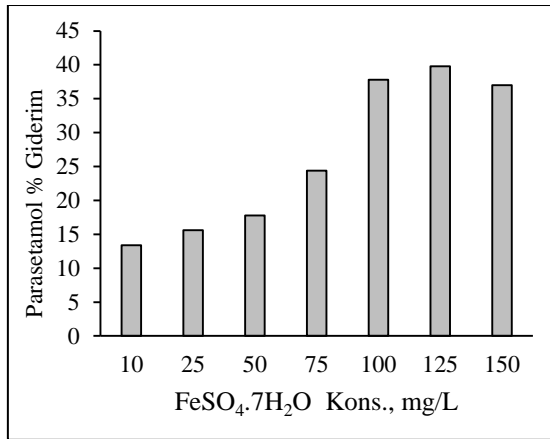
Koagülant olarak FeSO₄.7H₂O kullanılarak yapılan optimum pH belirleme çalışmasında 10 farklı pH değerinde (3, 4, 5, 6, 7, 8, 9,10,11,12) 100 mg/L koagülant dozu ve 5 mg/L ilaç konsantrasyonunda jar test deneyleri yapılmıştır. En yüksek parasetamol yüzde giderim oranı pH 5'de %37,8 olarak elde edilmiştir. Tüm pH değerlerinde elde edilen yüzde giderim oranları şekil 2'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 2. FeSO₄.7H₂O ile koagülasyonda farklı pH değerlerinde parasetamol yüzde giderim oranları

3.1.2. Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi

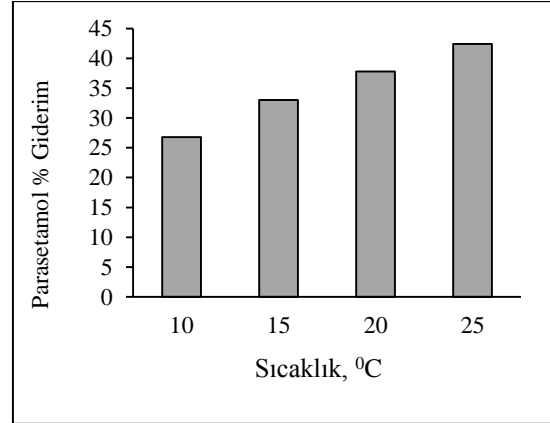
Belirlenen optimum pH değerinde (5), 5 mg/L ilaç konsantrasyonu ve 20°C'de, 7 farklı $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ koagülant dozu (10, 25, 50, 75, 100, 125, 150 mg/L) denenmiştir. Yapılan çalışma sonucunda optimum koagülant dozu olarak 100 mg/L seçilmiştir. 100 mg/L koagülant dozunda parasetamol yüzde giderim oranı % 37,8 olarak hesaplanmıştır. Yapılan çalışma sonucu elde edilen yüzde giderim değerleri Şekil 3'de verildiği gibidir.



Şekil.3. Farklı $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ koagülantı dozlarında parasetamol yüzde giderim oranları

3.1.3. $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminde Sıcaklığın Etkisi

$\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda parasetamol giderimine sıcaklığın etkisini araştırmak amacıyla 4 farklı sıcaklık değeri (10, 15, 20 ve 25°C) jar test düzeneğine uygulanarak incelenmiştir. Sıcaklığın artmasıyla giderim yüzdesinin arttığı gözlenmiştir. 4 farklı sıcaklık değerindeki yüzde giderimler Şekil 4'te grafik olarak gösterilmiştir.

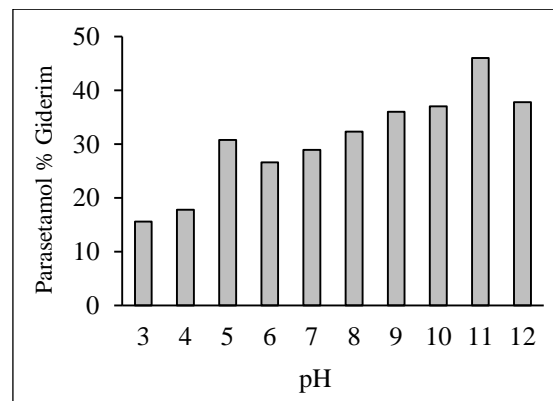


Şekil 4. $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki parasetamol yüzde giderim oranları

3.2. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminin İncelenmesi

3.2.1. Optimum pH'in Belirlenmesi

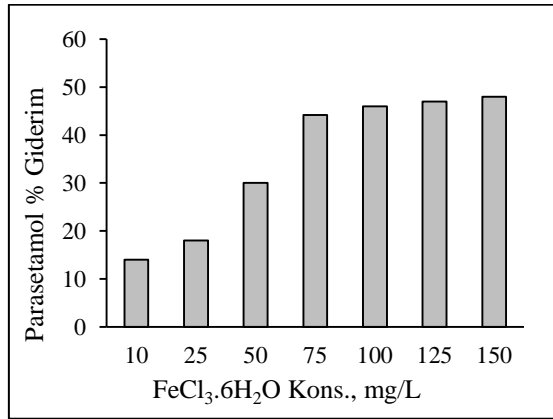
Koagülant olarak $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ kullanılarak yapılan optimum pH belirleme çalışmasında 10 farklı pH değerinde (3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12) 100 mg/L koagülant dozu ve 5 mg/L ilaç konsantrasyonunda jar test deneyleri yapılmıştır. En yüksek parasetamol yüzde giderim oranı pH 11'de %46 olarak elde edilmiştir. Tüm pH değerlerinde elde edilen yüzde giderim oranları Şekil 5'teki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 5. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülantı ile farklı pH değerlerinde parasetamol yüzde giderim oranları

3.2.2. Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi

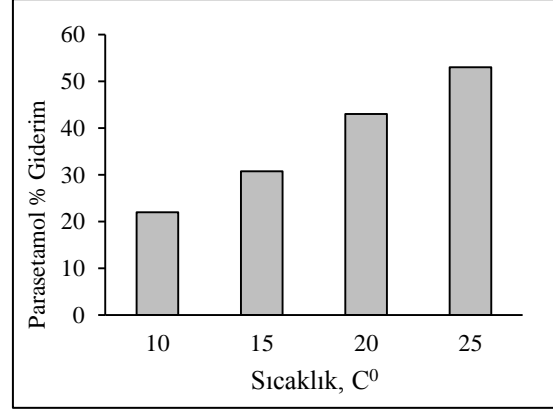
Belirlenen optimum pH değerinde (11), 5 mg/L ilaç konsantrasyonu ve 20°C’de, 7 farklı $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ koagülant dozu (10, 25, 50, 75, 100, 125, 150 mg/L) denenmiştir. Yapılan çalışma sonucunda optimum koagülant dozu olarak 100 mg/L seçilmiştir. 100 mg/L koagülant dozunda parasetamol yüzde giderim oranı %46 olarak hesaplanmıştır. Uygulanan koagülant dozları ve yüzde giderim oranları Şekil 6’daki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 6. Farklı $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ koagülantı dozlarında parasetamol yüzde giderim oranları

3.1.3. $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminde Sıcaklığın Etkisi

$FeCl_3 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonda parasetamol giderimine sıcaklığın etkisini araştırmak amacıyla 4 farklı sıcaklık değeri (10, 15, 20 ve 25°C) jar test düzeneğine uygulanarak incelenmiştir. Sıcaklığın artmasıyla giderim yüzdesinin arttığı gözlenmiştir. 4 farklı sıcaklık değerindeki yüzde giderimler Şekil 7’deki grafikte gösterilmiştir.

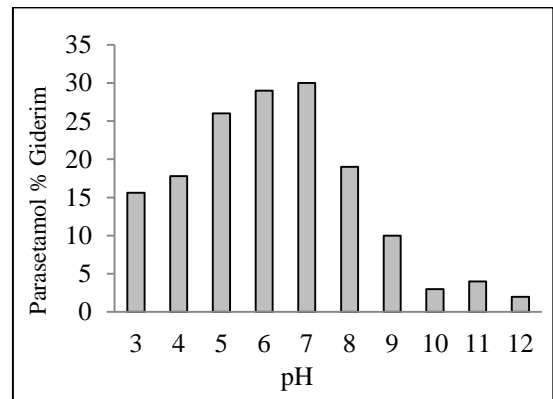


Şekil 7. $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki parasetamol yüzde giderim oranları

3.3. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminin İncelenmesi

3.3.1. Optimum pH’in Belirlenmesi

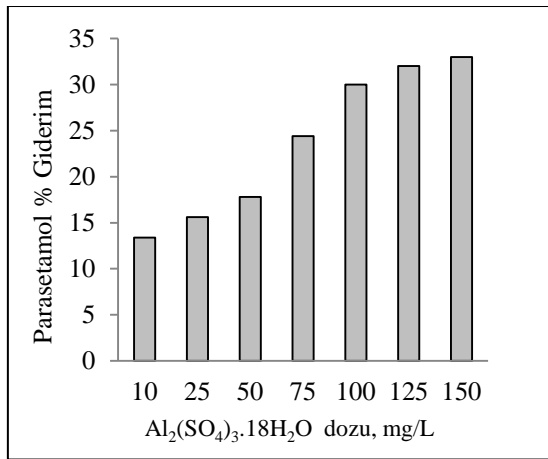
Koagülant olarak $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ kullanılarak yapılan optimum pH belirleme çalışmasında 20 C°’de, 100 mg/L koagülant dozu ve 5 mg/L ilaç konsantrasyonunda 10 farklı pH değeri (3, 4, 5, 6, 7, 8, 9,10,11,12) için jar test deneyleri yapılmıştır. En yüksek parasetamol yüzde giderim oranı pH 7’de %30 olarak elde edilmiştir. Tüm pH değerlerinde elde edilen yüzde giderim oranları Şekil 8’deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 8. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ koagülantı ile farklı pH değerlerinde parasetamol yüzde giderim oranları

3.3.2. Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi

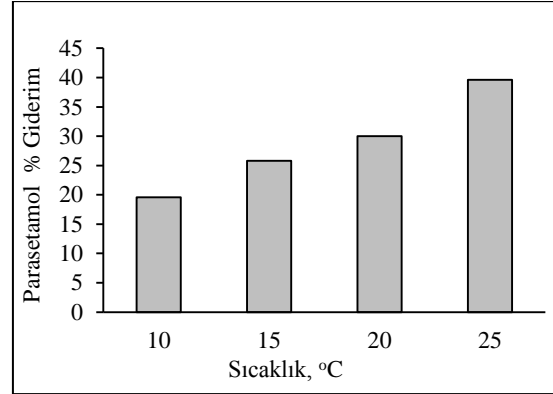
Belirlenen optimum pH değerinde (7), 5 mg/L ilaç konsantrasyonu ve 20°C'de, 7 farklı $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ koagülant dozu (10, 25, 50, 75, 100, 125, 150 mg/L) denenmiştir. Yapılan çalışma sonucunda optimum koagülant dozu olarak 100 mg/L seçilmiştir. 100 mg/L koagülant dozunda parasetamol yüzde giderim oranı %30 olarak hesaplanmıştır. Uygulanan koagülant dozları ve yüzde giderim oranları Şekil 9'daki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 9. Farklı $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ koagülantı dozlarında parasetamol yüzde giderim oranları

3.3.3. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminde Sıcaklığın Etkisi

$Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ ile koagülasyonda parasetamol giderimine sıcaklığın etkisini araştırmak amacıyla 4 farklı sıcaklık değeri (10, 15, 20 ve 25°C) jar test düzeneğine uygulanarak incelenmiştir. Sıcaklığın artmasıyla giderim yüzdesinin arttığı gözlenmiştir. 4 farklı sıcaklık değerindeki yüzde giderimler Şekil 10'daki grafikte gösterilmiştir.

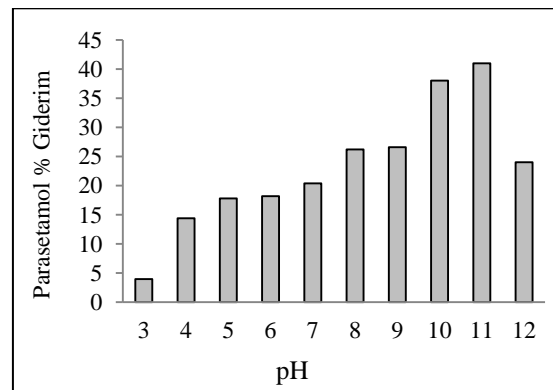


Şekil 10. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki parasetamol yüzde giderim oranları

3.4. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminin İncelenmesi

3.4.1. Optimum pH'in Belirlenmesi

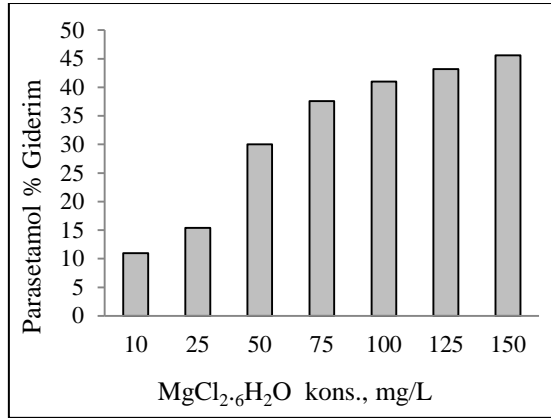
Koagülant olarak $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ kullanılarak yapılan optimum pH belirleme çalışmasında 20°C'de, 100 mg/L koagülant dozu ve 5 mg/L ilaç konsantrasyonunda 10 farklı pH değeri (3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12) için jar test deneyleri yapılmıştır. En yüksek parasetamol yüzde giderim oranı pH 11'de %41 olarak elde edilmiştir. Tüm pH değerlerinde elde edilen yüzde giderim oranları Şekil 11'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 11. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ koagülantı ile farklı pH değerlerinde parasetamol yüzde giderim oranları

3.4.2. Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi

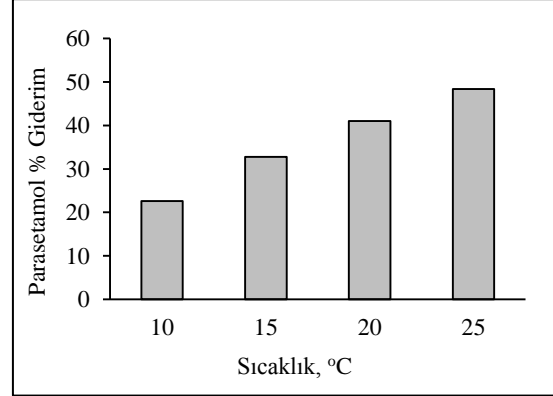
Belirlenen optimum pH değerinde (11), 5 mg/L ilaç konsantrasyonu ve 20°C'de, 7 farklı $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ koagülant dozu (10, 25, 50, 75, 100, 125, 150 mg/L) denenmiştir. Yapılan çalışma sonucunda optimum koagülant dozu olarak 100 mg/L seçilmiştir. 100 mg/L koagülant dozunda parasetamol yüzde giderim oranı %41 olarak hesaplanmıştır. Uygulanan koagülant dozları ve yüzde giderim oranları Şekil 12'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 12. Farklı $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ koagülantı dozlarında parasetamol yüzde giderim oranları

3.4.3. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminde Sıcaklığın Etkisi

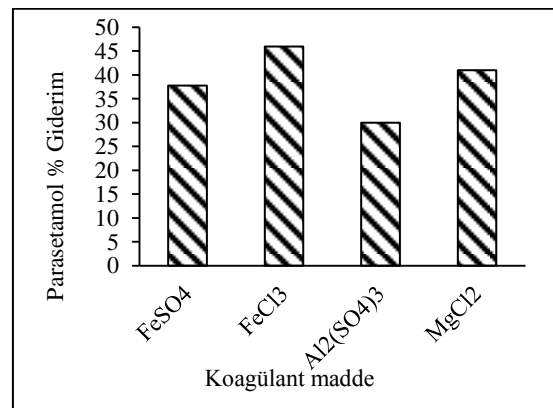
$MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonda parasetamol giderimine sıcaklığın etkisini araştırmak amacıyla 4 farklı sıcaklık değeri (10, 15, 20 ve 25°C) jar test düzeneğine uygulanarak incelenmiştir. Sıcaklığın artmasıyla giderim yüzdesinin arttığı gözlenmiştir. 4 farklı sıcaklık değerindeki yüzde giderimler Şekil 13'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 13. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki parasetamol yüzde giderim oranları

4. SONUÇ VE ÖNERİLER

Parasetamol ilaç etken maddesinin 4 farklı koagülant için optimum pH ve dozajları belirlenmiştir. Elde edilen sonuçların karşılaştırabilmesi amacıyla koagülant madde bazında değerlerin grafiksel gösterimi yapılmıştır. Parasetamol ilaç etken maddesinin 4 farklı koagülant için elde edilen optimum pH ve dozda giderim verimleri Şekil 14'deki grafikte gösterilmiştir. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ve $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonda optimum giderim oranına pH 11'de ulaşılmıştır. Parasetamolün farklı koagülantlar ile gideriminde en yüksek giderim verimi $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ ile %46 olarak elde edilmiştir.



Şekil 14. Parasetamolün 4 farklı koagülant madde ile optimum şartlarda yüzde giderim verim değerleri

Son yıllarda oktanol/su ayrıştırma katsayısı (K_{ow}) olarak adlandırılan organik kimyasalların çevresel ortamlardaki akıbetleri konusunda yapılan çalışmalarda anahtar parametre haline gelmiştir. K_{ow} değeri, bir maddenin iki fazındaki (n-oktanol ve su fazı) ayrışma katsayısını karakterize etmektedir [16]. Ayrıca, farmasötiklerin sudan giderilmesinde hidrofobik ve hidrofilik özellikleri önem taşımaktadır [7].

Parasetamol koagülasyon çalışmalarında dört farklı koagülant için dört farklı sıcaklık değerinde yüzde giderim verimleri incelenmiş olup sıcaklığın artmasıyla giderim verimlerinin arttığı görülmüştür. Xiao ve arkadaşları düşük sıcaklığın yumaklaşma oranına olumsuz etki ettiğini bildirmişlerdir [17]. Ayrıca Guan ve arkadaşları yaptığı çalışmada sıcaklığın artması ile bulanıklık gideriminin arttığını görmüşlerdir [18]. Bu çalışmada parasetamol giderim veriminin sıcaklık artışıyla artmasının, flok yapısının artmasından ve büyümesinden kaynaklandığı düşünülmektedir.

5. KAYNAKLAR

1. Bila, D.M., Dezotti, M., 2003. Pharmaceuticals Drugs in the Environment. *Quim. Nova*, 26:523-530.
2. Derksen, J.G.M., Rijs, G.B.J., Jongbloed, R.H., 2004. Diffuse Pollution of Surface Water by Pharmaceutical Products. *Water Sci. Technol.*, 49:213-221.
3. Halling-Sorensen, B., Nors Nielsen, S., Lanzky, P.F., Ingerslev, F., Lutzhoft, H.C., Jorgensen, S.E., 1998. Occurrence, Fate and Effects of Pharmaceutical Substances in the Environment a Review. *Chemosphere*, 36: 357-93.
4. Bound, J.P., Voulvoulis, N., 2004. Pharmaceuticals in The Aquatic Environment A Comparison of Risk Assessment Strategies. *Chemosphere*, 56: 1143-1155.
5. Zwiener, C., 2007. Occurrence and Analysis of Pharmaceuticals and Their Transformation Products in Drinking Water Treatment. *Anal Bioanal Chem.*, 387: 1159-1162.
6. Mattlainen, A., Lindqvist, N., Korhonen, S., Tuhkanen, T., 2002. Removal of Nom in The Different Stages of the Water Treatment Process. *Environment International*, 28(6): 457-465.
7. Westerhoff, P., Yoon, Y., Snyder, S. Wert, E., 2005. Fate of Endocrine-Disruptor, Pharmaceutical, and Personal Care Product Chemicals During Simulated Drinking Water Treatment Processes, *Environmental Science And Technology*, 39(17): 6649-6663.
8. Boyd, G.R., Reemtsma, H., Grimm, D.A., Mitra, S., 2003. Pharmaceuticals and Personal Care Products (Ppcps) in Surface and Treated Waters of Louisiana, Usa and Ontario, Canada. *Science of The Total Environment*, 311(13): 135-149.
9. Ternes, T.A., Meisenheimer, M., McDowell, D., Sacher, F., Brauch, H.J., Haist-Gulde, B., Preuss, G., Wilme, U. Zulei-Seibert, N., 2002. Removal of Pharmaceuticals During Drinking Water Treatment. *Environmental Science and Technology*, 36(17): 3855-3863.
10. Ternes, T.A., 1998. Occurrence of Drugs in German Sewage Treatment Plants and Rivers. *Water Research*, 32(11): 3245-3260
11. Morse, H.N., 1978. Ueber Eine Neue Darstellengsmethode der Acetylamidophenole. *Ber. Deutscher. Chem. Ges.* 11, 232-233.
12. Von, Mering, J., 1893. Beitrage Zur Kenntniss der Antipyretica. *Ter Monatsch.* 7, 577-587.
13. İlkaya, F., Yılmaz, M.Z., Karakus, O., 2013. Parasetamol ve Siklooksijenaz Enzim İnhibisyonu, *J. Exp. Clin. Med.*, 30: 9-14.
14. Ollers, S., Singer, H.P., Fassler, P., Muller, R.S., 2001. Simultaneous Quantification of Neutral and Acidic Pharmaceuticals and Pesticides at the Low-Ng/L Level in Surface and Waste Water. *J. Chromatogr. A* 911: 225-234.
15. Koutsouba, V., Heberer, T.H., Fuhrmann, B., Schmidt-Baumler, K., Tsipi, D., Hiskia, A., 2003. Determination of Polar Pharmaceuticals in Sewage Water of Greece by Gas Chromatography-Mass Spectrometry, *Chemosphere* 51, 69-75.
16. Kabak, H., Basibuyuk, M., 2012. Diklofenak ve Parasetamol'ün Aktif Çamur Tarafından Adsorbsiyonu, *Ekoloji* 21, 85, 41-48.
17. Xiao, F., Huang, J-C. H., Zhang, B., Cui, C.,

2009. Effects of Low Temperature on Coagulation Kinetics and Floc Surface Morphology Using Alum, *Desalination* 237: 201-213.
- 18.** Guan, D., Zhang, Z., Li, X., Lui, H., 2011. Effect of Ph and Temperature on Coagulation Efficiency in a North-China Water Treatment Plant, *Advanced Materials Research*, 243-249: 4835-4838.