

Sızıntı sularında çeşitli kirleticilerin elektrokoagülasyon yöntemiyle gideriminin incelenmesi

Investigation of various pollutants removal in leachate by electrocoagulation method

Şevket TULUN^{1*}, Melayib BİLGİN¹

¹Çevre Mühendisliği Bölümü, Mühendislik Fakültesi, Aksaray Üniversitesi, Aksaray, Türkiye.
sevkettulun@gmail.com, melayib@gmail.com

Geliş Tarihi/Received: 29.12.2016, Kabul Tarihi/Accepted: 18.04.2017
* Yazışılan yazar/Corresponding author

doi: 10.5505/pajes.2017.73693
Özel Sayı Makalesi/Special Issue Article

Öz

Düzenli depolama, atık bertarafı için en yaygın kullanılan yöntemdir. Depolama sahasındaki ayrışmaların ve yağışların süzülmesi sebebiyle sızıntı suları oluşmaktadır. Sızıntı suları tehlikeli ve zehirli kirleticiler ihtiva eden organik ve inorganik karışımlardan oluşur. Sızıntı sularının farklı özellikleri olduğundan tek bir arıtım yapılmasının yolu yoktur. Bu sebeple sızıntı sularının etkin bir şekilde arıtılabilmesi için çeşitli fiziksel, kimyasal ve biyolojik teknolojilerin bir arada kullanılması gerekir. Şu ana kadar elektrokimyasal süreçlerin, özellikle atık suların arıtılmasından yüksek verim elde edilebilmesi ve kolay uygulanabilir olması nedeniyle umut verici bir yöntem olduğu saptanmıştır. Bu çalışma da elektrokoagülasyon yöntemiyle sızıntı sularından toplam azot (TN), toplam organik karbon (TOK) ve kimyasal oksijen ihtiyacı (KOİ) giderilmesi araştırılmıştır. Çalışmada elektrot malzeme sayısı, akım yoğunluğu ve elektroliz süresinin giderilmedeki etkileri incelenmiştir. Sızıntı suyu örnekleri Aksaray düzenli depolama sahasından alınmıştır. Yapılan deneysel çalışmalarda KOİ için en uygun sürenin 30 dakika olduğu tespit edilmiştir. En fazla giderim verimi %83 ile 2 elektrotlu 5V elektrokoagülasyon çalışmalarının 30. dakikasında elde edilmiştir. Toplam organik karbon da ise en uygun reaksiyon süresi olarak 120 dakika kabul edilmiştir. İşletim süresinin artmasının toplam azot giderim verimine etkisinin az olduğu belirlenmiştir. Çalışma sonuçlarına (literatüre benzer) göre sızıntı sularının arıtımında elektrokoagülasyon yönteminin kullanılabileceği saptanmıştır.

Anahtar kelimeler: Sızıntı suyu, Elektrokoagülasyon, Düzenli depolama sahası

Abstract

Landfilling is the most widely used method for the waste treatment. As experienced in other solid-waste landfills, leachates are generated during the decomposition of the garbage buried and as a result of the percolation of rainfall through the landfill. Landfill leachates consist of a complex mixture of organic and inorganic components which can contain toxic and hazardous contaminants. Due to the wide variation in the characteristics of the leachates, there is no unique way for their treatment. Therefore, the effective treatment of landfill leachate usually requires a combination of various physical, chemical and biological technologies. Up to now, electrochemical process has been proved to be promising for wastewater treatment mainly due to its high effectiveness and easy operation. This study investigated the efficiency of electrocoagulation in removing total nitrogen (TN), chemical oxygen demand (COD), total organic carbon (TOC) from leachate. The paper studies the factors affecting the efficiency of removing these parameters of leachate, such as amount of electrode material, current density, electrolysis time. The sample of leachate was supplied from Aksaray Landfill Site in Aksaray. In experimental studies the optimal duration was determined to be 30 minutes for COD. The removal efficiencies of COD %83, with two electrodes for 5 V at 30 minutes. 120 minutes were accepted as the most suitable reaction time for total organic carbon. The increase in the operating time was found to have a lesser effect on the total nitrogen recovery efficiency. All the findings of the study revealed that treatment of leachate by electrochemical process can be used as a step of a joint treatment.

Keywords: Leachate, Electrocoagulation, Sanitary landfill

1 Giriş

Giderek artan nüfus, malzeme tüketimi ve gelişebilme adına yapılan çeşitli çalışmalar, belediye katı atıklarında da artış ile sonuçlanmıştır. Bu katı atıkların büyük bir kısmı düzenli depolama sahaslarına ulaşmaktadır [1]. Düzenli depolama şehirlerde üretilen katı atıkların yönetimi için en sık kullanılan yöntemlerden birisidir [2]. Bununla birlikte yağış suları, yüzey drenaj suları ve organik maddelerin parçalanması sonucu koyu gri ve kötü kokulu sızıntı suları oluşur. Sızıntı suları, yüksek miktarda parçalanması güç (inatçı) organik bileşiklere ve yüksek azot konsantrasyonlarına sahiptir. Bu sulara azot genellikle organik azot ve amonyak şeklinde bulunmaktadır. Suların amonyak ötrifikasyonun, yüzey sularında çözünmüş oksijenin tükenmesine su hayatı için de toksisiteye sebep olduğu bilinmektedir [3]. Sızıntı sularının kimyasal oksijen ihtiyacı (KOİ) ve biyolojik oksijen ihtiyacı (BOİ) yüksektir [4].

Oluşan sızıntı suyunun özellikleri depo sahasının konumuna, iklim özelliklerine, yerel halkın özelliklerine bağlıdır [5].

Depo sahasının yaşına bağlı olarak sızıntı suyunun özelliklerinin değişmesi sebebiyle uygulanan yöntemlerin verimliliğinin azalmasından ve maliyetlerin artmasından çeşitli sıkıntılar oluşmaktadır [6]. Genç sızıntı suları düşük pH değerleri ve uçucu yağ asitleri varlığından dolayı asidik eğilim gösterir [7]. Genel olarak, genç sızıntı suları yaşlı sızıntı sularından daha kirlidir. Örneğin, genç sızıntı sularında BO₅ değeri 81000 mg/L' ye kadar ulaşabilirken, yaşlı sızıntı suları için 42000 mg/L dir [8]. Yaşlı sızıntı suları düşük KOİ ve düşük bozunurluk (BO₅/KOİ<0.1) ile ilişkilendirilebilir [9].

Arıtılmamış sızıntı suları süzülürken hem toprağı hem de yer altı suyunu kirletebilir. Sızıntı sularının arıtımında en yaygın kullanılan arıtma sistemleri aerobik ve anaerobik yöntemlerdir. Bu sistemler, depolama sahasının yaşına bağlı olarak sızıntı suyundaki değişimlere rağmen yüksek verimli

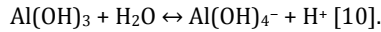
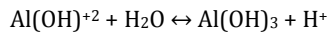
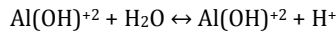
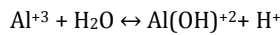
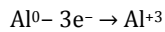
arıtımlar sağlamaktadır. Bununla birlikte biyolojik arıtma prosesleri parçalanması güç (inatçı) organik maddelerin giderilmesinde yetersiz kalmaktadır. Bu yüzden sızıntı sularının arıtımı için farklı arıtım süreçlerine ihtiyaç vardır. En yaygın olarak kullanılan süreçler ise fiziko-kimyasal süreçlerdir. Bu atıksuların arıtılmasında, ileri oksidasyon prosesleri, hava ile sıyırma, iyon değişimi ve membran prosesler kullanılabilir. Martin ve diğ., hava ile sıyırma, nanofiltrasyon ve ozonlama yöntemlerinin kimyasal oksijen ihtiyacı giderim verimlerini incelemişlerdir. Nanofiltrasyon ile yaklaşık %66 KOİ giderim verimleri elde etmişlerdir. Ozonlama ile biyolojik olarak parçalanabilen KOİ konsantrasyonlarının hızla arttığını belirlemişlerdir [18]. Diğer arıtım yöntemleri organik maddelerin ve azotların giderilmesi için kullanılır [10]. Pıhtılaştırma işlemi atık suların arıtılması için yaygın olarak uygulanan fiziko-kimyasal bir teknolojidir. Pıhtılaştırma işlemi, bir pıhtılaştırıcı (demir ve alum gibi) eklenmesi ile kolloidal parçacıkların stabilize edilmesini sağlayan bir prostestir. Bu işlemler biyolojik olarak parçalanabilen ya da biyolojik olarak parçalanması güç organik maddelerin giderilmesinde ön veya son arıtım olarak kullanılmaktadır [11].

Basit ekipman ve kolay kullanımı ile karakterize edilen bu teknik, uygun pH değerlerinde ve anot malzemesinin elektrolit oksidasyonu ile kirleticinin giderilmesi işlemidir [6]. Elektrokoagülasyon atık sulardan kirleticileri gidermek için kimyasal ve fiziksel mekanizmaların aynı anda çalışmalarını içeren karmaşık bir süreçtir. Bu süreç ardışık üç aşamada gerçekleşir;

- Elektrotlar da bulunan iyonların çözünmesi, pıhtılaştırıcıların oluşması,
- Partikül / kolloidal süspansiyonların bozulması
- Bozulan süspansiyonların kümelenmesi ve flokların oluşumu [12].

Alüminyum (Al) anot malzemesi olarak kullanıldığında, elektrokimyasal reaksiyonda su ve hidroksit iyonları ile birleşerek polihidroksitler ya da hidroksitler oluşturan Al^{+3} oluşturur [13].

Alüminyum metal elektrot olarak kullanıldığında meydana gelen reaksiyon aşağıdaki gibidir,



Reaktör tasarımı, elektrot malzemesi, akım yoğunluğu, pH, iletkenlik gibi çeşitli proses değişkenleri elektrokoagülasyon arıtım verimini etkileyebilir. Elektro hücrenin tasarımında ana hedef prostesten maksimum verim elde etmektir [14]. Düzenli depolama sahası sızıntı sularının arıtımında elektrokoagülasyon arıtımının başarılı bir şekilde uygulandığı çeşitli çalışmalar bulunmaktadır. Djelal ve diğ. sızıntı sularında Al elektrotlar kullanarak farklı akım yoğunluklarında elektrokoagülasyon arıtım çalışmaları yapmıştır. 23 ve 95 A/m² akım yoğunluklarında sırasıyla %33 ve %56 kimyasal oksijen ihtiyacı (KOİ) giderim verimlerini elde etmişlerdir. Akım yoğunluğu arttıkça, KOİ giderim veriminin arttığı sonucuna varmışlardır [15]. Top ve diğ. İstanbul İli sızıntı sularının arıtımında uygulanan elektrokoagülasyona akım şiddetinin ve

arıtım süresinin etkisini araştırmışlardır. KOİ, renk, fosfor giderimi için en uygun akım yoğunluğunun 15.9 mA /cm² ve en uygun arıtımın süresinin 30 dakika olduğunu tespit etmişlerdir [16].

Bu çalışma da Aksaray ilinin düzenli depolama sahasından alınan sızıntı suyuna elektrokoagülasyon prosesi uygulanmıştır. Çalışmada, elektrot sayısının, gerilimin ve işletim süresinin, kimyasal oksijen ihtiyacına, toplam organik karbon ve toplam azot parametrelerine etkileri belirlenmiştir.

2 Materyal ve yöntem

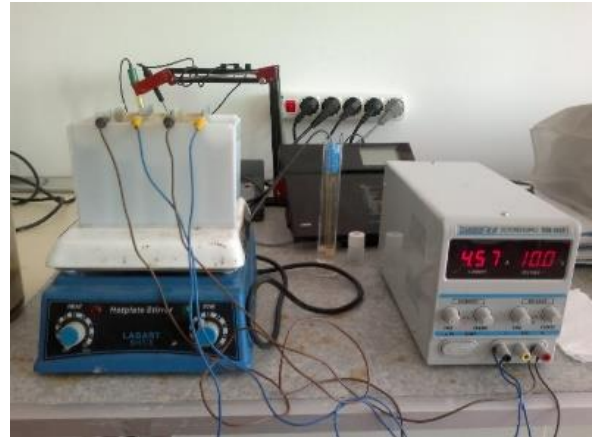
2.1 Ham madde ve deney düzeneği

Çalışmalarda kullanılan sızıntı suyu, 2006 yılında 13 yıllık kullanım ömrüne sahip olacak şekilde inşa edilen Aksaray Katı Atık Düzenli Depolama sahasından alınmıştır. Oluşan sızıntı suları toplanarak biriktirilmekte belirli zamanlarda depolama sahasının üzerine geri devir ettirilmektedir. Sızıntı suyu analiz edilmiş ve elde edilen sonuçlar Tablo 1' de verilmiştir.

Tablo 1: Sızıntı suyunun başlangıç değerleri.

Parametre	pH	Alkalinite (mg/L)	5 Günlük Biyokimyasal Oksijen İhtiyacı (BO ₅) (mg/L)	Kimyasal Oksijen İhtiyacı (KOİ) (mg/L)	Toplam Organik Karbon (TOK) (mg/L)	Toplam Azot (TN) (mg/L)
Değer	7.4	9520	11000	18000	4510.5	3366.5

Elektrokoagülasyon çalışmaları, 10x20x10 cm (en x boy x yükseklik) boyutlarında dikdörtgen şeklinde sert plastikten yapılan reaktörlerin içerisinde gerçekleştirilmiştir. Voltaj ve akım güç kaynağı (Zhaoxin RXN-305D) kullanılarak ayarlanmıştır. Reaktör içinde homojen bir karıştırma sağlanması için manyetik karıştırıcı (Labart, SHT 5) kullanılmıştır. Reaktör içerisinde eşit uzaklıklarda 2x10x10 cm (en x boy x yükseklik) boyutlarında 2 adet ve 4 adet alüminyum elektrotlar kullanılmıştır. Deney düzeneği Şekil 1' de gösterilmiştir



Şekil 1: Çalışmada kullanılan deney düzeneği.

2.2 Deneysel prosedür

Deneysel çalışmalar oda sıcaklığında 5 V ve 10 V ' luk elektrik potansiyel şartlarına ayarlanmıştır. Her bir voltajda birbirinden eşit uzaklıklarda yerleştirilen 2 ve 4 adet alüminyum

elektrotlar kullanılarak 2, 4, 8, 16, 30, 60 ve 120. dakikalarda örnekler alınarak pH (SM 4500 H⁺ -B), KOİ (SM 5220 D), Toplam Organik Karbon (TOK) ve Toplam Azot (TN) (SM 5310 B) giderimleri incelenmiştir [17].

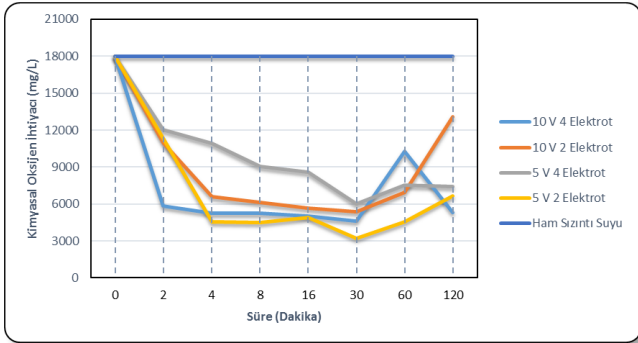
Alınan örneklerde KOİ, kapalı reflux-titrimetrik yöntemi yardımıyla tespit edilmiştir. Çalışmalarda kullanılan demir amonyum sülfat, gümüş sülfat, potasyum dikromat kimyasalları yüksek saflıkta olup Merck'den temin edilmiştir. Toplam organik karbon (TOK) ve toplam azot (TN) (Shimadzu, TOC-VCPN/TNM-1) cihaz yardımıyla ölçülmüştür.

Tüm çalışmalar oda sıcaklığında gerçekleştirilmiştir. Deneysel çalışmalar 3 tekrarlı olarak yapılmış ve sonuçlar bu değerlerin ortalaması alınarak verilmiştir.

3 Bulgular ve tartışmalar

3.1 Kimyasal oksijen ihtiyacı değişimleri

2006 yılında işleme alınan Aksaray düzenli depolama sahasından alınan sızıntı sularının elektrokoagülasyon çalışmalarında en yüksek kimyasal oksijen ihtiyacı giderimi 30. dakikada tespit edilmiştir. 10 V gerilim ile yapılan çalışmalarda ilk dakikalarda KOİ giderimi hızlı bir şekilde gerçekleşmiştir. 5 V gerilimlerde ise 7000 mg/L seviyelerine kadar düşürülmüştür. En fazla giderim yaklaşık %83 ile 5V gerilimli 2 plakalı elektrokoagülasyon çalışmalarında elde edilmiştir. Deneysel çalışmalar ile elde edilen sonuçlar Şekil 2' de verilmiştir.



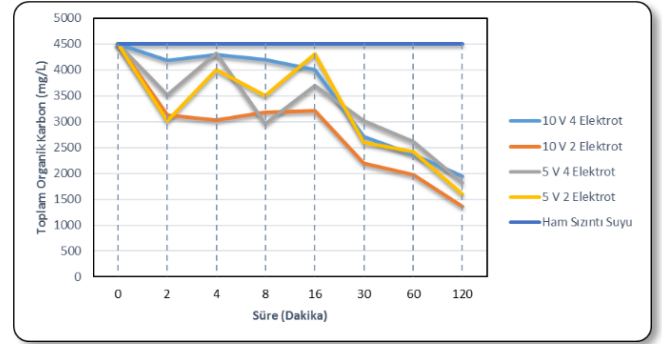
Şekil 2: Kimyasal oksijen ihtiyacı değişimleri.

5 V 2 elektrotlu elektrokoagülasyon çalışmalarında 30 dakikadan sonra KOİ miktarında artışlar gözlenmiştir. 30. dakikadan sonra, elektrokoagülasyon ile meydana gelen Al(OH)₃' in parçalanması nedeniyle KOİ miktarında artış gözlenmiştir.

3.2 Toplam organik karbon değişimleri

Ham atıksuyun toplam organik karbon miktarı, 4511 mg/L dir. Deneysel çalışmalarda 16. dakikadan sonra TOK miktarları azalmaya başlamıştır. 10 V luk 2 elektrotlu çalışmalarda 2-16 dakikalar arasında toplam organik maddede belirgin bir azalma görülmemesine rağmen, 120. dakika sonunda TOK 1364 mg/L seviyelerine inmiştir. Deneysel çalışmalar ile ilgili grafiksel gösterim Şekil 3'te verilmiştir.

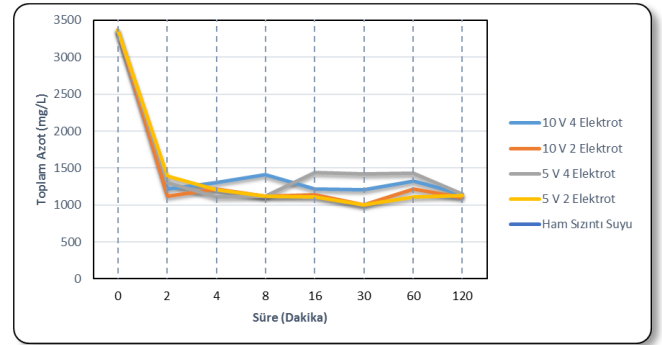
10 V 4 elektrot, 10 V 2 elektrot, 5 V 4 elektrot ve 5 V 2 elektrotlu deneysel çalışmalarda toplam organik madde giderim verimleri sırasıyla %57, %69, %60 ve %64 olarak bulunmuştur. 16. dakikaya kadar giderim verimlerinde belirgin bir değişim gözlenmemişken 16. dakikadan sonraki işletim sürelerinde giderim verimlerinde artış belirlenmiştir.



Şekil 3: Toplam organik karbon değişimleri.

3.3 Toplam azot değişimleri

Tüm deneysel koşullarda 2. dakikaya kadar hızlı bir giderim verimi elde edilmiştir. Daha sonraki sürelerde azalmalar ve artmalar gerçekleşmiştir. Ham atığın toplam azot değeri, 3367 mg/L olarak belirlenmiştir. Toplam azot değişimleri Şekil 4'te gösterilmiştir.



Şekil 4: Toplam azot değişimleri.

En düşük azot konsantrasyonu 10 V 2 elektrotlu elektrokoagülasyon çalışmalarında 1000 mg/L olarak 30. dakikada elde edilmiştir. En az toplam azot giderimi 5 V 4 elektrotlu elektrokoagülasyon deneyinin 16. dakikasında elde edilmiştir.

4 Sonuç

Bu çalışmada Aksaray İli Düzenli Depolama sahasından alınan sızıntı sularına elektrokoagülasyon yönteminin uygulanabileceğini göstermiştir. Arıtım süresince KOİ, TOK, TN parametreleri önemli ölçüde azalmıştır. Kısa arıtım sürelerinin de kirleticilerin azalma eğiliminde olduğu belirlenmiştir. KOİ 30. dakikaya kadar kademeli olarak azalmıştır. 30. dakikadan sonra KOİ miktarı artma eğilimi göstermiştir. En yüksek KOİ giderim verimi %83 ile 5 V 2 elektrotlu elektrokoagülasyon çalışmasında elde edilmiştir. En yüksek toplam organik karbon giderimi %74 ile 5 V 4 elektrotlu çalışmanın 120. dakikasında elde edilmiştir. Toplam organik madde giderimi en fazla 120. dakikalarda olmuştur. 2 dakikalık bir işletme süresinin, toplam azot miktarının azaltılması için yeterli olduğu belirlenmiştir. En az toplam azot giderimi 5 V 4 elektrotlu elektrokoagülasyon deneyinin 16. dakikasında elde edilmiştir. İncelenen 3 parametre için 5 V ' luk voltajlarda uygulanan elektrokoagülasyon çalışmalarında yüksek giderim verimleri elde edilmiştir. Ham sızıntı suyunun pH değeri 7.4 dür. Zamanla OH⁻ iyonları oluşmasından dolayı sızıntı suyunun pH değeri

9,15' e çıkararak bazik özellik kazanmıştır. Sızıntı suyu karmaşık matris olduğu için tek bir arıtım yöntemi uygulamak mümkün değildir. Ancak bu çalışma sonuçlarına göre elektrokoagülasyon yönteminin kullanılmasıyla hem yüksek giderim verimlerinin elde edilebileceği hem de arıtım sürelerinin azalacağı görülmüştür. Söz konusu sistemlerin sızıntı suyu arıtım proseslerinin sayısında/yükünde azalma olacağı muhakkaktır.

5 Kaynaklar

- [1] Bashir MJK, Isa MH, Kuttu SRM, Awang ZB, Aziz HA, Mohajeri S, Farooqi IH. "Landfill leachate treatment by electrochemical oxidation". *Waste Management*, 29(9), 2534-2541, 2009.
- [2] Moraes PB, Bertazzoli R. "Electrodegradation of landfill leachate in a flow electrochemical reactor". *Chemosphere*, 58(1), 41-46, 2005.
- [3] Martins CL, Fernandes H, Costa RHR. "Landfill leachate treatment as measured by nitrogen transformations in stabilization ponds". *Bioresource Technology*, 147, 562-568, 2013.
- [4] Xiao S, Peng J, Song Y, Zhang D, Liu R, Zeng P. "Degradation of biologically treated landfill leachate by using electrochemical process combined with UV irradiation". *Separation and Purification Technology*, 117, 24-29, 2013.
- [5] Tsaf CT, Lin ST, Shue YC, Su PL. "Electrolysis of soluble organic matter in leachate from landfills". *Water Research*, 31(12), 3073-3081, 1997.
- [6] İlhan F, Kurt U, Apaydin O, Gonullu MT. "Treatment of leachate by electrocoagulation using aluminum and iron electrodes". *Journal of Hazardous Materials*, 154(1-3), 381-389, 2008.
- [7] Aziz HA, Alias S, Adlan MN, Asaari FAH, Zahari MSM. "Colour removal from landfill leachate by coagulation and flocculation processes". *Bioresource Technology*, 98(1), 218-220, 2007.
- [8] Tatsi AA, Zouboulis AI, Matis KA, Samaras P. "Coagulation-flocculation pretreatment of sanitary landfill leachates". *Chemosphere*, 53(7), 737-744, 2003.
- [9] Rivas FJ, Beltran F, Carvalho F, Acedo B, Gimento O. "Stabilized leachate: sequential coagulation-flocculation + chemical oxidation process". *Journal of Hazardous Materials*, 116(1-2), 95-102, 2004.
- [10] Veli S, Öztürk T, Dimoglo A. "Treatment of municipal solid wastes leachate by means of chemical- and electro-coagulation". *Separation and Purification Technology*, 61(1), 82-88, 2008.
- [11] Fanga F, Abbasa A A, Chena Y-P, Liua Z-P, Gaoa X, Guoa J S. "Anaerobic/aerobic/coagulation treatment of leachate from a municipal solid wastes incineration plant". *Environmental Technology*, 33(8), 927-935, 2012.
- [12] Bukhari AA. "Investigation of the electro-coagulation treatment process for the removal of total suspended solids and turbidity from municipal wastewater". *Bioresource Technology*, 99(5), 914-921, 2009.
- [13] Li X, Song J, Guo J, Wang Z, Feng Q. "Landfill leachate treatment using electro coagulation". *Procedia Environmental Sciences*, 10, 1159-1164, 2011.
- [14] Fernandes A, Pacheco MJ, Ciriaco L, Lopes. A. "Review on the electrochemical processes for the treatment of sanitary landfill leachates: Present and future". *Applied Catalysis B: Environmental*, 176-177, 183-200, 2015.
- [15] Djelal H, Lelievre Y, Ricordel C. "Combination of Electro-coagulation and biological treatment by bioaugmentation for landfill leachate". *Desalination and Water Treatment*, 54(54), 2986-2993, 2015.
- [16] Top S, Sekman E, Hoşver S, Bilgili MS. "Characterization and electrocoagulative treatment of nanofiltration concentrate of a full-scale landfill leachate treatment plant". *Desalination*, 268(1-3), 158-162, 2011.
- [17] APHA, AWWA, WEF, *Standart methods For the Examination of Water and Waste Water*, 20th Ed. (Clesceri, L.S., Greenberg, A.E., Eaton, A.D. Ed.), Washington DC, 1999.
- [18] Kargi F, Pamukoglu M.Y. "Aerobic biological treatment of pre-treated landfill leachate by fed-batch operation". *Enzyme and Microbial Technology*, 33, 588-595, 2003.