



Hibrit olarak alüminyum ve demir elektrotlar kullanılarak elektrokoagülasyon prosesleri ile sulu çözeltilerden salisilik asit gideriminin araştırılması

Removal of salicylic acid from aqueous solutions by electrocoagulation processes using hybrid electrode

Fuat Özyonar¹ , Ömür Gökkuş^{2*} 

¹ Sivas Cumhuriyet Üniversitesi, Çevre Mühendisliği Bölümü, 58140, Sivas, Türkiye

² Erciyes Üniversitesi, Çevre Mühendisliği Bölümü, 38039, Kayseri, Türkiye

Özet

Bu çalışmada, elektrokoagülasyon prosesiyle sulu çözeltilerden önemli ve yaygın olarak kullanılan bir mikrokirletici sınıfa giren ve ilaç etken maddesi olan sulu çözeltilerden salisilik asitinin giderimi araştırılmıştır. Elektrokimyasal arıtma proseslerinde yaygın olarak kullanılan arıtma prosesleri elektrokoagülasyon ve elektroflotasyon teknikleridir. Elektrokimyasal proseslerde proses verimini belirleyen en temel değişkenlerden birisi, kullanılan elektrot materyalinin cinsidir. Bu çalışmada elektrokoagülasyon prosesiyle hibrit olarak demir ve alüminyum elektrot kombinasyonu kullanılmıştır. Elektrokoagülasyon prosesine etki eden parametrelerden akım yoğunluğu, başlangıç pH, elektroliz süresi ve elektriksel iletkenliğin etkisi salisilik asit giderim verimi üzerine etkisi araştırılmıştır. Bu amaçla elektrokoagülasyon (EC) prosesinde akım yoğunluğu 20 A/m² ve 100 A/m² değerinde, başlangıç pH 5-8, Elektroliz süresi 2-50 dakika, elektriksel iletkenlik 250-1000 µs/cm aralığında ve elektrotlar monopolar paralel (MP-P) bağlantı türünde bağlanarak sulu çözeltilerden salisilik asit giderme verimleri incelenmiştir. En yüksek giderme verimi pH 6, Akım yoğunluğu 80 A/m², çözelti iletkenliği 750 µs/cm, ve Elektroliz süresi 40 dakika olarak elde edilmiştir. Bu işletme şartlarında %91.4 Salisilik asit giderimi, 0.8 kg/m³ çamur oluşumu ve 1.34 \$/m³ işletme maliyeti bulunmuştur.

Anahtar kelimeler: Hibrit elektrot, Elektrokoagülasyon, Salisilik asit, Mikrokirletici

1 Giriş

Her geçen gün şehirlerimizde içme, kullanma ve endüstriyel olarak suya olan ihtiyaç giderek artmaktadır. Mevcut kullanılabilir su kaynaklarının hızlı bir şekilde tükenmesi ve doğal ve antropojenik olarak kirlenmeye uğraması bu kaynaklardan su temininde önemli bir sorun oluşturmaktadır.

İnsan, hayvan ve tarım sağlığının korunması için ilaç endüstrisi hızlı bir şekilde gelişmekte ve değişik türde ilaçlar tedavi amaçlı veya ürün miktar ve kalitesinin arttırmak amacıyla kullanılmaktadır. İnsan ve hayvan sağlığı korumak, hastalıkların teşhisi, tedavisi ve önlenmesi amacıyla kullanılmakta olan birçok ilaç, canlı metabolizmasında tamamıyla metabolize olmamakta ya

Abstract

In this study, salicylic acid, an important and widely used micropollutant in the pharmacy sector, removal by electrocoagulation process was investigated. Electrocoagulation and electroflotation processes are commonly used techniques in electrochemical treatment. The type of electrode material employing in electrochemical processes is one of the basic variables which determining the process performance. In the experiments, iron and aluminum plates were employed as a hybrid electrode combination in the electrocoagulation process. The effect of current density, initial pH, electrolysis time, and electrical conductivity were investigated. For this purpose, the current density was 20 A/m² and 100 A/m², initial pH 5-8, electrolysis time 2-50 min electrical conductivity 250-1000 µs/cm range and electrode connection type monopolar parallel (MP-P) salicylic acid removal efficiencies from aqueous solutions were investigated during the experimental studies. The best removal results were obtained at pH 6 with a current density of 80 A/m², solution conductivity of 750 µs/cm, and 40 min of electrolysis time. In these operation conditions, operation cost, amount of sludge, and removal efficiency of salicylic acid were determined as 1.34 \$/m³, 0.8 kg/m³, and 91.4%, respectively.

Keywords: Hybrid electrode, Electrocoagulation, Salicylic acid, Micropollutant.

olduğu gibi ya da bir başka ürüne dönüşerek vücuttan idrar, dışkı ve ter ile atılmaktadır. İlaç aktif maddeleri atıksulara insan dışkılarından ve hastane atıksularından ulaşabilmekte, ayrıca atıksu arıtma sisteminde artılmadan dışarıya atılmaktadır. Bu konu ile yapılan çalışmalar, su kaynaklarına ve besin zincirine değişik taşınımlar ile karışan ilaç aktif maddelerinin ve metabolitlerinin ekosistem ve insan sağlığı için gerçek bir tehdit oluşturduğunu göstermektedir [1].

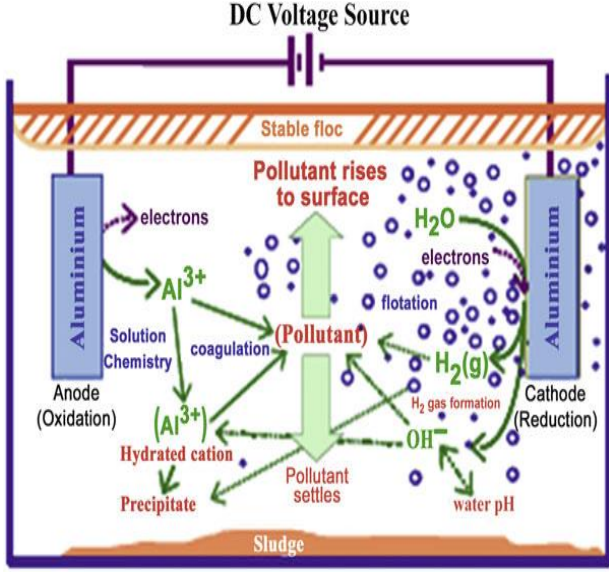
İlaç aktif maddeleri canlıların yapılarına girdikten sonra hedef noktaya ulaşması için enzimlere karşı ve midenin asidik pH'sına karşı dayanıklı olarak üretilmektedir. Bu nedenle ilaç etken/kalıntı maddeleri biyolojik olarak birikerek sucul ve karasal ortamda ekosisteme katılarak

* Sorumlu yazar / Corresponding author, e-posta / e-mail: omurgokus@erciyes.edu.tr (Ö. Gökkuş)

Geliş / Received: 17.12.2020 Kabul / Accepted: 09.04.2021 Yayımlanma / Published: 27.07.2021

doi: 10.28948/ngumuh.842616

en temel özellik kirleticilerin giderilmesini sağlayan elektrokimyasal prosesin şekli ve yapısıdır. Bu durumu belirleyen kullanılan elektrotların özellikleridir. Elektrokimyasal atıksu arıtımında en çok elektrooksidasyon, elektroflotasyon ve elektrokoagülasyon prosesleri kullanılmaktadır. Bu prosesler birlikte veya ayrı olarak bir sistem içerisinde olabilir. Atıksuda bulunan kirleticiler bu prosesler ile okside, adsorbe veya reaktör yüzeyinde birikerek ayırımı sağlanmaktadır. Temel olarak elektrokoagülasyon reaktör sisteminde elektroliz esnasında gerçekleşen mekanizmalar Şekil 4’de verilmektedir.



Şekil 4. Elektrokoagülasyon prosesinde gerçekleşen reaksiyonlar [15].

Elektrokoagülasyon prosesinde, anot olarak çözünen demir veya alüminyum elektrotlar kullanılması halinde bu elektrotlar çözünerek çözeltilere Al^{3+} ve Fe^{2+} , Fe^{3+} iyonları vermektedir. Bu iyonlar sudaki hidroksil iyonları ile birleşerek çok az çözünen $Al(OH)_3$, $Fe(OH)_2$ ve $Fe(OH)_3$ gibi metal hidroksitler oluşturmaktadır. Elektrokoagülasyon anında oluşan metal hidroksit partiküllerinin adsorpsiyon özellikleri çok yüksektir.

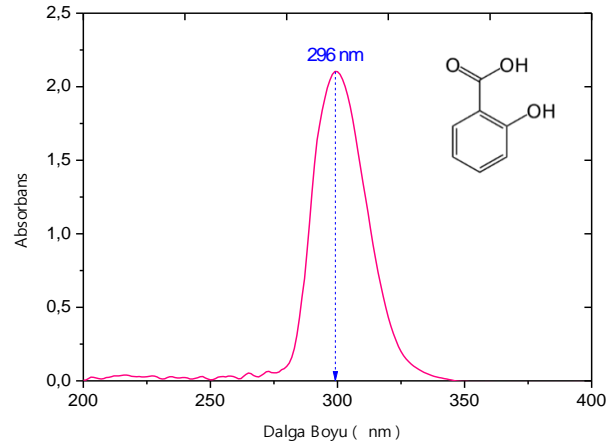
Koagüle edilen partiküller atıksularda bulunan mikro koloidal partikülleri ve iyonları kendilerine doğru çekerek adsorbe etmektedir. Oluşan yumaklar çökelmekte ve elektroflotasyonda oluşan gazlar yardımıyla su yüzeyine kaldırılabilir. Bu yöntem renk, $KOİ$, toplam organik karbon (TOK), askıda madde (AKM) ve ağır metallerin atıksulardan giderilmesinde kullanılmaktadır [16].

Bu çalışmada, salisilik asidin sulu çözeltilerden gidermek amacıyla Al-Fe-Fe-Al (Anot-Katot-Anot-Katot) elektrotlarının ve bağlantılarının kullanıldığı elektrokoagülasyon prosesine etki eden parametrelerden başlangıç pH, akım yoğunluğu, elektroliz süresi ve elektriksel etkisi araştırılmıştır. Elektrokoagülasyon prosesinde optimum şartları belirlemek için salisilik asit ve $KOİ$ parametreleri incelenmiştir.

2 Materyal ve metot

2.1 Malzeme

Çalışmada moleküler ağırlığı 138.121 g/mol olan SA (salisilik asit) saf suya ilave edilerek 100 mg/L konsantrasyonda SA içeren sulu çözeltiler hazırlanmıştır. SA içeren bu sulu çözeltiler optimum çalışma koşullarını belirlemek için farklı deneysel koşullar uygulanarak EC çalışmaları yapılmıştır. Deneysel çalışmalar esnasında SA gideriminin izleneceği dalga boyunu tespit etmek üzere UV bölgede (200-400 nm) arasında yapılan absorpsiyon taraması ile maksimum absorpsiyon veren dalga boyunun 296 nm olduğu belirlenmiştir. Ayrıca SA için kimyasal yapı çeşitli fizikokimyasal özellikler Şekil 5’de verilmektedir.

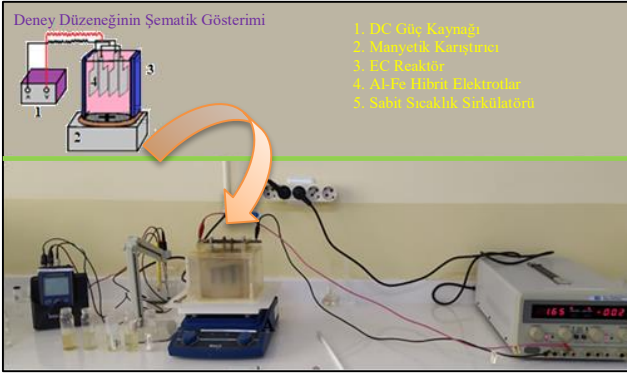


Şekil 5. Salisilik asit kimyasal özellikleri ve yapısı.

EC deneysel çalışmaları, Özyonar (2020) ve ark. tarafından daha önceki çalışmalarda detaylı olarak verilen elektrokimyasal çalışma düzeneğinde yürütülmüştür [17]. EC için her bir deneyde elektrotlar, elektrokoagülasyon reaktörüne yerleştirildikten sonra reaktör içerisinde 1000 ml’lik çözelti hacmi ile deneysel çalışmalar yürütülmüştür. Güç kaynağı üzerinde istenen akım ve voltaj ayarlaması yapıldıktan sonra elektrokoagülasyon işlemine başlanmıştır.

2.2 Yöntem ve işletme maliyeti hesaplanması

Elektrokoagülasyon (EC) deneyleri Şekil 6’da sunulan deney düzeneğinde gerçekleştirilmiştir. Akım ve voltaj kontrollü, dijital bir güç kaynağı (GPC 6030D) ile sağlanmıştır. Karıştırma manyetik bir karıştırıcı ile gerçekleştirilmiştir. EC deneylerinde kullanılan 100 x 100 x 130 mm boyutlarındaki reaktör çift cidarlı olup, plexiglass’dan yapılmıştır. Reaktör ceketli olarak tasarlanıp reaksiyon sıcaklığının 25 °C’de sabit kalması için sürekli su sirkülasyonu sağlanmıştır. Reaktörde her bir deneyde 1000 ml su numunesi kullanılmıştır. Reaktörde farklı bağlantı modlarında 4 elektrot kullanılmıştır. Elektrotlar 20 mm aralıklarla yerleştirilmiş ve tamamen elektrolite batırılmış durumdadır. Elektrot materyali olarak 50 x 70 x 2 mm boyutlarında, 210 cm² aktif yüzey alanına sahip Al ve Fe plakalar kullanılmıştır. Kullanılan alüminyum plakalar, Al: % 99.53; Si: % 0.12; Fe: % 0.25 içeriğine, demir plakalar ise % 99.32 Fe içeriğine sahiptir.



Şekil 6. Deneysel çalışmada kullanılan elektrokoagülasyon deney düzeneğinin görünüşü.

EC işleminden sonra çözelti filtre edilmiş ve gerekli analizler yapılmıştır. EC işlemi sonunda oluşan çamur kuru ağırlık olarak tespit edilmiştir. EC sonunda tüm çözelti ve çamur karışımı oda sıcaklığında kaba filtre kâğıdından süzülerek ağırlığı hesaplanmıştır. Daha sonra etüvde 105 °C 'de kurutulup bekletildikten ve sabit tartıma getirildikten sonra çamur miktarları belirlenmiştir [2].

İşletme maliyeti enerji tüketimi ve elektrot tüketimi dikkate alınarak hesaplanmıştır. Elektrot maliyeti sadece elektrokoagülasyon prosesinde kullanılan Fe ve Al elektrotlar için dikkate alınmıştır (demir elektrot için 0.5 \$/kg, alüminyum elektrot için 1.7 \$/kg). İşletme maliyeti \$/m³ artırılmış atıksu olarak hesaplanmıştır [18].

$$C_{\text{enerji}} = \frac{V \times I \times t_{EC}}{\varrho} \quad (1)$$

$$C_{\text{elektrot}} = \frac{i \times t_{EC} \times M_w}{z \times F \times \varrho} \quad (2)$$

Burada C_{enerji} (m³ artırılan su başına kWh) ve C_{elektrot} (m³ artırılan su başına kg) enerji ve elektrot tüketimlerini ifade etmektedir. Ayrıca V uygulanan potansiyel değerini, t_{ec} elektroliz süresini (dakika veya saat), i uygulanan akım şiddetini (Amper), ϱ sıvı hacmini (m³), M_w demir veya alüminyumun mol kütlelerini (g/m³ cinsinden), F Faraday sabitini (96485 C/mol), z ise metal atomu başına transfer edilen elektron sayısını (Fe: 2, Al: 3) ifade etmektedir [17].

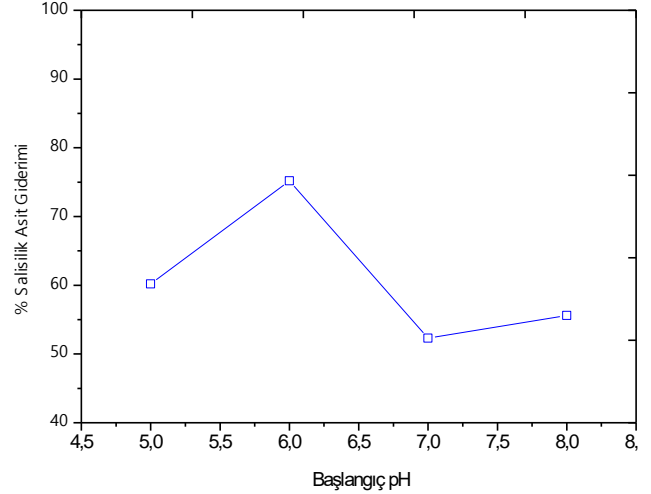
3 Bulgular ve tartışma

Al-Fe-Fe-Al (anot-katot-anot-katot) elektrotlarının kullanıldığı elektrokoagülasyon çalışmalarında, başlangıç pH 5-7 aralığında, akım yoğunluğu 20-100 A/m² aralığında, Salisilik asit konsantrasyonu 100 mg/L, elektriksel iletkenlik 250-1000 µs/cm ve elektroliz süresi 2-20 dakika aralığında, elektrot bağlantı türü monopolar paralel (MP-P) bağlantı türü uygulanarak sulu çözeltilerden SA giderimi araştırılmıştır.

3.1 Salisilik asit giderimi üzerine pH'nin etkisi

Elektrokoagülasyon prosesinde önemli işletme parametrelerinden birisi de çözeltinin elektroliz öncesi pH değeridir. EC prosesinde pH çözelti içerisinde oluşan metal hidroksit formunun türlerini belirlemekle birlikte oluşacak kabarcık formunu ve boyutunu etkilemektedir. Dolayısıyla

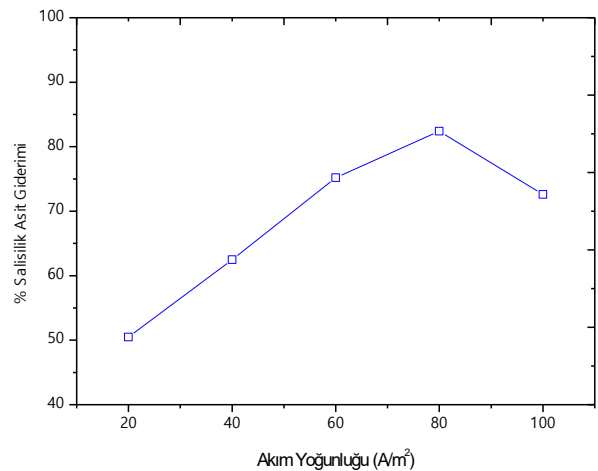
her atıksu veya kirlenmiş su için elektrokimyasal arıtmada en yüksek giderme veriminin elde edileceği pH değeri belirlenmelidir. Yapılan bu çalışmada pH 5-8 aralığında değiştirilerek incelenmiştir. Şekil 7'de görüldüğü gibi en yüksek giderme verimi pH 6'da elde edilmiştir.



Şekil 7. Farklı pH değerlerinde SA giderme verimi. (60 A/m² akım Yoğunluğunda, SA konsantrasyonu 100 mg/L, Elektriksel iletkenlik 750 µs/cm, Elektroliz süresi 20 dakika, Al-Fe-Fe-Al, MP-P bağlantı türünde).

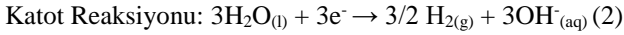
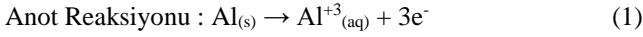
3.2 Salisilik asit giderimi üzerine akım yoğunluğunun etkisi

Elektrokoagülasyon prosesinde akım yoğunluğu kontrol edilebilen en önemli işletme parametrelerinden birisidir. Elektrokimyasal proseslerde akım yoğunluğu oluşan koagulant miktarını, kabarcık üretim hızını ve boyutunu belirlediği için prosesin verimini önemli derecede değiştirmektedir. Bu amaçla, akım yoğunluğunun SA giderimi üzerine etkisini incelemek için akım yoğunluğu 20-100 A/m² aralığında değiştirilerek uygulanmıştır. Şekil 8'de görüldüğü gibi en yüksek giderme verimi 80 A/m² akım yoğunluğunda elde edilmiştir.



Şekil 8. Farklı Akım yoğunluğu değerlerinde SA giderme verimi. (Başlangıç pH 6, SA konsantrasyonu 100 mg/L, Elektriksel iletkenlik 750 µs/cm, Elektroliz süresi 20 dakika, Al-Fe-Fe-Al, MP-P bağlantı türünde).

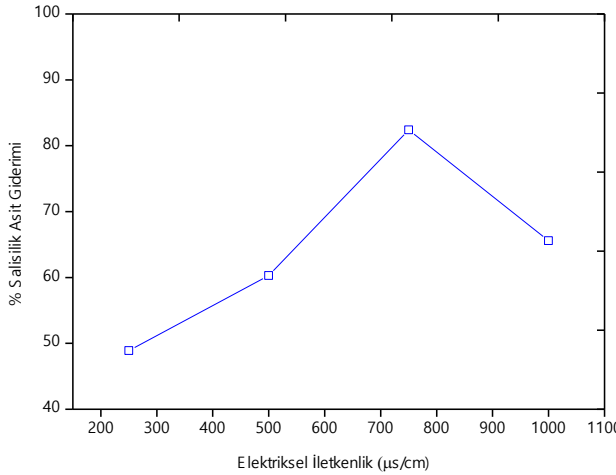
Şekil 8'den görüleceği üzere akım yoğunluğunun 20 A/m² değerinden 80 A/m² değerine artırılması ile birlikte salisilik asit giderim verimi %50.5'den %82.4'e artmıştır. Salisilik asit giderim veriminde meydana gelen bu artış, akım yoğunluğunun artırılması ile Faraday yasasına göre anotta çözünen metal iyonlarının artışı ile açıklanabilmektedir [19]. Ancak akım yoğunluğunun 80 A/m² değerinin üzerine çıkarılması salisilik gideriminde bir miktar azalışa neden olmuştur. Bu durumun olası sebebinin yüksek akım yoğunluğu değerlerinde **Reaksiyon 1** ve **Reaksiyon 2** gereğince katotta meydana gelen aşırı hidrojen gazı ve OH⁻ iyonlarına bağlı pH artışı olduğu düşünülmektedir [20, 21].



3.3 Salisilik asit giderimi üzerine iletkenliğin etkisi

Elektriksel iletkenlik elektrokoagülasyon prosesi üzerine etkisi hem maliyet hem de verim açısından etkisi olan diğer bir işletme parametresidir. Elektriksel iletkenlik çözeltinin iyonik gücü ile ilgilidir ve enerji tüketimi üzerinde değişikliğe sebebiyet verecek bir etkiye sahiptir.

Kullanılan elektrolit çözeltisi iletkenliği artırarak direnç düşüşüne sebep olur ve elektrik tüketimini azaltır. Bu çalışmada bu etkinin SA giderme verimini üzerine olan etkisini araştırmak amacıyla NaCl kullanılarak iletkenlik 250-1000 µs/cm aralığında değiştirilerek elektrokoagülasyon çalışmaları yürütülmüştür. Şekil 9 'da görüldüğü gibi en yüksek giderme verimi % 82.4 ile 750 µs/cm elektriksel iletkenlik değerinde elde edilmiştir.



Şekil 9. Farklı Elektriksel İletkenlik değerlerinde SA giderme verimi. (Başlangıç pH 6, Akım yoğunluğu 80 A/m², SA konsantrasyonu 100 mg/L, Elektroliz süresi 20 dakika, Al-Fe-Fe-Al, MP-P bağlantı türünde).

Çalışmada destek elektrolit olarak kullanılan NaCl, elektrokoagülasyon proselinin etkisinin yanı sıra, proses değerlendirilmesinin yapıldığı 50 dakika gibi kısa zaman periyotlarında bile aktif klor türlerinin oluşumunu sağlayarak (**Reaksiyon 3**) salisilik asidin maksimum oksidasyonuna neden olmuştur [22].

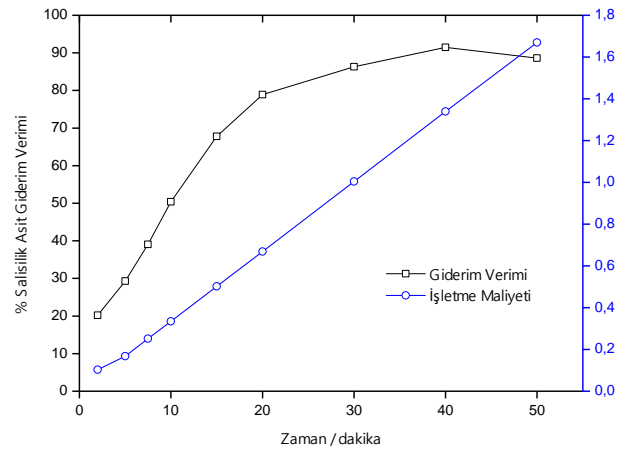


Aynı zamanda NaCl, oksidasyon performansı açısından değerlendirildiğinde, KOİ gideriminde de bir miktar etki gösterebilmektedir [23].

3.4 Salisilik Asit Giderimi Üzerine Elektroliz Süresinin Etkisi

Elektrokoagülasyon prosesinde elektroliz süresi oluşan metal hidroksit floklarının miktarı açısından önemlidir. Yeterli miktarda hidroksit floklarının oluşması için gerekli optimum sürenin belirlenmesi gerekmektedir. Bu çalışmada 2-50 dakika aralığında elektroliz süresi değiştirilerek deneyler gerçekleştirilmiştir. Şekil 10'dan görüleceği üzere süre arttıkça **Eşitlik 1** ve **Eşitlik 2** den de hesaplandığı üzere hem işletme maliyeti artmakta hem de verim artışı görülmektedir.

Bu çalışmada, hibrit elektrotların kullanıldığı EC prosesi ile sulu çözeltilerden SA'nın giderimi araştırılmıştır. Bu amaçla EC prosesine etki eden parametrelerden başlangıç pH, akım yoğunluğu, Elektriksel iletkenlik ve elektroliz süresinin etkisi araştırılmıştır. Yapılan deneysel çalışma sonucunda en yüksek verimin alındığı SA için optimum şartlar başlangıç pH 6, akım yoğunluğu 80 A/m², elektriksel iletkenlik 750 µs/cm ve elektroliz süresi 40 dakika olarak bulunmuştur. Optimum işletme şartlarında SA verimleri % 91.4 olarak elde edilmiştir. Bu koşullardaki işletme maliyeti ise 1.34 \$/m³ olarak hesaplanmıştır. Sonuç olarak Al ve Fe elektrotlarının kullanıldığı çalışmada EC prosesi ile SA gideriminde yüksek SA giderme verimleri elde edilmiştir.

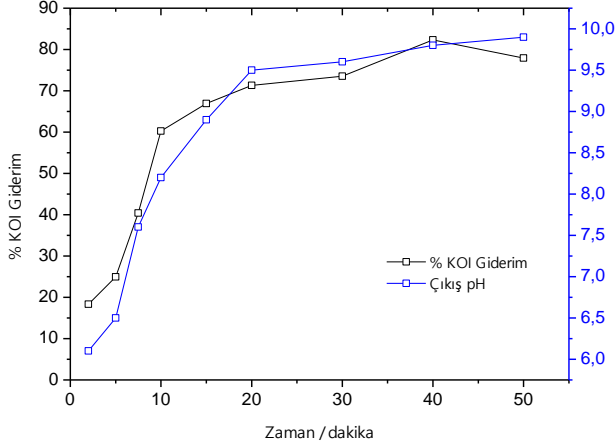


Şekil 10. Farklı Elektroliz sürelerinde SA giderme verimi ve işletme maliyeti. (Başlangıç pH 6, Akım Yoğunluğu 80 A/m², SA konsantrasyonu 100 mg/L, elektriksel iletkenlik 750 µs/cm, Al-Fe-Fe-Al, MP-P bağlantı türünde).

Şekil 10'da elektroliz süresine bağlı olarak SA gideriminin ve işletme maliyetlerinin değişimleri görülebilmektedir. Uygulanan elektriksel akıma bağlı olarak işletme maliyeti de lineer bir artış göstermektedir. 50 dakikalık elektroliz süresinde yaklaşık olarak 1.7 \$/m³'lük bir işletme maliyeti oluşmakla birlikte yaklaşık olarak %88'lik bir SA giderim verimine ulaşılmıştır. Ancak giderim

verimleri ve işletme maliyetleri birlikte göz önüne alındığında 40. dakikada daha makul sonuçlar elde edilebileceği anlaşılmaktadır.

Şekil 11’de ise elektroliz süresi ile KOİ giderimi ilişkisi verilmekle birlikte aynı zamanda elektroliz sonunda çözelti pH değerleri görülebilmektedir.



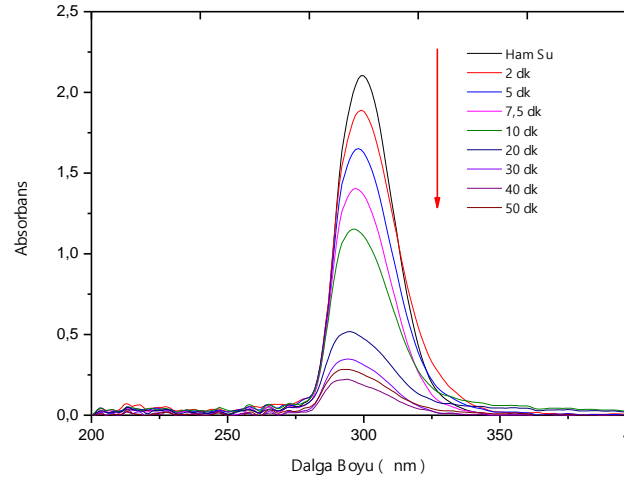
Şekil 11. Farklı Elektroliz sürelerinde KOİ giderim verimleri ve çözelti çıkış pH değerleri. (Başlangıç pH 6, Akım Yoğunluğu 80 A/m², SA konsantrasyonu 100 mg/L, elektriksel iletkenlik 750 µs/cm, Al-Fe-Fe-Al, MP-P bağlantı türünde).

Elektroliz süresinin artmasıyla birlikte KOİ gideriminin belirli bir süreye kadar artış gösterdiği ve 40 dakikalık elektroliz süresinden sonra ise KOİ giderim veriminin bir platoya ulaştığı görülebilir (Şekil 11). Diğer taraftan katot reaksiyonları gereğince (Eşitlik 2) ortamda OH⁻ iyonlarının varlığına bağlı olarak pH değerlerinin de artış gösterdiği görülmektedir. Başlangıç pH değeri 6 olan çözelti 50 dakikalık elektroliz süresi sonrasında pH 10 düzeylerine ulaşmıştır.

Elektrolitik reaktörde üretilen OH⁻ iyonları ile asidik ortamda hafif pH artması gerçekleşir veya çözelti bazik hale gelebilir. Bu iyonlar hem de alüminyum hidroksit formlarını oluşturur. Yapılan çalışmalarda EC prosesi için en uygun pH aralığının 5-8 aralığında olduğu yani hafif nötr yada nötr pH’larda oluşan Al(OH)₃ floklarının yüksek kirletici giderimde etkili olduğu belirtilmiştir [2].

Şekil 12’de optimum koşullarda uygulanan elektrokoagülasyon işleminde zamana bağlı olarak absorbans azalışı verilmektedir. Şekil 12’ye bakıldığında elektrokoagülasyon işleminin 50 dakikasından sonra neredeyse salisilik asidin tamamen yok olduğu anlaşılabilmektedir.

Çalışmada absorbans azalması mineralizasyon göstergesi olarak seçilmiş olup, arıtma sürecinin her bir kademesinde numune UV bölgede tarama yapılarak mineralizasyon değerlendirmesi yapılmıştır. Böylelikle SA’nın giderim verimi değerlendirilmiştir.



Şekil 12. Optimum koşullarda SA için elektroliz süresine bağlı absorbans azalması (Başlangıç pH 6, Akım Yoğunluğu 80 A/m², SA konsantrasyonu 100 mg/L, elektriksel iletkenlik 750 µs/cm, Al-Fe-Fe-Al, MP-P bağlantı türünde).

200-400 nm arasında gerçekleştirilen bu absorbans taramaları salisilik asidin elektrokimyasal olarak bozunması şeklinde açıklanabilmektedir. Ayrıca, 250 – 300 nm arasında görülen pikler, salisilik asit yapısında bulunan aromatik kısımların parçalanması ve salisilik asidin oluşan ara ürünlerine işaret etmektedir [24].

4 Sonuçlar

EC prosesinde SA gideriminde kullanılan elektrot tipinin son derece önemli olduğu görülmüştür. Çalışmada demir elektrotlarının alüminyum elektrotları kadar SA gideriminde etkili olmamıştır. Ayrıca hibrit bağlantı modlarında da yani demir ve alüminyum elektrotların birlikte kullanıldığında sadece alüminyum elektrotlarının kullanıldığı deneylerden daha düşük giderim sonuçları elde edilmiştir. Sonuç olarak alüminyum elektrotlarla SA gideriminde demir elektrotlardan daha yüksek giderim verimi elde edilmiştir. Bu durum EC prosesi esnasında oluşan Al(OH)₃ floklarına, SA bileşenlerinin adsorpsiyonun Fe(OH)₃ floklarına göre daha fazla gerçekleşmesi şeklinde açıklanabilir.

Çalışma sonuçlarına göre MP-P elektrot bağlantı türünde optimum deneysel koşullar, pH 6, 80 A/m² akım yoğunluğu, 750 µs/cm elektriksel iletkenlik, 20 dakikalık elektroliz süresi olarak bulunmuştur. Optimum işletme şartlarında SA verimleri % 91.4 olarak elde edilmiştir. Çalışma kapsamında yürütülen maliyet analizi sonuçlarına göre ise optimum şartlarda 1.34 \$/m³’lük bir arıtma maliyeti hesaplanmaktadır. Sonuç olarak Al ve Fe elektrotlarının kullanıldığı çalışmada EC prosesi ile SA gideriminde yüksek SA giderim verimleri elde edilmiştir.

Diğer taraftan KOİ açısından sonuçlar değerlendirildiğinde ise giderim verimleri yüksek olmakla birlikte belirli bir noktadan itibaren deneysel koşulların giderim verimini daha fazla arttırmadığı gözle çarpılmaktadır. Önemli ölçüde çözünmüş KOİ’ye sahip olan SA çözeltisinin EC gibi fizikokimyasal bir yöntemle partikül KOİ’de oldukça iyi sonuçlar sağlamasına rağmen çözünmüş KOİ

giderimi noktasında sınırlı bir etkiye sahip olduğu söylenilebilir.

Optimum işletme şartlarında oluşan çamur miktarı 0.8 kg/m³ olarak bulunmuştur. EC prosesi çamur oluşumu bakımından konvansiyonel yöntemlere göre daha düşük çamur üretim miktarlarına sahip olmakla birlikte ortaya çıkan çamurun bertarafı konusunda dikkat edilmesi gerekir. Arıtma süreci sonrasında oluşan çamur mikrokirletici açısından daha yoğun bir içeriğe sahip olmasından dolayı çevresel anlamda risk oluşturmaktadır. Bu özellikteki çamurun yakma tesislerinde bertarafı uygun bir alternatif olarak görülmektedir.

Çalışmadan elde edilen sonuçlar doğrultusunda farklı ilaç kalıntı maddelerinin veya metabolitlerinin EC prosesi ile gideriminin araştırılmasının yararlı olacağı önerilmektedir.

Çıkar çatışması

Yazarlar çıkar çatışması olmadığını beyan etmektedir.

Benzerlik oranı (iThenticate): % 14

Kaynaklar

- [1] G. Sönmez, M. Işık, Sulardaki ilaç kalıntılarının ileri oksidasyon yöntemleri ile giderimi. Turkish Journal of Scientific Reviews, 6, 68-73, 2013.
- [2] S. Aksoy, Elektrokoagülasyon prosesi ile sulu çözeltilerden salisilik asit giderimi. Çevre Mühendisliği ABD, Cumhuriyet Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Sivas, 2016.
- [3] A. H. Dökmeçi, Bazı farmasötik ilaç kalıntılarının sulardaki toksik etkileri, (2009).
- [4] İ. E. İ. Sendikası, Türkiye İlaç Pazarı, 2020.
- [5] W. H. Tsai, T. C. Huang, H. H. Chen, J.-J. Huang, M.-H. Hsue, H. Y. Chuang, and Y. W. Wu, Determination of tetracyclines in surface water and milk by the magnesium hydroxide coprecipitation method. Journal of chromatography A, 1217, 415-418, 2010. <https://doi.org/10.1016/j.chroma.2009.12.006>.
- [6] S. O'Connor, and D. S. Aga, Analysis of tetracycline antibiotics in soil: advances in extraction, clean-up, and quantification. TrAC Trends in Analytical Chemistry, 26, 456-465, 2007. <https://doi.org/10.1016/j.trac.2007.02.007>.
- [7] R.S. Valverde, M.D.G. García, M.M. Galera, and H.C. Goicoechea, Determination of tetracyclines in surface water by partial least squares using multivariate calibration transfer to correct the effect of solid phase preconcentration in photochemically induced fluorescence signals. Analytica Chimica Acta, 562, 85-93, 2006. <https://doi.org/10.1016/j.aca.2006.01.035>.
- [8] Y. Luo, W. Guo, H.H. Ngo, L.D. Nghiem, F.I. Hai, J. Zhang, S. Liang, and X.C. Wang, A review on the occurrence of micropollutants in the aquatic environment and their fate and removal during wastewater treatment. Science of the total environment, 473, 619-641, 2014. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2013.12.065>.
- [9] M.H. Khan, H. Bae, and J.-Y. Jung, Tetracycline degradation by ozonation in the aqueous phase: proposed degradation intermediates and pathway. Journal of hazardous materials, 181, 659-665, 2010. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2010.05.063>.
- [10] I.R. Bautitz, and R.F.P. Nogueira, Degradation of tetracycline by photo-Fenton process—Solar irradiation and matrix effects. Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry, 187, 33-39, 2007. <https://doi.org/10.1016/j.jphotochem.2006.09.009>.
- [11] Y. Liu, X. Gan, B. Zhou, B. Xiong, J. Li, C. Dong, J. Bai, and W. Cai, Photoelectrocatalytic degradation of tetracycline by highly effective TiO₂ nanopore arrays electrode. Journal of Hazardous Materials, 171, 678-683, 2009. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2009.06.054>.
- [12] Y.-J. Wang, D.-A. Jia, R.-J. Sun, H.-W. Zhu, and D.M. Zhou, Adsorption and cosorption of tetracycline and copper (II) on montmorillonite as affected by solution pH. Environmental Science & Technology, 42, 3254-3259, 2008. <https://doi.org/10.1021/es702641a>.
- [13] C. Reyes, J. Fernandez, J. Freer, M. Mondaca, C. Zaror, S. Malato, and H. Mansilla, Degradation and inactivation of tetracycline by TiO₂ photocatalysis. Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry, 184, 141-146, 2006. <https://doi.org/10.1016/j.jphotochem.2006.04.007>.
- [14] D. Avisar, O. Primor, I. Gozlan, and H. Mamane, Sorption of sulfonamides and tetracyclines to montmorillonite clay. Water, Air, & Soil Pollution, 209, 439-450, (2010). <https://doi.org/10.1007/s11270-009-0212-8>.
- [15] S. Mondal, M.K. Purkait, and S. De, Advances in dye removal technologie., Springer, 2018. <https://doi.org/10.1007/978-981-10-6293-3>.
- [16] A. Romanov, M. Kobya, and A. Dimoglo, Atıksulardaki kolloidal partiküllerin elektroflotakoagülasyonla giderimi, in: İTÜ 7. Endüstriyel Kirlenme Kontrolü Sempozyumu, İstanbul, 2000, pp. 67-74.
- [17] F. Özyonar, Ö. Gökkuş, and M. Sabuni, Removal of disperse and reactive dyes from aqueous solutions using ultrasound-assisted electrocoagulation. Chemosphere, 127325, 2020. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2020.127325>.
- [18] R. Sridhar, V. Sivakumar, V.P. Immanuel, and J.P. Maran, Treatment of pulp and paper industry bleaching effluent by electrocoagulant process. Journal of Hazardous Materials, 186, 1495-1502, 2011. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2010.12.028>.
- [19] M.Y.A. Mollah, R. Schennach, J.R. Parga, and D.L. Cocke, Electrocoagulation (EC)—science and applications. J. Hazard. Mater., 84, 29-41, 2001. [https://doi.org/10.1016/S0304-3894\(01\)00176-5](https://doi.org/10.1016/S0304-3894(01)00176-5).
- [20] Ö. Gökkuş, and Y.Ş. Yıldız, Application of electrocoagulation for treatment of medical waste sterilization plant wastewater and optimization of the experimental conditions. Clean Technol. Environ. Policy, 17, 1717-1725, 2015. <https://doi.org/10.1007/s10098-014-0897-2>.

- [21] N. Flores, E. Brillas, F. Centellas, R.M. Rodríguez, P.L. Cabot, J.A. Garrido, and I. Sirés, Treatment of olive oil mill wastewater by single electrocoagulation with different electrodes and sequential electrocoagulation/electrochemical Fenton-based processes. *Journal of hazardous materials*, 347, 58-66, 2018. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2017.12.059>.
- [22] A. Thiam, M. Zhou, E. Brillas, and I. Sirés, A first pre-pilot system for the combined treatment of dye pollutants by electrocoagulation/EAOPs. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, 89, 1136-1144, 2014. <https://doi.org/10.1002/jctb.4358>.
- [23] A. Thiam, M. Zhou, E. Brillas, and I. Sirés, Two-step mineralization of Tartrazine solutions: study of parameters and by-products during the coupling of electrocoagulation with electrochemical advanced oxidation processes, *Applied Catalysis B: Environmental*, 150, 116-125, 2014. <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2013.12.011>.
- [24] F. Ozyonar, H. Muratcobanoglu, and O. Gokkus, Taguchi approach for color removal using electrocoagulation with different electrode connection types, *Feb-Fresenius Environmental Bulletin*, 7600, 2017

