

İÇME SULARINDAN ELEKTROKOAGÜLASYON VE KİMYASAL KOAGÜLASYON İLE BULANIKLIĞIN GİDERİMİ

Fuat ÖZYONAR, Bünyamin KARAGÖZOĞLU

Cumhuriyet Üniversitesi, Çevre Mühendisliği Bölümü, TR-58140 Sivas-Türkiye
fozyonar@cumhuriyet.edu.tr, bkaragoz@cumhuriyet.edu.tr

(Geliş/Received: 27.01.2011; Kabul/Accepted: 31.10.2011)

ÖZET

Bu çalışmada, elektrokoagülasyon (EC) ve kimyasal koagülasyon (CC) prosesi ile içme suyundan bulanıklık giderimi araştırılmıştır. Arıtma verimliliğinin ölçülmesinde bulanıklık giderme verimleri dikkate alınmıştır. Demir ve alüminyum elektrotların kullanıldığı EC prosesinde elektrotlar monopolar paralel bağlanarak, bulanıklık giderimi üzerine; elektrot türü, başlangıç pH'ı, akım yoğunluğu ve elektroliz süresinin etkisi araştırılmıştır. Her iki elektrot materyali için optimum işletme koşulları başlangıç pH 7,9, akım yoğunluğu 10 A/m² ve elektroliz süresi 3 dakika olarak bulunmuştur. Bu koşullarda, bulanıklık giderme verimleri ve işletme maliyetleri alüminyum ve demir elektrotları için sırasıyla % 99, % 96, 0,0234 \$/m³ ve 0,0247 \$/m³'tür. CC prosesinde ise koagülan madde türü, başlangıç pH ve koagülan dozajı incelenmiştir. Ayrıca proseslerin doğrudan maliyetleri hesaplanarak karşılaştırılmıştır. Üç farklı türde koagülan maddenin (Al₂(SO₄)₃.18H₂O, FeSO₄.7H₂O, FeCl₃.6H₂O) kullanıldığı koagülasyon prosesinde optimum koşullar tüm koagülan maddeler için başlangıç pH 7,9 ve koagülan dozu 20 mgMe⁺/L olarak bulunmuştur. Bu koşullardaki bulanıklık giderme verimleri ve işletme maliyetleri sırasıyla; %94,5, %93,9, %95,3 ve 0,0987 \$/m³, 0,0397 \$/m³, 0,0328 \$/m³ olarak hesaplanmıştır. Ayrıca EC ve CC prosesinden sonra içme suyu örneklerine filtrasyon işlemi uygulanarak proseslerin optimum koşullardaki Filtrelenmeleri (F) incelenmiştir. Sonuç olarak, EC prosesinin, CC prosesine göre daha yüksek bulanıklık giderme verimine sahip olduğu ve daha ekonomik bir proses olduğu belirlenmiştir.

Anahtar Kelimeler: Elektrokoagülasyon, içme suları, bulanıklık giderimi, işletme maliyeti

REMOVAL OF TURBIDITY FROM DRINKING WATER BY ELECTROCOAGULATION AND CHEMICAL COAGULATION

ABSTRACT

In this study, the removal of turbidity from drinking water by electrocoagulation (EC) and chemical coagulation (CC) processes was investigated. Turbidity removal efficiencies to measure of the treatment removal were taken into consideration. Two electrode materials aluminum and iron were used in EC process were connected as monopolar parallel; the effects of the type of electrode, initial pH, current density and electrolysis time on the removal of turbidity were investigated. The optimum operational conditions for each of electrodes materials were found to be pH 7.9, current density 10 A/m² and electrolysis time 3 min. In these conditions; turbidity removal efficiencies and operational costs were 99 %, 96 % and 0.0234 \$/m³, 0.0247 \$/m³ respectively. Type of coagulant, initial pH and coagulant dosage were investigated in CC process. Also, in both of EC and CC processes operational costs were calculated and compared. Three different coagulants (Al₂(SO₄)₃.18H₂O, FeSO₄.7H₂O, FeCl₃.6H₂O) which were respectively used in coagulation process; optimum operational conditions were found to be pH 7.9 and 20 mgMe⁺/L. For each of coagulants turbidity removal efficiencies and operational costs were 94.5 %, 93.9 %, 95.3 % and 0.0987 \$/m³, 0.0397 \$/m³, 0.0328 \$/m³, respectively. Also, in the optimum conditions of processes; filtration was applied to drinking water samples and filtrations of process exits were investigated. As a result, EC process is more effective in turbidity removal efficiency and operational cost than CC process.

Keywords: Electrocoagulation, drinking water, turbidity removal, operational cost

1. GİRİŞ (INTRODUCTION)

Bulanıklık, su ve atıksu içerisinde ışığın saçılma ve absorbe olmasına neden olan önemli bir parametredir. Genellikle bulanıklığa çözünmüş, askıda ve kolloidal maddeler neden olurlar. Su içerisinde en fazla bulanıklığı kolloidal tanecikler meydana getirir. Bu taneciklerin yüzey alanları geniş, çapları 10^{-4} ile 10^{-6} mm arasında olup negatif bir yüke sahiptirler [1]. Aynı elektrik yüküne sahip tanecikler birbirlerini ittikleri için bu taneciklerde birbirlerini iter ve birleşip gravite etkisiyle çökebilir hale gelmezler. Bu nedenle kolloidal maddeleri içeren suların berraklaştırılması için suya pozitif yüklü koagulanlar eklenerek, kendi ağırlığı ile çökebilir hale getirilir. Suyun bulanıklık derecesi, içerdiği askıdaki madde miktarı, cinsleri, şekilleri, incelik derecesi ve absorbe kabiliyetlerine göre değişir [2, 3]. Bulanıklığı yüksek olan atıksuların alıcı ortamlara deşarj edilmesi, bu ortamlarda suyun ışığı geçirme kapasitesini düşürerek suyun alt tabakalarında yaşayan canlıları olumsuz yönde etkilemesine sebep olmaktadır. Ülkemizde, bulanıklık atıksular açısından limitleyici bir deşarj parametresi olarak görülmezken, içme suyu açısından değerlendirildiğinde Sağlık Bakanlığı İnsani Tüketim Amaçlı Sular Hakkındaki Yönetmeliğine ve TS 266 içme suyu standardına göre içilebilir bir suyun bulanıklığı 5 NTU'yu geçmemesi gerekmektedir. Ayrıca ABD Çevre Koruma Ajansı (EPA) ve Avrupa Birliği'ne (EU) göre ise bu değer 1 NTU olarak değerlendirilmektedir. Dolayısıyla içme suları açısından, özellikle su temininde ve arıtımında önemli bir parametre olarak karşımıza çıkmaktadır. Ayrıca filtrasyon ünitelerinin verimli bir şekilde çalışması için bulanıklığa neden olan kolloidal taneciklerin uygun bir arıtmayla giderilmesi gerekmektedir. Bulanıklığı yüksek olan suyun arıtılmadan ya da verimli bir arıtma yöntemiyle bulanıklığı giderilmeden filtreleme verilmesi filtrasyon işleminin güçleşmesine ve maliyetin artmasına sebebiyet verir.

Genellikle su ve atıksulardan bulanıklığın giderilmesinde fiziko-kimyasal yöntemler kullanılmaktadır. Su arıtımında kimyasal koagülasyon (CC) ve flokülasyon yaygın olarak kullanılan fiziko-kimyasal bir prosestir. Bu amaçlarda suda bulanıklık gidermek için çeşitli koagülan maddeler kullanılmaktadır [4, 5]. Su ve atıksuların kimyasal koagülasyon ve flokülasyon prosesleri ile arıtımında ortaya çıkan en önemli dezavantaj yüksek miktarda çamur oluşumu, kimyasal madde harcanımı, suyun elektriksel iletkenliğinin ve toplam çözünmüş madde miktarının artmasıdır. 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 prosesin sağladığı avantajlardır. EC prosesi ile çeşitli türde atıksuların ve içme sularının arıtılması çalışmalarında kirleticilerde yüksek giderme verimleri elde edilmiştir. Örneğin; evsel atıksulardan bulanıklık giderimi [6], restourant atıksularının arıtımı [7], mermer sanayi atıksularından bulanıklık giderimi [8], içme sularından Mn^{2+} giderimi [9], sertlik giderimi [10], florurlu suların arıtımı [11, 12], arsenik ve nitrat giderimi [13, 14] üzerine yapılan çalışmalarda araştırmacılar tarafından başarılı sonuçlar elde edilmiştir. Konuyla ilgili literatür araştırılması yapıldığında EC prosesiyle içme sularından bulanıklığın giderilmesi üzerine iki çalışmaya rastlanılmıştır [14, 15]. Bu çalışmalarda tam olarak elektrokoagülasyon prosesinde, elektrot tipi, pH, akımyoğunluğu ve elektroliz süresi gibi Elektrokoagülasyon prosesini etkileyen parametrelerin bulanıklık giderimi ve filtreleme işlemine üzerine etkisi tam olarak araştırılmamıştır. Bu amaçla yapılan çalışma, iki prosesin karşılaştırılması ve elektrokoagülasyon prosesinin içme sularından bulanıklık gideriminde ve filtreleme işleminde kullanımı ile ilgili sonuçların ortaya konulması açısından oldukça önemlidir.

Bu çalışmada, içme sularından EC ve CC yöntemiyle bulanıklığın giderimi üzerine proseslerin performansını etkilen temel işletme parametrelerinin etkisi incelenmiştir. Bu amaçla EC deneylerinde, paralel bağlı alüminyum ve demir elektrotlarının kullanıldığı bir reaktör tasarlanarak, bulanıklık giderme verimi üzerine başlangıç pH'ı, akım yoğunluğu ve elektroliz süresinin etkisi araştırılmıştır. CC prosesinde ise koagülan türü, başlangıç pH'ı ve koagülan dozajının bulanıklık giderimi üzerine etkisi incelenmiştir. Ayrıca her bir elektrot materyali (Enerji ve Elektrot tüketimi) ve koagülan (Koagülan tüketimi) için proseslerin ekonomik açıdan incelenmesi yapılmıştır.

1.1. EC Teorisi (Theory of EC)

Elektrokoagülasyon (EC), elektroliz sonucu anotun çözünmesi ile temizlenecek atıksu içerisinde metal hidroksit floklarının oluşturulmasından ibaret olan bir prosestir. EC prosesinin 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 [16, 17]. 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 koagülan türlerin oluşumu, 2. Kararsız hale getirilmesi, partikül süspansiyonu ve emülsiyonların kırılması, 3. Kararsız hale getirilen fazlarda flokların toplanması [15, 16].

Alışılmış koagülasyon flokülasyon uygulamalarına kıyasla elektrokoagülasyon, elektriksel alanın varlığından dolayı en küçük kolloid tanecikleri uzaklaştırabilme avantajına sahiptir [18]. Ayrıca oluşan çamur, temel olarak metal oksitleri veya hidroksitleri içermesiyle kolay çökebilir ve susuzlaştırılabilir bir yapı sergilemektedir [19].

2. MATERYAL ve METOD (MATERIAL AND METHOD)

2.1 Materyal (Material)

Deneyel çalışmada kullanılan ve özellikleri Tablo 1'de verilen ham su numunesi Sivas 4 Eylül Barajından gelen, Sivas içme suyu arıtma tesisinin girişinden alınmıştır.

Tablo 1. Çalışmada kullanılan suyun özellikleri (Characteristics of drinking water)

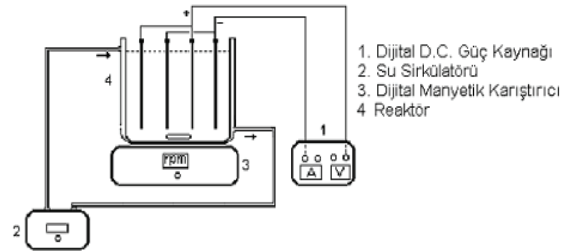
	İns. Am. Tüketilen Sul. Hak. Yön.	Değerler
pH	6,5-9,5	7,9
Bulanıklık (NTU)	5	10
TDS (mg/L)	---	265
İletkenlik ($\mu\text{S}/\text{cm}$) 25°C	2500	370
Alkalinite (mgCaCO ₃ /L)		160
NO ₃ -N (mg/L)	50	0,35
NO ₂ -N (mg/L)	0,5	0,01
NH ₃ -N (mg/L)		0,05
Top. Sertlik (mgCaCO ₃ /L)		170
Demir(mg/L)	0,2	0,04
Mangan (mg/L)	0,05	0,05

2.2 EC ve CC ünitesi (EC and CC units)

Elektrokoagülasyon (EC) deneylerinin gerçekleştirildiği deney düzeneği Şekil 1'de gösterilmiştir. EC deneylerinde kullanılan reaktör 100x100x130 mm boyutlarında olup, çift cidarlı ve plexiglastan yapılmıştır. Reaktördeki suyun sıcaklığı, reaktör cidarlarından su sirkülasyonu sağlayan bir termostat ile kontrol edilmiştir. Termostatın sıcaklığı EC süresince 25°C'de tutulmuştur. Sıcaklığın sabit tutulmasındaki amaç EC süresince suyun sıcaklığının artışı önleyerek sıcaklık parametresinin aktivasyon enerjisi üzerindeki etkisini sabitlemektir. Reaktöre elektrotlar monopolar paralel bağlı olarak yerleştirilmiş ve 4 adet elektrot kullanılmıştır. Elektrotlar 20 mm aralıklarla yerleştirilmiş ve tamamen çözelti içerisine batırılmıştır. Elektrot materyali olarak 50x70x2 mm boyutlarında 210 cm²

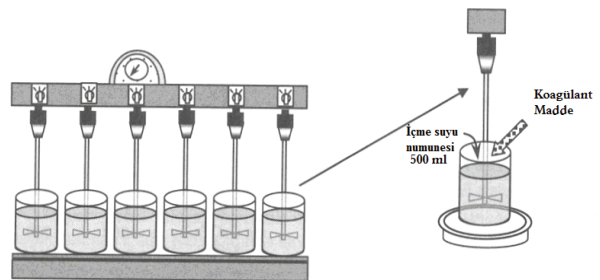
aktif yüzey alanına sahip alüminyum ve demir plakalar kullanılmıştır. Kullanılan alüminyum plakalar % 99,53 Al içeriğine, demir plakalar ise % 99,32 Fe içeriğine sahiptir. Akım ve voltaj kontrolü dijital bir güç kaynağı ile sağlanmıştır (GPC 6030D).

EC deneyleri 1000 ml su hacminde ve 200 rpm karıştırma hızında gerçekleştirilmiştir. Daha sonra 45 rpm'de 15 dakika yavaş karıştırma gerçekleştirilmiş ve 1 saat çökelmeye bırakılmıştır. 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 hekzametilen tetramin ((CH₂)₆N₄) çözeltisi kullanılmıştır [20]. Daha sonra elektrotlar yıkanarak kurutulmuş ve tartıldıktan sonra bir sonraki deneye geçilmiştir.



Şekil 1. Deneyel çalışmada kullanılan elektrokoagülasyon deney düzeneği görüntüsü (Schematic diagram of experimental setup in EC)

CC deneyleri ise, oda sıcaklığında 6'lı jar testi (Velp marka, FC6S model) düzeneğinde gerçekleştirilmiştir (Şekil 2). CC için koagülan madde olarak alüm ve demir tuzları kullanılmıştır. Her bir koagülan için kimyasal koagülasyon deneylerinde 500 mL su numunesi alınarak başlangıç pH ayarlaması yapılmıştır. Daha sonra 200 rpm'de 3 dakika hızlı karıştırma, 45 rpm'de 15 dakika yavaş karıştırma ve 1 saat çökmeye bırakılmıştır [21]. Bu sürelerinden sonra numuneler alınarak gerekli analizler yapılmıştır.



Şekil 2. Deneyel çalışmaların yapıldığı Jar testi düzeneği (Schematic diagram of experimental setup in CC)

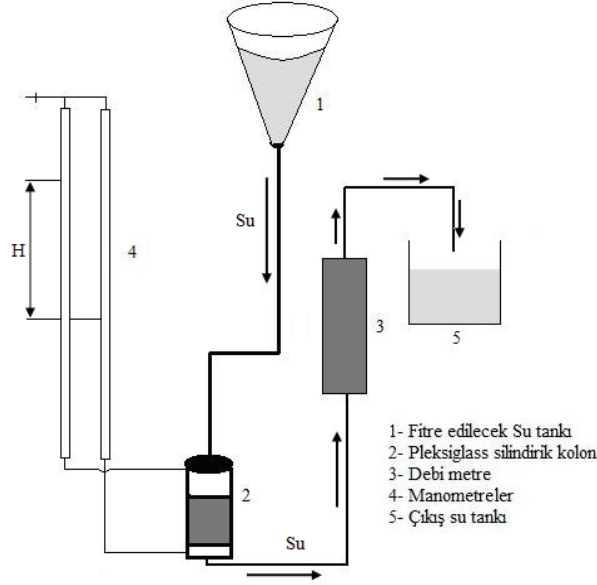
Yüzde bulanıklık giderimi aşağıdaki eşitlikle hesaplanmıştır.

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

Burada C_0 suyun başlangıç bulanıklık derişimi, C ise arıtıldıktan sonraki derişimi (NTU) olarak ifade edilmektedir.

2.3 Filtreleme Ünitesi (Filterability Unit)

EC ve CC çalışmaları sonucu elde edilen optimum çalışma koşullarında arıtılmış suyun filtre edilebilirliği incelenmiştir. Bu amaçla Şekil 3'te verilen Armfield marka Filtreleme deney düzeneği kullanılmıştır.



Şekil 3. Filtreleme deney düzeneği (Schematic diagram of filterability)

Deneyler sırasında 1 L su numunesi kullanılmış ve her iki proses için Filtreleme sayıları (F) hesaplanmıştır. Filtreleme sayısının hesaplamasında kullanılan deney düzeneğine ilişkin bilgiler aşağıdaki tablo 2.'de verilmiştir.

Tablo 2. Filtreleme deney düzeneği özellikleri. (Characteristics of filtration unit)

Parametre	Özellik
Filtre Malzemesi	Leighton Buzzard Kumu (0,50-0,63 ve 0,63-0,80 mm boyutlarında)
Porozite	0,4
Kolon çapı (mm)	38
Alan (mm ²)	1334
Kolon Yüksekliği (mm)	40
Kolon Hacmi (cm ³)	45,4
Kumun Yoğunluğu (g/cm ³)	2,65
Katı kum hacmi (cm ³)	27,3
Kum Ağırlığı (g)	72,345

F sayısı aşağıdaki formülle hesaplanmıştır.

$$F(\text{boyutsuz}) = \frac{H * C}{V * C_0 * t} \quad (2)$$

Burada, H manometrelerde okunan yük kaybı (cm), C filtre çıkış derişimi (NTU), C_0 filtre giriş derişimi (NTU), V filtrasyon hızı (cm/s) ve t filtrasyon süresi (s).

2.4 İşletme Maliyeti (Operation cost)

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

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

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

Bu eşitlikte v : elektrolitik hücre hacmi, F : Faraday sabiti (96485,3 Cloumb/mol \cong 96500 C/mol), z : anot metalin kimyasal ekivalent 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 (s) ve C_{elektrot} : EC reaktöründeki çözünen alüminyum veya demir metal elektrot miktarıdır (kg elektrot/m³ arıtılan su miktarı). Enerji tüketimi ise aşağıdaki eşitlik ile hesaplanmıştır.

$$C_{\text{enerji}} = \frac{V * t_{EC} * I}{v} \quad (4)$$

Bu eşitlikte V : volt, v : elektrolitik hücre veya EC reaktörü hacmi, I : akım (Amper), t_{EC} : işletme süresi (s) ve C_{enerji} : EC prosesindeki enerji tüketimidir (kWh/m³).

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 (\$/m³) olarak hesaplanmış olur. Enerji ve elektrot tüketimlerine göre aşağıdaki eşitlik yazılarak, işletme maliyeti hesaplanmıştır [22, 23];

$$\text{İşletme maliyeti} = 0,06 * C_{\text{enerji}} + X * C_{\text{elektrot}} \quad (5)$$

Kimyasal koagülasyon prosesinde işletme maliyeti hesaplanırken, sadece koagülan madde miktarı alınmıştır. Koagülan maliyeti; $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ için 0,40 \$/kg, $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ için 0,40 \$/kg ve $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ için 0,34 \$/kg alınarak işletme maliyeti (\$/m³) hesaplanmıştır.

$$\text{İşletme maliyeti} = Y * C_{\text{Koagülan}}$$

2.5 Analiz Yöntemleri (Analytical Procedures)

Bulanıklık, alkanite, ve toplam sertlik ölçümleri standart metodlarda belirtilen analiz yöntemlerine göre yapılmıştır [24]. Amonyak, demir, alüminyum, mangan, nitrat, nitrit deneyleri ise tamamında Merck marka NOVA 60 su ve atıksu spektrofotometresinde uygun kitler kullanılarak yapılmıştır. Analizlerde HF marka MicroTPI arazitipi türbidimetre, Consort marka C931 Model pH-metre ve WTW Marka 340i model arazi tipi iletkenlik cihazı kullanılmıştır.

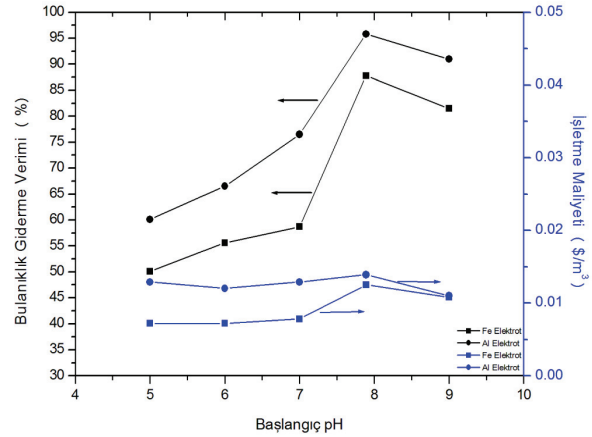
3. SONUÇLAR ve TARTIŞMA (RESULTS and DISCUSSION)

3.1 EC Deneyleri (EC experiments)

3.1.1 EC'de başlangıç pH'nin etkisi (Effect of initial pH in EC)

EC'da en önemli proses parametrelerinden biri, pH'dir. Araştırmacılar EC ilgili yaptıkları çeşitli çalışmalarda bu parametrenin önemini vurgulamışlardır [25-27]. Anot ve katot reaksiyonlarının sulu çözelti içerisindeki reaksiyonları sonucu çözeltinin pH değerinde değişimler olmaktadır. Bundan dolayıdır ki, atıksu pH'sına bağlı olarak elektrolitik olarak çözünen metal iyonları (Al^{+3} , Fe^{+2} gibi) farklı pH değerlerinde farklı metal hidroksit türleri oluştururlar [17, 28]. Başlangıç pH'nin EC prosesine olan etkisini belirlemek amacıyla su numuneleri istenilen pH aralığına NaOH ve HCl kullanılarak getirilmiştir. Başlangıç pH değerleri 5-9 aralığında değiştirilerek uygulanmıştır. Kullanılan suyun kendi pH değerinin 8'e yakın olması nedeniyle başlangıç pH 8 için yapılan deneylerde suyun pH değeri değiştirilmemiştir. Daha sonra alüminyum ve demir elektrotlarının kullanıldığı EC prosesinde başlangıç şartları olarak 10 A/m² akım yoğunluğu, 2 dakika elektroliz süresi ve 200 rpm karıştırma hızı sabit tutularak deneyler gerçekleştirilmiştir. Alüminyum ve demir elektrotlarının kullanıldığı EC deneylerinde bulanıklık giderme verimi üzerine başlangıç pH'nin etkisi Şekil 4'te verilmiştir. Şekil 4'te görüldüğü gibi hafif asidik pH değerlerinde (pH 5-7) giderme verimlerinin arttığı fakat diğerlerine göre daha düşük olduğu ve pH 7,9 değerinde ise bulanıklık giderme veriminin maksimum olduğu ve pH 9 ise giderme veriminin düştüğü görülmüştür. Suyun kendi pH değerinde yapılan çalışmalarda elde edilen bulanıklık giderme verimleri alüminyum ve demir elektrotları için sırasıyla, %95,8 ve %87,8'tir.

Yukarıda da ifade edildiği gibi kendi pH değerinde oluşan metal polimer türlerinin bulanıklığı gidermede adsorpsiyon ve çökeltme mekanizmalarının etkili olduğu düşünülmektedir. Kirleticilerin gideriminde rol oynayan metal hidroksit türlerinin pH 5-8 aralığında oluşmaktadır. Bazı araştırmacılar tarafından yapılan çalışmalarda da pH 6-8 aralığında bulanıklık gideriminde yüksek değerler elde edildiği görülmüştür [6, 29, 30]. EC sonunda çıkış pH değeri alüminyum elektrotu için pH 7,98, demir elektrotu için ise bu değer pH 7,96 olarak ölçülmüştür.



Şekil 4. Başlangıç pH'nin bulanıklık giderimi ve işletme maliyeti üzerine etkisi. (Effect of initial pH on turbidity removal and operation cost)

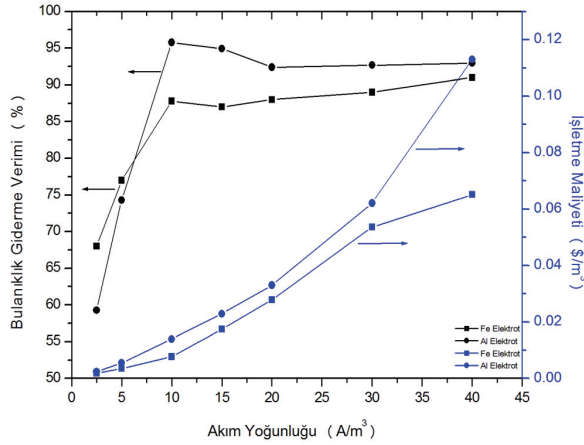
Şekil 4'te alüminyum ve demir için işletme maliyeti verilmiştir. Her iki elektrot türü içinde benzer bir işletme maliyeti olup, maksimum bulanıklık giderme veriminin elde edildiği pH değerinde alüminyum ve demir için işletme maliyeti sırasıyla, 0,0139 \$/m³ ve 0,0125\$/m³ olarak hesaplanmıştır.

3.1.2 EC'de Akım yoğunluğunun etkisi (Effect of current density in EC)

EC prosesinde kirleticilerin giderimin de etkili olan bir önemli parametre ise akım yoğunluğudur. 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 (Eşitlik, 3). Özellikle su ve atıksu arıtımında oluşan kirleticilerin giderimi yüksek akım yoğunluğunda gerçekleşmektedir, bu da oluşan metal hidroksit türlerinin miktarı ile ilişkilidir.

EC prosesinde bulanıklık giderim verimi üzerine akım yoğunluğunun etkisini incelemek amacıyla akım yoğunluğu 2,5-40 A/m² aralığında değiştirilerek uygulanmıştır (Şekil 5). Alüminyum ve demir elektrotlarının kullanıldığı EC deneylerinde optimum pH olarak pH 7,9 ve elektroliz süresi olarak 2 dakika alınmıştır. Alüminyum ve demir elektrotu için

maximum giderme verimi %95,78 ve %87,8 ile 10 A/m² akım yoğunluğunda elde edilmiştir. Şekil 5'te görüldüğü gibi 2,5-10 A/m² aralığında giderme verimi oldukça hızlı bir şekilde yükselmiştir. Ancak 10 A/m² akım yoğunluktan yüksek değerlerde giderme veriminde azda olsa bir azalma olmuştur. Bunun sebebi katotta oluşan H₂'nin flotasyonu hızlandırması ve hızla oluşan Me(OH)₃ koagulanların kirlenici ile buluşmaması ile açıklanabilir [28]. Ayrıca demir elektrot kullanıldığında fazladan bir bulanıklık oluşumu gözlemlenmiştir. Bunun sebebi Fe²⁺'nin suda Fe³⁺'e yükseltgenmesi sonucu oluşan sarımsı ve yeşil bir renk oluşturan Fe(OH)₃ floklarının oluşmasıyla açıklanabilir.



Şekil 5. Akım yoğunluğunun bulanıklık giderimi ve işletme maliyeti üzerine etkisi. (Effect of current density on turbidity removal and operation cost)

İşletme maliyeti açısından EC değerlendirildiğinde şekilden de görüldüğü gibi bir artış gözlemlenmiştir. Faraday yasasına göre, akım yoğunluğunun artmasıyla elektrot materyalinden kopan metal iyonlarının miktarı artmaktadır, buna bağlı olarak her iki elektrot materyalinin tüketimi de artmakta ve sonuç olarak bu da işletme maliyetini artırmaktadır. Alüminyum elektrotu için 10 A/m² akım yoğunluğunda işletme maliyeti 0,0139 \$/m³ iken, demir elektrotu için aynı akım yoğunluğunda 0,0077 \$/m³ olarak hesaplanmıştır.

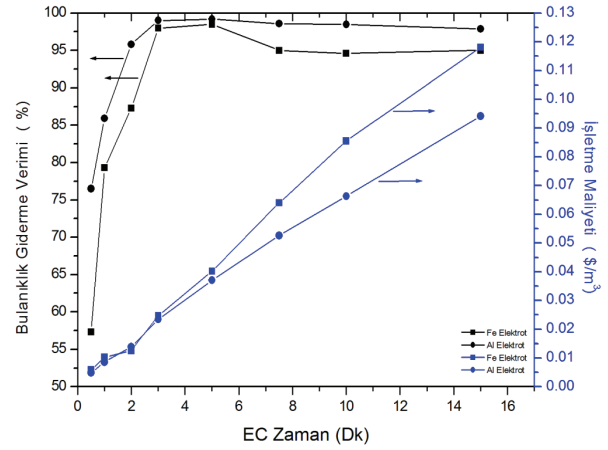
3.1.3 EC'de Elektroliz süresinin etkisi (Effect of electrolysis time in EC)

EC prosesinde (her iki elektrot materyali için) zamanın etkisini incelemek amacıyla bir önceki deneyde elde edilen optimum koşullar sabit şartlar olarak alınmıştır (10 A/m² akım yoğunluğunda ve pH 7,9). Elektroliz süresi incelenirken 0,5-15 dakika arasında değiştirilerek uygulanmıştır. EC prosesinde anodik çözünmenin başlamasıyla koagülasyon oluşur. Çözeltiden kirlenici parametrelerin gideriminde direkt olarak elektrotlar tarafından üretilen iyon konsantrasyonu önemlidir. Elektroliz süresi artarsa, iyonların konsantrasyonu ve onların hidroksit flokları

artar. Yani EC prosesinde uygun ve yeterli miktarda flokların oluşması zamana bağlı olarak gerçekleşir.

Elektroliz süresinin EC üzerine etkisi Şekil 6'da sunulmuştur. Şekil 6'dan görüldüğü gibi 0-3 dakika arasında bulanıklık giderme veriminin arttığı ve 3 dakika'da maksimuma ulaştığı görülmüştür. Bu elektroliz süresindeki bulanıklık giderme verimleri alüminyum elektrotu için %99 iken demir elektrotu için %98 'dir. Alüminyum elektrotu için elektroliz süresi arttıkça bulanıklık giderme veriminde bir değişim olmazken, demir elektrotu için giderme veriminde bir miktar düşüş gözlemlenmiştir. Bu olay, fazla demir hidroksitlerin suda ekstradan bir bulanıklık meydana getirmesiyle açıklanabilir. Bazı araştırmacılar yaptıkları çalışmada bu olaya dikkat çekmişlerdir [25, 31].

İşletme maliyeti açısından elektroliz süresinin etkisi değerlendirildiğinde elektroliz süresinin artmasıyla maliyetin arttığı gözlemlenmiştir. 3 dakikalık elektroliz süresi sonucunda alüminyum ve demir için işletme maliyeti sırasıyla, 0,0234 \$/m³ ve 0,0247 \$/m³ olarak hesaplanmıştır.



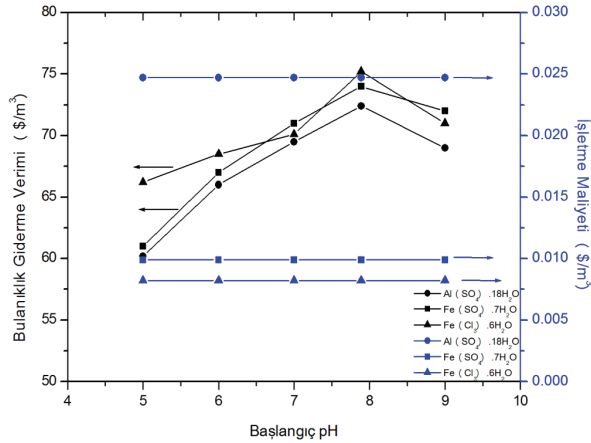
Şekil 6. Elektroliz süresinin bulanıklık giderimi ve işletme maliyeti üzerine etkisi. (Effect of electrolysis time on turbidity removal and operation cost)

3.2. CC Deneyleri (CC experiments)

3.2.1 CC'da Başlangıç pH'ın Etkisi (Effect of initial pH in CC)

İçme suyundan bulanıklığın CC prosesi ile arıtılmasının incelenmesinde ilk olarak pH'ın proses üzerine etkisi incelenmiştir. Her bir koagülant için 5 mgMe⁺/l sabit koagülant dozajı alınmıştır. pH' etkisini incelemek için suyun başlangıç pH'ı 5-9 aralığında değiştirilerek bu pH aralıklarında bulanıklık giderme verimleri incelenmiştir. Şekil 7'de pH'ın CC üzerine etkisi sunulmuştur. Şekil 7'den görüldüğü gibi CC prosenin de EC prosesinde olduğu gibi tüm koagülant madde türleri için suyun kendi pH 7,9 değerinde maksimum giderme verimi elde edilmiştir. CC'de kirlenicilerin giderimi için etkili olan metal

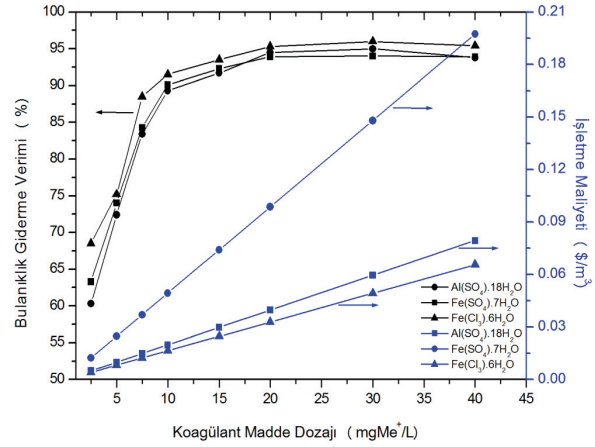
hidroksitler pH 5-8 arasında oluşmaktadır. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$, $FeSO_4 \cdot 6H_2O$ ve $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ koagülan maddeleri için sırasıyla maksimum giderme verimleri, %72,4, %74 ve %75,2 olarak bulunmuştur. Ayrıca Şekil 7'de her koagülan maddenin işletme maliyeti sunulmuştur. Şekilden de görüldüğü gibi koagülan madde miktarı sabit olduğundan işletme maliyeti değişmemiştir



Şekil 7. Kimyasal koagülasyonda başlangıç pH'nın bulanıklık giderimi ve işletme maliyeti üzerine etkisi. (Effect of initial pH on turbidity removal and operation cost in CC)

3.2.2 CC'da Koagülan Dozajının Etkisi (Effect of coagulant dosage in CC)

CC prosesinde, önemli parametrelerden biride koagülan dozajıdır. Kirleticilerin giderimde rol oynayan hidroksit miktarının yeterli olması ancak optimum koagülan madde miktarı ile sağlanmaktadır. CC prosesinde, koagülan dozajının etkisini belirlemek amacıyla başlangıç pH deneylerinde belirlenen optimum pH değeri baz alınarak koagülan madde miktarı 2,5-40 mgMe⁺/L arasında değiştirilerek deneysel işlemler gerçekleştirilmiştir. CC prosesinde koagülan dozajının, bulanıklık giderimi üzerine etkisi Şekil 8'de sunulmuştur. Şekil 8'de görüldüğü gibi koagülan madde miktarının artmasıyla (5-20 mgMe⁺/L) tüm koagülan madde türlerinde bir artış görülmüş 20 mgMe/l dozajdan sonra değişmediği görülmüştür. Tüm koagülan madde türleri için 20mgMe/l dozajında maksimum bulanıklık giderme verimi elde edilmiştir. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$, $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ ve $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ koagülan maddeleri için sırasıyla maksimum giderme verimleri, %94,5, %93,9 ve %95,3 olarak bulunmuştur. Bu koagülan madde miktarları için hesaplanan işletme maliyeti alüminyum sülfat için 0,0987 \$/m³, demir sülfat için 0,0397 \$/m³ ve demir klorür için 0,0328 \$/m³tür.



Şekil 8. Kimyasal koagülasyonda koagülan dozajı'nın bulanıklık giderimi ve işletme maliyeti üzerine etkisi. (Effect of coagulant dosage on turbidity removal and operation cost in CC)

3.3 EC ve CC proseslerinin optimum şartlarda Filtrelenmesi (Filterability in the optimum conditions of EC and CC processes)

Filtrasyon işlemi içme suyu arıtımında kullanılan önemli proseslerden biridir. Özellikle filtrasyon verimini artırmak için uygun koagülan madde türü, dozajı ve karıştırma işlemleri ile ilgili bilgilerin elde edilmesinde kullanılır. Filtre edilebilirlik sayısı (F) filtrasyon işleminde filtre edilebilirliğin zor ya da kolay gerçekleştiğini ifade eder. Optimum işletme şartlarında EC ve CC çalışmaları sonucunda elde edilen arıtılmış suyun filtre edilebilirliği incelenmiştir. Bu amaçla, filtre edilebilirlik düzeneği kullanılarak, eşitlik 2 denklemi ile Filtreleme sayısı hesaplanmış ve tablo 4'te verilmiştir. Hesaplanan F sayılarına göre göreceli olarak Filtreleme ifade edilebilir. Yani F değerlerinin küçük olması söz konusu deneysel çalışmada en yüksek verimin alınabileceği anlamına gelir. Aynı koşullar altında hesaplanan F sayılarına bakıldığında alüminyum elektrotlarının kullanıldığı EC prosesinde en düşük F sayısı hesaplanmıştır ve bu da filtrasyon işleminde en yüksek verimin alınacağı anlamına gelmektedir.

Ayrıca EC ve CC deneylerinde bulunan optimum şartlarda su içerisindeki alüminyum ve demir analizleri yapılarak, sudaki metal konsantrasyonları hesaplanmış ve tablo 4'te sunulmuştur. Tablo 4'te görüldüğü her iki proseste de metal konsantrasyonlarının yönetmeliklerdeki sınır değerleri aşmadığı görülmüştür.

4. SONUÇLAR (CONCLUSIONS)

Elde edilen sonuçlar neticesinde, elektrokoagülasyon prosesinde her iki elektrot türü içinde optimum işletme şartları (pH 7,9; akım yoğunluğu 10 A/m² ve

Tablo 4. EC ve CC deneylerinde hesaplanan F sayıları ve metal konsantrasyonları. (Calculated F constants and metal concentrations in EC and CC experiments)

Materyal	Elektrokoagülasyon (EC)		Kimyasal Koagülasyon (CC)		
	Al Elektrot	Fe Elektrot	Al ₂ (SO ₄) ₃ .18H ₂ O	FeSO ₄ .7H ₂ O	FeCl ₃ .6H ₂ O
Optimum Deneş Şartları	AY: 10 A/m ² pH: 7,9 t:3 dakika	AY: 10 A/m ² pH: 7,89 t: 3 dakika	pH: 7,9 Dozaj: 20 mgMe ⁺ /L	pH: 7,9 Dozaj: 20 mgMe ⁺ /L	pH: 7,9 Dozaj: 20 mgMe ⁺ /L
Filtre Edilebilirlik Sayısı (F) (*10 ⁻⁵)	204	527	317	528	534
Alüminyum (mg/L)	0,14	---	0,2	---	---
Demir (mg/L)	---	0,13	---	0,19	0,13
Yönetmelikler					
TS 266 (2005)	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2
WHO (1999)	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2
Sağlık Bak. İnsani Tük. Amaçlı Sular Yön. (2005)	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2
	<ul style="list-style-type: none"> • Kimyasal koagülasyonda 3 dakika 200 rpm hızlı, 15 dakika 45 rpm yavaş karıştırma ve 60 dakika çökelme işlemine tabi tutulmuştur. • Elektrokoagülasyonda 3 dakika 200 rpm hızlı, 15 dakika 45 rpm yavaş karıştırma ve 60 dakika çökelme işlemine tabi tutulmuştur 				

elektroliz süresi 3 dakika aynı olarak bulunmuştur. Bu işletme şartlarında alüminyum elektrot için %99, demir elektrotlar için ise %98 bulanıklık giderme verimi elde edilmiştir. Bu koşullardaki işletme maliyeti ise, alüminyum elektrotlarının kullanıldığı elektrokoagülasyon prosesinde biraz daha ekonomik olduğu görülmüştür (alüminyum için; 0,0234\$/m³, demir için; 0,0247\$/m³). CC prosesinde elde edilen

sonuçlara bakıldığında Al₂(SO₄)₃.18H₂O, FeSO₄.7H₂O ve FeCl₃.6H₂O koagülanlarla bulanıklık giderim verimleri elektrokoagülasyondaki giderme verimlerinden daha düşük olduğu görülmüştür. Ayrıca maksimum giderme veriminde işletme maliyetlerinin elektrokoagülasyona göre daha pahalı olduğu hesaplanmıştır. Her bir prosesin optimum koşullarında gerçekleştirilen Filtreleme deneyleri sonucunda hesaplanan F sayısı açısından karşılaştırıldığında alüminyum elektrotlarının kullanıldığı elektrokoagülasyon prosesinde farklı koagülanların kullanıldığı kimyasal koagülasyon

prosesine göre filtrasyonun daha kolay ve verimin yüksek olduğu görülmüştür. Ancak demir elektrotlarının kullanıldığı EC prosesinin Al₂(SO₄)₃.18H₂O kullanıldığı CC prosesine göre karşılaştırıldığında Filtreleme sayısının daha yüksek olduğu görülmektedir. Yani Al₂(SO₄)₃.18H₂O kullanıldığı CC prosesinin filtrasyonun demir elektrotlarının kullanıldığı EC prosesine göre daha kolay gerçekleşmektedir. Sonuç olarak, içme sularından bulanıklık gideriminde elektrokoagülasyon prosesinin, kimyasal koagülasyon prosesine göre daha yüksek bulanıklık giderme verimi elde edilen ve daha ekonomik bir proses olduğu belirlenmiştir.

KAYNAKLAR (REFERENCES)

1. Bache, D. and Gregory, R., **Flocs in Water Treatment**. IWA Publishing, London, 2007.

2. Samsunlu, A., **Çevre Mühendisliği Kimyası**, SAM-ÇEVRE Teknolojileri Merkezi Yayınları, 4. Baskı, İstanbul, 1999.
3. Şengül, F. ve Müezzinoğlu, A., **Çevre Kimyası**, D.E.Ü. Müh. Fak. Basım Ünitesi, 4. Baskı, İzmir, 2001.
4. Zhao, H., Hu, C., Liu, H. and Qu, J., "Role of aluminum speciation in the removal of disinfection by production precursors by a coagulation process", **Environmental Science Technology**, Vol 42, 5752-5758, 2008.
5. Sharp, E.L., Parsons, S.A. and Jerferson, B., "Seasonal variations in natural organic matter and its impact on coagulation in water treatment", **Science of the Total Environmen**, Vol 363, No 15, 183-194, 2006.
6. Bukhari, A.A., "Investigation of the electrocoagulation treatment process for the removal of total suspended solids and turbidity from municipal wastewater", **Bioresource Technology**, Vol 99, 914-921, 2008.
7. Chen, X., Chen, G. and Yue P.L., "Separation of pollutants from restaurant wastewater by electrocoagulation", **Separation and Purification Technology**, Vol 19, 65-76, 2000.
8. 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", **Journal of Hazardous Materials**, Vol 172, 345-352, 2009.
9. Shafari, A., Rezayee, M., Arami, M., and Nikazar, M., "Removal of Mn²⁺ ions from synthetic wastewater by electrocoagulation process", **Desalination**, Vol 260, 23-28, 2010.
10. Makalootian, M., Mansoorian, H.J., and Moosazadeh, M., "Performance evaluation of electrocoagulation process using iron-for electrodes for removing hardness from drinking water", **Desalination**, Vol 255, 67-71, 2010.

- 11 Ghosh, D., Medhi, C.R., and Purkait, M.K., "Treatment of fluoride containing drinking water by electrocoagulation using monopolar and bipolar electrode connections", **Chemosphere**, Vol 73, 1393-1400, 2008.
12. 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**, Vol 74, 1391-1395, 2009.
13. Lakshmanan, D., Clifford, D.A., and Samanta, G., "Comparative study of arsenic removal by iron using electrocoagulation and chemical coagulation", **Water Research**. 1-12, 2010.
14. Kumar, N.S. and Goel, S., "Factors influencing arsenic and nitrate removal from drinking water in a continuous flow electrocoagulation (EC) process", **Journal of Hazardous Materials**, Vol 173, 528-533, 2010.
15. Holt, P.K., Barton, G.W., Wark, M. and Mitchell, C.A., "A quantitative comparison between chemical dosing and electrocoagulation", **Colloid Surface A**, Vol 211, 233-248, 2002.
16. Canizares, P., Carmona, M., Lobato, J., Martinez, F. and Rodrigo, M.A., "Electrodissolution of aluminum electrodes in electrocoagulation processes", **Indian journal of Engineering Chemical Research**, Vol 44, 4178-4185, 2005.
17. Mollah, M.Y.A., Schennach, R., Parga, J.R. and Cocke, D.L., "Electrocoagulation (EC)-science and applications", **Journal of Hazardous Materials**, Vol 84, 29-41, 2001.
18. Pouet, M.F. and Grasmick, A., "Urban wastewater treatment by electrocoagulation and flotation", **Water Science Technolgy**, Vol 31, 275-283, 1995.
19. 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.
20. Do, J.S. and Chen, M.L., "Decolourization of dye-containing solutions by electrocoagulation", **Journal of Applied Electrochemical**, Vol 24, 785-790, 1994.
21. Reynolds, T.D., **Unit operations and processes in environmental engineering**, PWS-KENT, California, A.B.D., 1982.
22. Kobya, M., Demirbas, E., and Akyol, A., "Electrochemical treatment and operating cost analysis of textile wastewater using sacrificial iron electrodes", **Water Science Technolgy**, Vol 60, 2261-2270, 2009.
23. Kobya, M., Demirbas, E., Dedeli, A. and Sensoy, M.T., "Treatment of rinse water from zincphosphate coating by batch and continuous electrocoagulation processes", **Journal of Hazardous Materials**, Vol 17, 3326-3334, 2010.
24. 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.
25. Gurses, A., Yalcin, M. and Dogar, C., "Electrocoagulation of some reactive dyes: a statistical investigation of some electrochemical variables", **Waste Management**, Vol 22, 491–499, 2002.
26. Bayramoglu, M., Can, O.T., Kobya, M., and Sozbir, M., "Operating cost analysis of electrocoagulation of textile dye wastewater", **Separation and Purification Technology**, Vol 37, 117-125, 2004.
27. Daneshvar, N., Oladegaragoze, A., and Djafarzadeh, N., "Decolorization of basic dye solutions by electrocoagulation: an investigation of the effect of operational parameters", **Journal of Hazardous Materials**, Vol 129, 116-122, 2006.
28. Chen, G., "Electrochemical technologies in wastewater treatment", **Separation and Purification Technology**, Vol 38, 11-41, 2004.
29. Murugananthan, M., Raju, G.B. and Prabhakar, S., "Separation of pollutants from tannery effluents by electro flotation", **Separation and Purification Technology**, Vol 40, 69-75, 2004.
30. Kobya, M., Hiz, H., Senturk, E., Aydiner, C. And Demirbas, E., "Treatment of Potato Chips Manufacturing Wastewater By Electrocoagulation", **Desalination**, Vol 190, 201-211, 2006.
31. Daneshvar, N., Khatae, A.R., Amani-Ghadim, A.R. and Rasoulifard, M.H., "Decolorization of C.I. Acid Yellow 23 Solution by Electrocoagulation Process; Investigation of Operational Parameters and Evaluation of Specific Electrical Energy Consumption (SEEC)", **Journal of Hazardous Materials**, Vol 148, 566-572, 2007.

