

**T.C.
HARRAN ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

**İÇME-KULLANMA SULARINDA ELEKTROKOAGÜLASYON PROSESİ
İLE ARSENİK GİDERİMİNİN ARAŞTIRILMASI**

Yakup BAĞCI

ÇEVRE MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

**ŞANLIURFA
2019**

**T.C.
HARRAN ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

**İÇME-KULLANMA SULARINDA ELEKTROKOAGÜLASYON PROSESİ
İLE ARSENİK GİDERİMİNİN ARAŞTIRILMASI**

Yakup BAĞCI

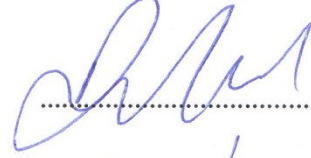
ÇEVRE MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

**ŞANLIURFA
2019**

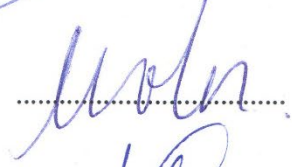
Doç. Dr. Ayşe Dilek ATASOY danışmanlığında, Yakup BAĞCI'nın hazırladığı **“İçme-Kullanma Sularında Elektrokoagülasyon Prosesi İle Arsenik Gideriminin Araştırılması”** konulu bu çalışma 27/05/2019 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından oy birliği ile Harran Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı'nda YÜKSEK LİSANS TEZİ olarak kabul edilmiştir.

İmza

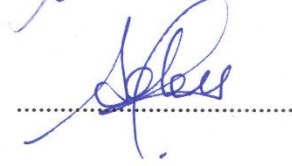
Danışman : Doç. Dr. Ayşe Dilek ATASOY



Üye : Prof. Dr. Mehmet İrfan YEŞİLNACAR



Üye : Dr. Öğr. Üyesi Adem YURTSEVER



Bu Tezin Çevre Mühendisliği Anabilim Dalında Yapıldığını ve Enstitümüz Kurallarına Göre Düzenlendiğini Onaylarım.

Doç. Dr. İsmail HİLALİ
Enstitü Müdürü

Bu Çalışma HÜBAK Tarafından Desteklenmiştir.
Hübak Prj. No: 17206

Not: Bu tezde kullanılan özgün ve başka kaynaktan yapılan bildirişlerin, çizelge, şekil ve fotoğrafların kaynak gösterilmeden kullanımı 5846 sayılı Fikir ve Sanat Eserleri Kanunundaki hükümlere tabidir.

İÇİNDEKİLER

Sayfa No

ÖZET	i
ABSTRACT	ii
TEŞEKKÜR	iii
ŞEKİLLER DİZİNİ	iv
ÇİZELGELER DİZİNİ	v
SİMGELER DİZİNİ	vi
1. GİRİŞ	1
1.1. Problemin Tanımı ve Çalışmanın Önemi	7
1.2. Karaali Jeotermal Sahası Arsenik Sorunu	8
1.3. EK Prosesi	10
1.3.1. EK teorisi	11
1.3.2. EK'ya etki eden parametreler	16
1.3.3. EK işleminde elektrot düzenlemeleri	17
1.3.4. EK hücresinin dizaynı	19
1.3.5. EK prosesinde alternatif akım (AC) ve doğru akım (DC)	20
2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR	21
2.1. Elektrokoagülasyon Prosesi ile Sulardan Arsenik Giderimi	21
3. MATERYAL ve YÖNTEM	27
3.1. Materyal	27
3.1.1. Elektrokoagülatör tasarımı ve deney düzeneği	27
3.2. Yöntem	30
3.2.1. EK prosesi ve sentetik arsenikli su	30
3.2.2. Elektrokoagülasyon için hesaplamalar ve kullanılan eşitlikler	31
4. ARAŞTIRMA BULGULARI ve TARTIŞMA	32
4.1. Arsenik Giderim Verimi ve Bunu Etkileyen Şartlar	32
4.1.1. Artan gerilim (voltaj) değerlerinde arsenik giderimi	33
4.1.2. Artan gerilim (volt) değerlerinde arsenik giderim	51
4.2. Arsenik Gideriminde pH'nın Etkisi	61
4.3. Arsenik Gideriminde İletkenliğin Etkisi	66
4.4. Arsenik Gideriminde Elektrokoagülasyon Süresinin Etkisi	69
4.5. Arsenik Gideriminde Akım Yoğunluğunun Etkisi	73
4.6. Optimum Koşullara Göre Maliyet Hesabı	76
5. SONUÇ ve ÖNERİLER	77
KAYNAKLAR	80
ÖZGEÇMİŞ	83

ÖZET

Yüksek Lisans Tezi

İÇME-KULLANMA SULARINDA ELEKTROKOAGÜLASYON PROSESİ İLE ARSENİK GİDERİMİNİN ARAŞTIRILMASI

Yakup BAĞCI

Harran Üniversitesi
Fen Bilimleri Enstitüsü
Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı

Danışman: Doç. Dr. A. Dilek ATASOY

Yıl: 2019, Sayfa: 83

İçme sularında arseniğin sınır değerin üzerinde bulunması çeşitli sağlık sorunlarına sebebiyet vermektedir. Bölgenin jeolojik yapısı ve toprağın arsenikçe zengin olması durumunda su kaynaklarında doğal nedenlerle arsenik (As) kirliliği gözlenirken, insan faaliyetleri neticesinde de arsenik kontaminasyonları vuku bulmaktadır. Dünya Sağlık Örgütü, yapılan araştırmalara dayanarak, içme sularındaki maksimum arsenik miktarını 10 µg/L olarak belirlemiş ve bu değerin üzerinde arsenik bulunduran suların toksik olduğunu ilan etmiştir. Sınır değerin üzerinde arsenik içeren kullanma ve içme sularında kirliliğin giderilmesi gerekir. Bölgemizde bulunan Karaali jeotermal sahasındaki akışkandan alınan su numunelerinde As konsantrasyonu 44 µg/L ile limit değerlerinin üzerinde tespit edilmiştir. Dolayısıyla bölgede sulardan As giderimini sağlayan uygun bir metodun araştırılması gerekliliği doğmuştur. Bu bağlamda mevcut çalışmada, ucuz ve kolay bir yöntem olarak bilinen ve işletmedeki basitliği nedeniyle tercih edilen elektrokoagülasyon (EK) yöntemiyle sulardan arsenik gideriminin araştırılması amaçlanmıştır. Elektrokoagülasyon prosesi kirlenmiş suyun arıtılması için uygulanan elektrokimyasal bir işlemdir ve çok çeşitli kirleticileri uzaklaştırmak için kullanılan bir su arıtma teknolojisidir. Denemelerde, elektrokoagülasyon yöntemi ile sulu çözeltilerden arseniğin giderimi ve sistem parametrelerinin giderim verimi üzerine etkileri incelenmiştir. Özellikle ortamın pH'sı, akım yoğunluğu, iletkenlik ve tuz ilavesinin As giderim oranı üzerindeki etkileri yorumlanmıştır. Proseste sentetik olarak hazırlanmış arsenik çözeltisi kullanılmıştır. Elektrokoagülasyon deneyleri için 10 L'lik bir elektrokoagülatör tasarlanmıştır. Sistemde beş adet ve her birinin yüzey alanı 189 cm² olan alüminyum elektrot plaka kullanılmıştır. Her bir elektrot arası açıklık 5 cm olarak seçilmiştir. Güç kaynağı olarak maksimum 30 volt ve 3 A akımda çalışan GPS-3303 6020 1200 Watt model seçilmiştir. Gerilim 1.5V-15V arası ve akım 0.1A-2A olarak belirlenmiştir. Akım yoğunluğunun artırılması arsenik giderim miktarını aynı zamanda enerji tüketimini de artırmıştır. Çözeltiye ilave edilen destek elektrolit (NaCl), ortam iletkenliğini ve As giderim verimini (%15) arttırmıştır. As gideriminde sistemde yüksek akım uygulamasının, yüksek pH'da sistemi işletmekten daha etkili olduğu görülmüştür. Bununla birlikte pH 10'un üzerine çıkınca As gideriminde önemli bir artış gözlenmiştir. Deneysel çalışmanın sonucunda elektrokoagülatörde 1.29 mA/cm² akım yoğunluğu için 10 dk sonunda %99 'un üzerinde As giderimi sağlanmıştır. Optimum akım şartları 5 V ve 1A değerlerinde elde edilmiştir. Bu değerin üzerinde arıtma veriminde önemli bir değişim olmadığından, maliyeti arttırmamak açısından 5 voltun aşılması önerilmiştir.

ANAHTAR KELİMELER: Yeraltı suyu kirlenmesi, elektrokoagülasyon, arsenik giderimi

ABSTRACT

Master's Thesis

INVESTIGATION OF THE ARSENIC REMOVAL BY ELECTROCOAGULATION PROCESS IN DRINKING AND USING WATERS

Yakup BAĞCI

HarranUniversity
Graduate School of Natural and Applied Sciences
Department of Environmental Engineering

Advisor: Assoc. Prof. Dr. A. Dilek ATASOY
Year: 2019, Pages: 83

The high arsenic concentration above the drinking water limit in cities causes various health problems. Arsenic (As) contamination is observed in water resources due to human induced pollution and natural reasons born of geological features and arsenic rich soils. The maximum amount of arsenic in drinking water is determined as 10 µg/L by World Health Organization and above this value is declared toxic water containing arsenic. The use of arsenic, which is above the limit value, should be eliminated in the drinking waters. In Karaali geothermal area in our region As concentration in water was determined as 44 µg/L above the admissible level. Therefore, it is necessary to assign a suitable method that provides As removal for waters in the region. In this context, it is aimed to investigate arsenic removal from waters by electrocoagulation (EK), which is known as a cheap and easy method and preferred due to its simplicity in operation. The electrocoagulation is an electrochemical process for the treatment of contaminated water and is a water treatment technology used to remove a wide range of pollutants. In the experiments, the removal of arsenic from the aqueous solutions by electrocoagulation method and the effects of the system parameters were investigated. In particular, the effects of pH, current density, conductivity and salt amount on As removal rate were discussed. Synthetic prepared arsenic solution was used in the process. A 10 L electrocoagulator was designed for electrocoagulation experiments. Five electrode plates with a surface area of 189 cm² each were used in the system. Space between each electrode was 5 cm. As a power source, the GPS-3303 6020 1200 Watt model was used with a maximum of 30 volts and 3 A current. The voltage was between 1.5V-15V and the current was determined as 0.1A-2A. Arsenic removal increased with increasing current density and increasing energy consumption. The support electrolyte (NaCl) added to the solution increased the media conductivity and As removal efficiency (15%). It is seen that high current application is more effective than high system pH. However, when the pH was above 10, a significant increase in As removal was observed. As a result of the experimental study, over 99% of As removal was achieved in 10 minutes for 1.29 mA/cm² current density in the electrocoagulator. Optimum current conditions were obtained at 5 V and 1A values. Since there was no significant change in the treatment efficiency above this value, 5 volts should not be exceeded in order not to increase the cost.

KEYWORDS: Ground water contamination, electrocoagulation, arsenic removal

TEŐEKKÜR

Tez alıőmam sűresince yardımlarımı esirgemeyen, bilgi ve tecrűbesi ile her zaman yanımda olduėunu hissettiren sevgili danıőmanım Do. Dr. A. Dilek ATASOY'a, Prof. Dr. M. İrfan YEŐİLNACAR' a ve Dr. Őėr. Őyesi Adem YURTSEVER'e sonsuz Őukranlarımı arz ederim ve yűksek lisans Őėrenimim sűresince yardımları ile hep yanımda olan deėerli arkadaőım Kerem GŬLPINAR'a, deėerli arkadaőım Sűleyman AKMAK'a ve deėerli arkadaőım Ersin YALINKAYA'ya sonsuz teőekkűrlerimi sunarım.



ŞEKİLLER DİZİNİ

Sayfa No

Şekil 1.1. Üç Değerlikli Arsenik Türlerinin pH ile Değişen Bulunma Kesirleri (Can, 2010).....	3
Şekil 1.2. Beş Değerlikli Arsenik Türlerinin pH ile Değişen Bulunma Kesirleri (Can, 2010).....	3
Şekil 1.3. Arsenik İçin Eh-pH Grafiği (Can, 2010).....	5
Şekil 1.4. Karaali jeotermal sahası lokasyon haritası (GAP, 2015).....	8
Şekil 1.5. Elektrokoagülasyon Prosesinde Meydana Gelen Reaksiyonlar (Can, 2010)	12
Şekil 1.6. EK Sistemleri, (a) MP-P sistemi, (b) MP-S sistemi, (c) BP-S sistemi.	18
Şekil 3.1. Elektrokoagülasyon Denei Düzenegi	28
Şekil 3.2. Manyetik Karıştırıcı	29
Şekil 3.3. pH Metre (A), İletkenlik Cihazı (B), Filtreler (C) Ve Numune Tüpleri (D)	29
Şekil 4.1. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%), (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm ²) (D).....	34
Şekil 4.2. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%), (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm ²) (D)	36
Şekil 4.3. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%), (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm ²) (D)	38
Şekil 4.4. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%), (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm ²) (D)	40
Şekil 4.5. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm ²) (D)	42
Şekil 4.6. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm ²) (D)	44
Şekil 4.7. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderim (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm ²) (D)	46
Şekil 4.8. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm ²) (D)	48
Şekil 4.9. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm ²) (D)	50
Şekil 4.10. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm ²) (D)	52
Şekil 4.11. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm ²) (D)	54
Şekil 4.12. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm ²) (D).....	56
Şekil 4.13. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm ²) (D)	58
Şekil 4.14. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm ²) (D)	60
Şekil 4.15. 5V-2A Akım Uygulamasında Zamana Bağlı Olarak pH Değişimi.....	64
Şekil 4.16. 3V-2A Akım Şartlarında ve 10 dk İşletim Süresinde pH'ya Bağlı Olarak As Giderimi.....	66
Şekil 4.17. 3V-2A Akım Şartlarında ve 10 dk İşletim Süresinde pH'ya Bağlı Olarak Enerji Tüketimi.....	66
Şekil 4.18. İletkenlik ve As Konsantrasyonunun Zamana Göre Değişimi (5V-1A Akım Şartlarında)	67
Şekil 4.19. 3V-2A Akım Şartlarında ve 10 dakika İşletim Süresinde Tuz konsantrasyonuna Bağlı Olarak İletkenlik Değişimi (A) ve Tuz Konsantrasyonuna Bağlı Olarak As Giderimi (%) (B).....	69
Şekil 4.20. 3V-2A Akım şartlarında Zamana Bağlı Olarak As giderimi (%).....	71
Şekil 4.21. 3V-2A Akım Şartlarında Zamana Bağlı Olarak Enerji Tüketimi (Wh)	72
Şekil 4.22. 5V-1A Akım Şartlarında Zaman Bağlı Olarak Arsenik Giderimi (%).....	72
Şekil 4.23. 5V-1A Akım Şartlarında Zamana Bağlı Olarak Enerji Tüketimi (Wh)	73
Şekil 4.24. Akım Yoğunluğuna Bağlı Olarak Arsenik Giderim Verimi	75
Şekil.4.25. Akım Yoğunluğuna Bağlı Olarak Enerji Tüketimi	76

ÇİZELGELER DİZİNİ

Sayfa No

Çizelge 1.1. Karaali Sıcak Akışkanında Ölçülen Elementlerin Konsantrasyonları (GAP, 2015).....	9
Çizelge 3.1. Elektrokoagülasyon Çalışmalarında Kullanılan Akım (A) Ve Gerilimler (V).....	27
Çizelge 3.2. Elektrokoagülasyon Çalışmalarında Reaktörün Özellikleri	28
Çizelge 3.2. Elektrokoagülasyonda kullanılan Giriş Sentetik Arsenikli Su analiz sonuçları	30
Çizelge 4.1. 1.5V-0.1A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları.....	33
Çizelge 4.2. 2V-0.1A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları.....	35
Çizelge 4.3. 2.5V-0.1A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları.....	37
Çizelge 4.4. 2V-1A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları.....	39
Çizelge 4.5. 2.5V-1A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları.....	41
Çizelge 4.6. 3V-1A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları.....	43
Çizelge 4.7. 2V-1.5A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları.....	45
Çizelge 4.8. 3V-1.5A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları.....	47
Çizelge 4.9. 3V-2A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları.....	49
Çizelge 4.10. 5V-1A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları.....	51
Çizelge 4.11. 5V-2A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları.....	53
Çizelge 4.12. 10V-1A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları.....	55
Çizelge 4.13. 10V-2A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları.....	57
Çizelge 4.14. 15V-2A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları.....	59
Çizelge 4.15. 5V-2A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartlarında pH Değişimi.....	63
Çizelge 4.16. 3V-2A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartlarında pH'nın Etkisi	65
Çizelge 4.17. 3V-2A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartlarında Tuzun Etkisi.....	68
Çizelge 4.18. 3V-2A Akım Uygulaması ve 0.14 mA/cm ² Akım Yoğunluğu için Deneysel Şartlar ve Proses İşletim Süresinin Etkisi	70
Çizelge 4.19. 5V-1A Akım Uygulaması ve 1.29 mA/cm ² Akım Yoğunluğu için Deneysel Şartlar ve Proses İşletim Süresinin Etkisi	71
Çizelge 4.20. Değişen Akım Yoğunluklarında Oluşturulan Deneysel Şartlar.....	75
Çizelge 4.21. Debiye Göre EK Prosesinde Enerji Tüketim Maliyeti Toblosu	76

SİMGELER DİZİNİ

A	Amper
A	Aktif anot yüzey alanı cm ²
AC	Alternatif akım Amper (A)
Al	Alüminyum
As	Arsenik
AY	Akım yoğunluğu mA/m ²
DC	Doğru akım Amper
dk.	Dakika
EC	Elektrokoagülasyon
EK	Elektrokoagülasyon
F	Faraday sabiti 96500 C/mol
I	Akım Şiddeti Amper (A)
k	Reaksiyon Hız Sabiti (dak ⁻¹)
kW	Kilowatt
L	Litre
mA	Miliamper
mg	Miligram
pH	Çözeltinin Başlangıç pH'sı
V	Hacim (m ³)
V	Volt
Wh	Elektirik enerjisi Watt.saat
µS	Mikrosiemens

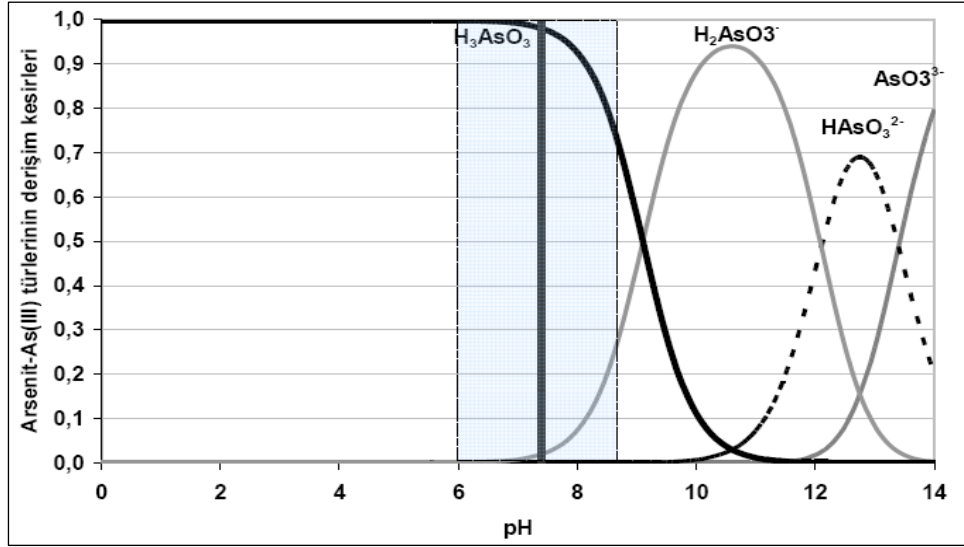
1. GİRİŞ

Konvensiyonel kirleticiler arasında yer alan arsenik, doğada serbest halde bulunabilmesi ve canlı yapısında oluşturduğu değişik toksik etkiler nedeniyle canlılar ve insan sağlığı açısından önemlidir. Yeraltı ve yüzey sularına arsenik karışımı; mineral-kayaç çözünmesi ve volkanik hareketlilik gibi doğal yolların yanı sıra, endüstriyel atıklar, orman yangınları, arsenik içeren tarım ilaçları ve kimyasal maddelerin kullanımıyla da gerçekleşebilmektedir. Ağır metal grubunda yer alan genellikle doğada kristal formda bulunan arsenik metaloid ya da metal olmayan olarak sınıflandırılmaktadır. “As” simgesi ile gösterilmekte ve yer kabuğunda çokça bulunmaktadır. Periyodik cetvelde VA grubunda olup, atom ağırlığı 74,91 ve atom numarası 33’tür (Bissen ve Fritz 2003). Arsenik elementin üç allotropu mevcut olup bunlar siyah, gri ve sarı arseniklerdir. Gri halde bulunan arsenik elementi metalik halde bulunmakta ve kararlıdır, elektriği ise bakırın %5’i kadar iletir, ısıyı çok iyi iletir, doğrudan katı halden buhar haline geçer 613 °C’de (süblimleşir), 36 atmosfer basın ve 817°C’de erir, özgül ağırlığı 5,7 g/cm³tür. Sarı arsenik elementi ametalik halde bulunmakta olup dört atomlu moleküllerden meydana gelmektedir ve uçucudur, buharının ani soğutulması ile elde edilir. Amorf madde yapısına sahip olan siyah renkli arsenik elementi ise ısı ile bozulan arsinin (AsH₃)’den elde edilir (Akdeniz, 2002).

Yazılı kaynaklara göre 1649’da arseniği ilk olarak serbest element olarak tanımlayan kişi Alman Eczacı Johann Schroeder'dir (Yağmur ve Hancı, 2002). Arsenik 0, -3, +3 ve +5 yükseltgenme basamaklarında yer almaktadır (Mohan ve Pittman, 2007). İnorganik ve organik olmak üzere arsenik bileşikleri iki formdadır (Pokhrel ve Viraraghavan, 2006). İnorganik arsenik, arsenik elementine hidrojen karbon bağlanmış haline denir (Erdoğan, 2005). Organik arsenik türleri ise petrol ve doğalgazda bulunur (USEPA, 2002). Deniz canlılarında organik arsenik türleri bulunur ki, insan vücudunda hızlı şekilde ayrışır ve daha az zararlıdır (Ranjan ve ark., 2009). Bunlar, arsenik asit (H₃AsO₄⁻, H₃AsO₄, H₃AsO₄⁻²), arsenoz asit (H₃AsO₃, H₃AsO₃⁻², H₃AsO₃), arsenatlar, arsenitler, dimetilarsinik asit, arsin

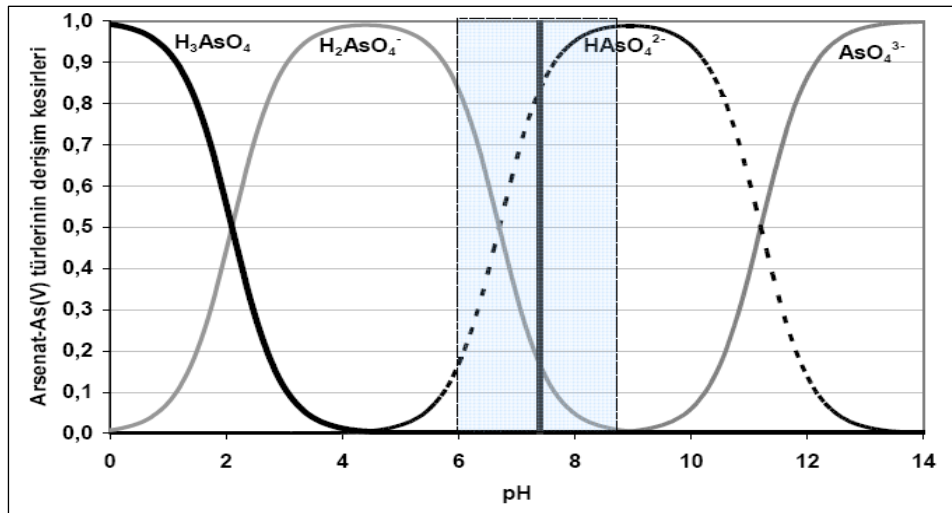
metilarsenik asit gibi türlerdir. Doğal sulara yaygın olarak bulunan türler ikidir. Bunlar; arsenat (AsO_4^{3-}) ve arsenittir (AsO_3^{3-}) ve arsenik elementinin beş değerlikli türleri genel olarak baskın ve aerobik oksijen zengin ortamda kararlıdır. Arsenik elementinin üç değerlikli olanı ise anaerobik indirgen koşullarda bulunan yeraltı sularında baskındır (Mohan ve Pittman, 2007). İnorganik arsenik; element halindeki arsenik kükürt, oksijen veya klorla bileşik oluşturmuş haline denir. İnorganik arsenik türü doğada bulunan kayalarda, toprakta ve kurşun ya da bakır içeren minerallerde, yeraltı ve yüzeysel sularında ve cevherlerde bulunmaktadır. İnorganik arsenik bileşikleri sodyum arsenit, arsenik trioksit, sodyum arsenat, arsenik pentaoksit, metaarsenik asit ve arsenik triklorittir. Arsenik trioksit ekonomik değere sahip olmasından dolayı arsenik bileşikleri içerisinde önemli yer tutar. Arsenik trioksit, suda az çözünmekte; arsenik trioksitin oksitlenmiş formu olan arsenik pentaoksit ise suda kolaylıkla çözünmektedir. Bu grup bileşiklerden arsenik asit ve arseniyöz asit çok kuvvetli oksitleyici maddelerdir. Başlıca gaz formundaki bileşikler, trimetilarsin ve arsin (AsH_3) dir.

Arsenik kimyasının karmaşık olması, çok forma sahip olmasından kaynaklanır. Arsenik elementi doğada kimyasal formunu ve oksidasyon basamağını kolay şekilde değiştirir. Arsenik elementinin değerliğini ve türünü; mikrobiyal aktivite ve redoks potansiyeli, kalsiyum, suyun pH değeri, demir ve sülfür gibi iyonların varlığı etkilemektedir. Redoks potansiyeli (Eh) ve pH, arsenik elementinin türünü kontrol eden önemli parametrelerdir (Shih, 2005). Arsenik doğada 0 ve -3 oksidasyon, +3 değerlikte arsenit ve +5 değerlikte arsenat basamaklarında bulunur. 0 ve -3 değerlikte olan arsenikler doğada nadiren bulunmaktadır (Bissen ve Fritz, 2003). Doğada arsenik kolay bir şekilde kimyasal formunu ve oksidasyon basamağını değiştirir. Arseniğin türünü ve değerliğini redoks potansiyeli, suyun pH değeri, sülfür, mikrobiyal aktivite ve kalsiyum ve demir gibi iyonlar etkilemektedir (USEPA, 2002). As(III) İndirgen ortamlarda (HAsO_3^{-2} , H_3AsO_3 , H_2AsO_3^- , AsO_3^{-3}) iyonlarının var olduğu bilinmekte ve As(V)'in ise yükseltgen ortamlarda (H_2AsO_4^- , H_3AsO_4 , HAsO_4^{-2} ve AsO_4^{-3}) iyonlarının olduğu bilinmektedir (Kumar ve ark., 2004). Üç değerlikli arsenik türlerinin pH'ya karşı değişim grafiği Şekil 1.1.'de sunulmuştur.



Şekil 1.1. Üç Değerlikli Arsenik Türlerinin pH ile Değişen Bulunma Kesirleri (Can, 2010)

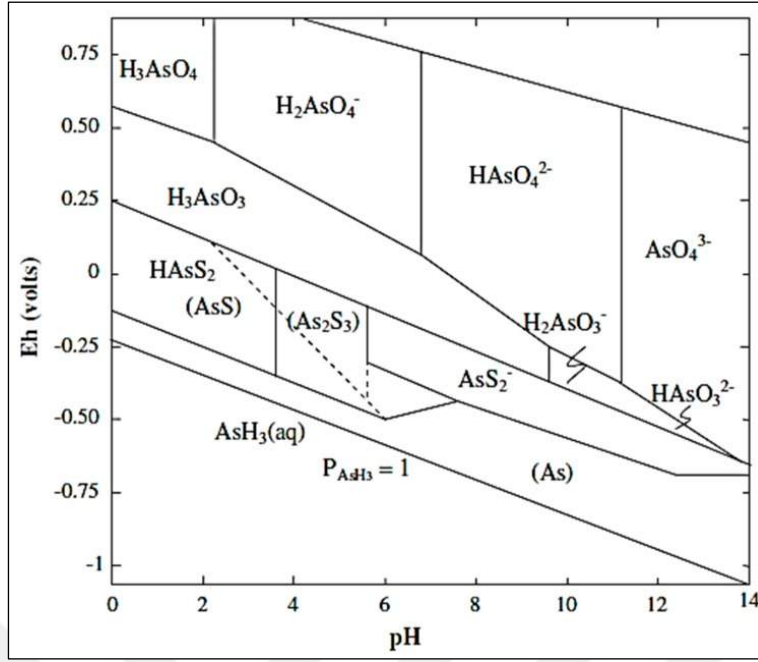
Toplam derişim suyun yaygın pH aralığı olan 6 ve 9 değerleri arasında anyonik $H_2AsO_3^-$, yüksüz H_3AsO_3 ve arsenit türleri tarafından paylaşılır. pH'sı 6 olan su ortamında tamamen H_3AsO_3 türü bulunmakta, pH değeri yükseldikçe $H_2AsO_3^-$ türü de ortaya çıkmaya başlar. pH 9 iken ortamda %30 oranında $H_2AsO_3^-$ ve %70 oranında H_3AsO_3 bulunmaktadır. Suyun değişen pH değerlerine karşılık arsenik türlerinin dağılımı Şekil 1.1'de grafiksel olarak sunulmuştur.



Şekil 1.2. Beş Değerlikli Arsenik Türlerinin pH ile Değişen Bulunma Kesirleri (Can, 2010)

pH değeri 6-9 arasında olan sularda beş değerlikli arsenik ($H_2AsO_4^-$, $HAsO_4^{2-}$) anyonik türler halinde bulunur. İkinci asitlik sabitine ($pK_{a2}=6.7$) eşit pH değerinde ise tek değerlikli $H_2AsO_4^-$ ve iki değerlikli $HAsO_4^{2-}$ anyon türlerinin dağılımları birbirine eşittir. Anyonik türlerin dağılımı, pH değeri 7,4 olan sularda $H_2AsO_4^-$ için %80 oluyorken, $HAsO_4^{2-}$ için %20 olmaktadır.

Arsenik giderim yönteminin seçiminde +3 ve +5 değerlikli türlerinin dağılımının aynı pH değerine sahip suda bulunmalarına rağmen farklı olması arsenik türlendirmenin önemini ortaya koymaktadır. Belirli bir pH değerinde, yukarıdaki grafikler yardımıyla, hangi oranda ya da hangi türün baskın olduğu kolaylıkla söylenebilir. Yükseltgenme gerilimi düzeyi dikkate alınmadığı zaman bu değerlendirme yanıltıcı olabilir. Belirli çözelti derişimlerinde, türlerin ne oranda buldukları, belirli yükseltgenme düzeyi ve sıcaklıkta, elektrokimyasal gerilimlerin hesaplanmasıyla bulunabilir. Elektrokimyasal denklemler yardımıyla aynı yaklaşımla, türlerin indirgenme ya da yükseltgenme sonucunda ortaya çıkan dağılımları da bulunur. Pourbaix diyagramı olarak bilinen bu arsenik türleri için bir örneği Şekil 1.3'de verilmiştir. Bu grafikte çözeltinin pH değeri yatay ekseninde verilmiş ve Redoks potansiyeli (Eh) Volt biriminde dikey ekseninde verilmiştir. +3 değerlikteki arsenit türleri (eksi gerilim değerlerinde) indirgen koşullarda baskındır. +5 değerlikteki arsenat türleri artı gerilim değerlerinde yani yükseltgen koşullarda baskındır.



Şekil 1.3. Arsenik İçin Eh-pH Grafiği (Can, 2010)

Yükseltgenme basamağı, sulu ortamdan arseniğin uzaklaştırılmasının etkinliği açısından önemli faktördür. Yüklü türün seçimliliği birçok ayırma işleminde verimliliği doğrudan etkilemektedir. Sulu ortamda baskın olan 3 değerlikli arseniğin yüksüz türleri, iyonlar arasında düşük seçimliliği nedeninden dolayı birçok ayırma tekniklerinde büyük ölçüde verimi düşürmektedir (Gizli ve Demircioğlu, 2009).

Arsenik bileşikleri elektronikte, tıpta, ziraatta, gıda katkı maddelerinde, metalürjide ve endüstriyel uygulamalarda kullanılmaktadır (Gholami ve ark., 2006). Arsenik ziraat, endüstri ve tıpta bazı faydalı amaçlar için kullanılmasına rağmen çeşitli organizmalar ve insanlar üzerinde kanserojen ve toksik etkisi vardır (Duker ve ark., 2005). Arsenik bileşikleri; sediment, toprak, hava ve su gibi ortamlar arasında, metilleme, degradasyon, indirgenme-yükseltgenme gibi biyo dönüşümlerle; makro algler, mikroorganizmalar, balıklar, omurgasızlar, kuşlar ve karasal bitkiler gibi canlılarda ise biyoakümülyasyonla yayılabilir (WHO, 2001).

Arsenik konsantrasyonu yerkabuğunda ortalama 1,5-5 mg/kg aralığındadır. Toprakta doğal olarak bulunan arsenik için tipik konsantrasyon değeri 0,1-40 mg/kg'dır (ortalama 5-6 mg/kg) (Ning, 2002). Volkanik faaliyetler arseniğin düşük

sıcaklıkta atmosfer ve diğer alıcı ortamlara ulaşmasına sağlayan doğal kaynaktır (WHO, 2001). Arsenikli pestisitlerin kullanımı, ahşap koruyucu ajanlar ve metal cevherlerinin işlenmesi gibi faaliyetler sonucunda As doğrudan çevreye yayılabilir (Choong ve ark., 2007). Arsenik elementinin yaklaşık %80'i 1970'li yıllarda zirai amaçlı kullanılmaktaydı. Zirai amaçla kullanımı son yıllarda azalmıştır ve arsenik bileşiklerinin birçok ülkede zirai alanda kullanımı yasaklanmıştır. DSMA (disodyum metanearsonat) ve MSMA (mono-sodyum metanearsonat) gibi organik bileşikleri hala pamuk bitkisi üretim tarlalarında herbisit ve insektisitlerin içeriğinde kullanılmaktadır (Shih, 2005).

Düşük konsantrasyonlarda bile arseniğin insanlar üzerinde kronik zehirleyici etkisi olmaktadır. Arseniğin büyük bir kısmı içme suları ile insanlar üzerinde etki göstermektedir. (Guo ve ark., 2009). İçme suyundan kaynaklı en büyük arsenik faciası Bengal Deltasında (Bangladesh/West Bengal) insanların arsenik konsantrasyonu yüksek olan içme suyuna maruz kalmasıyla gerçekleşmiş bir olaydır (Rott ve Bardossy, 2009). Şehirlerde içme sularında sınır değer üzerinde arsenik bulunması çeşitli sağlık sorunlarına sebebiyet vermektedir. Kullanma ve içme suları arsenik içermese bile bölgenin jeolojik yapısı toprağın arsenikçe zengin olması su kaynaklarının doğal nedenler sonucunda arsenikçe kirlenmesine neden olmaktadır. 2006 yılı UNDP (Birleşmiş Milletler Kalkınma Programı)'nin İnsani Gelişme Raporunda Türkiye'nin, içme ve kullanma sularında arsenik kirlenmesi ihtimali olan ülkeler arasında yer almaktadır (Serpen, 2008).

Sınır değer üzerinde konsantrasyonlarda arsenik içeren kullanma ve içme sularında kirliliğin giderilmesi ve arıtılması önemlidir. İçme ve kullanma sularından arsenik gideriminde geleneksel arıtım teknolojileri kullanılmaktadır. İçme ve kullanma sularından arsenik arıtım proseslerinden bir kısmı teknik olarak uygun olmakla birlikte, maliyetleri açısından bunların kullanımı kısıtlı olmaktadır (Spellman, 2003). Son yıllarda arsenik giderimi için kullanılan yöntemler arasında elektrokoagülasyon prosesi de yer almaktadır. Bu proses, koagülasyon prosesine benzemektedir ancak ilave koagülanta gerek bulunmamaktadır. Yüksek adsorpsiyon

kapasitesinin yanı sıra daha az alan gerektirmesi ve ek kimyasal gereksinimi olmaması avantajları arasındadır (Lakshmanan ve ark., 2010)

1.1. Problemin Tanımı ve Çalışmanın Önemi

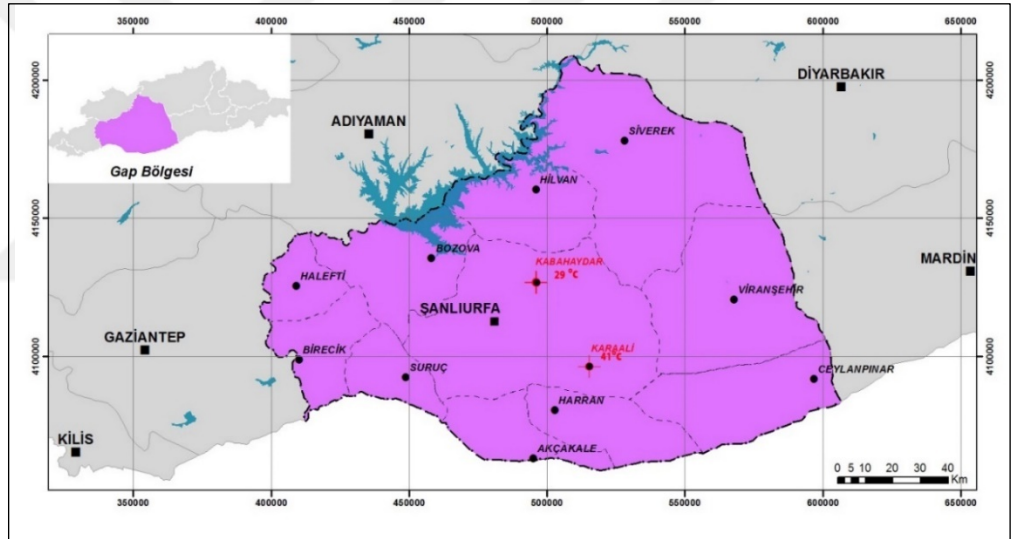
Hızla artan dünya nüfusunun içme suyu ihtiyacını karşılamak için hem yüzey hem de yeraltı su kaynaklarından faydalanılmaktadır. Ülkemiz dâhil birçok ülkede insanlar arsenik içeren yeraltı suları tüketmektedir. Dolayısıyla, içme ve yeraltı sularında arsenik kirlenmesi dünya çapında önemli bir sorun olarak çevre ve insan sağlığını ciddi bir şekilde tehdit etmeye devam etmektedir. Arsenik akut toksisitesi nedeniyle ve buna ek olarak arsenikli sulara uzun süreli maruz kalma sonucunda birçok ciddi hastalığa sebebiyet vermektedir. Dünya Sağlık Örgütü tarafından arsenik için içme sularında müsaade edilen maksimum As konsantrasyonu 10 µg/L olarak belirlenmiştir. Doğal sularda bulunan arseniğin kökeni çoğunlukla jeojeniktir (kayaçların ayrışması, jeotermal aktiviteler vb). Arsenik 200'den fazla mineralin bünyesinde bulunmaktadır. Madencilik faaliyetleri ve tarımsal uygulamalarda arsenik içeren herbisitlerin kullanımı ise diğer önemli arsenik kaynaklarıdır.

Yeraltı sularında arsenik, düşük konsantrasyonlarda yüksek toksisitesi ve ppb seviyelerinde analiz edilmesindeki zorluk nedeniyle sorun oluşturan bir kirleticidir. Gölet çökelleri, volkanik kayaçlar gibi jeolojik oluşumlara bağlı olarak doğal ortamlarda ve bazı bölge yeraltı sularında mevcuttur. Mart 2015 tarihinde Karaali jeotermal sahasından alınan su numunelerinin ağır metal analizinde 10 µg/L limit değerlerinin üzerinde 44 µg/L arsenik tespit edilmiştir ve bu alandaki sıcak suyun kesinlikle içilmemesi gerektiği rapor edilmiştir. Elektrokoagülasyon yönteminin As gideriminde etkili bir metot olduğuna dair literatürde bazı çalışmalar vardır. İşletmedeki basitliği nedeniyle bu çalışmada özellikle EK yöntemi tercih edilmiştir. Elektrokoagülasyon prosesi kirlenmiş suyun arıtılması için elektrokimyasal bir işlemdir ve çok çeşitli kirleticileri uzaklaştırmak için kullanılan bir su arıtma teknolojisidir. Bu tez çalışması kapsamında, bölgemizde jeotermal alandaki (Karaali) yeraltı sularında önemli bir sorun oluşturan arseniğin elektrokoagülasyon yöntemiyle gideriminin araştırılması ve farklı amper ve gerilim şartlarının, pH ve zaman

değişiminin ve tuz ilavesinin As giderimi üzerindeki etkilerinin değerlendirilmesi amaçlanmıştır.

1.2. Karaali Jeotermal Sahası Arsenik Sorunu

Karaali jeotermal sahası, Akçakale grabeni diye tanımlanan alüvyon dolgulu düzlükler ile aralarında yüzeyleyen Eosen ve daha genç çökellerden meydana gelmektedir. Alanın dışında Paleozoyik'ten Eosene kadar değişik yaş ve türünde kaya birimleri mevcuttur. Karaali jeotermal sahası Şanlıurfa ilinin yaklaşık 32 km güneydoğusunda, Harran Ovası'nda yer alan Yardımcı İlçesi'nin doğusunda bulunan Karaali Köyü'nde yer alır (Şekil 1.4.).



Şekil 1.4. Karaali jeotermal sahası lokasyon haritası (GAP, 2015)

Gap ileri jeotermal kaynakları araştırma projesi kapsamında Güneydoğu Anadolu Bölgesi'nde yer alan jeotermal sahaların jeolojik, hidrojeolojik, hidrojeokimyasal özellikleri, kullanım alanları ve potansiyelleri ile ilgili araştırma yapılmıştır. Jeotermal kaynaklar açısından Güneydoğu Anadolu Bölgesi önemli bir paya sahiptir. Bununla birlikte Şanlıurfa (Karaali)'de termal turizm amaçlı olarak sıcak su kaynağından faydalanılmaktadır.

Proje sahasında jeotermal kaynaklardan ve kuyulardan hem fiziksel hem de kimyasal analizler için numune alınmıştır. Numunelerde sıcaklık, pH ve elektriksel iletkenlik gibi parametre ölçümleri yerinde yapılmış ve daha sonra eser element analizleri gerçekleştirilmiştir. Karaali jeotermal sahasındaki akışkandan alınan su numunelerinde ağır metal analizleri de yapılmıştır (Çizelge 1.1.). 44 µg/L ile limit değerlerinin üzerinde arsenik tespit edilmiş ve bu alandaki sıcak suyun kesinlikle içilmemesi gerektiği rapor edilmiştir. Ayrıca molibden (146 µg/L), vanadyum (2406 µg/L) ve selenyum (153 µg/L) konsantrasyonları da yüksek bulunmuştur. Analiz sonuçlarına göre sınır değerinin üzerinde ölçülen As nedeniyle bu alandaki sıcak suyun tüketilmesi sakıncalıdır (GAP, 2015).

Çizelge 1.1. Karaali Sıcak Akışkanında Ölçülen Elementlerin Konsantrasyonları (GAP, 2015)

Element	Konsantrasyon (ppb)	İTASHY* (ppb)	Element	Konsantrasyon (ppb)	İTASHY* (ppb)
Karaali			Karaali		
Ag	<0,05		P	<10	
Al	1	200	Pb	<0,1	10
As	44	10	Pd	<0,2	
Au	<0,05		Pt	<0,01	
B	211	1000	Rb	8,04	
Ba	89,2		Re	1,34	
Be	<0,05		Rh	0,03	
Bi	<0,05		Ru	<0,05	
Br	265		S	30	
Cd	0,18		Sb	5,17	5
Cl	51		Sc	2	
Co	7,77		Se	153,1	10
Cr	0,6	50	Si	12848	
Cs	1,81		Sn	<0,05	
Cu	3,1		Sr	1196,35	
Fe	39	200	Ta	<0,02	
Ga	0,58		Te	<0,05	
Ge	0,39		Th	<0,05	
Hf	<0,02		Ti	<10	
Hg	<0,1		Tl	2,06	
In (İndiyum)	<0,01		U	58,24	
Li	33,8		V	2405,8	
Mn	3,15	50	W	0,06	
Mo	146,4		Zn	25,2	
Nb	<0,01		Zr	<0,02	
Ni	114	20			

* İnsani Tüketim Amaçlı Sular Hakkında Yönetmelik (İTASHY)

1.3. EK Prosesi

Elektrokoagülasyon, yaygın olarak kullanılan elektrokimyasal bir prosesdir ve çözünebilen metal özelliğe sahip demir ve alüminyum gibi elektrotların kullanıldığı elektrokimyasal bir atıksu arıtım süreci olarak tanımlanabilir (Koparal ve ark. 1999). Elektrokoagülasyon prosesi demir ve alüminyum gibi elektrot malzemenin elektriksel olarak suda çözünmesiyle koagülantların oluşturulması prensibine dayanmaktadır. Demirin veya alüminyumun ortama ilave şekli kimyasal koagülasyon ile elektrokoagülasyonu birbirinden ayıran en önemli farktır (Donini ve ark., 1994). Elektrokoagülasyonda çökelme ve pıhtılaşma mekanizmaları, kimyasal maddenin sisteme ilavesi edilmesi ile değil, elektrotlar aracılığı ile elektrokimyasal reaktörde gerçekleşmektedir (Koparal ve ark., 1999). Dolayısıyla elektrokoagülasyon prosesi; süspansiyonların, emülsiyonların ve kolloidlerin elektriksel yüklerden etkilenmesi prensibine dayanır.

Elektrokoagülasyon prosesi, lignin ve EDTA gibi dirençli organik kirleticiler ve besin endüstrisi atıksuları, yağlı atıklar, ağır metal, flor bileşikleri, tekstil boyar maddeleri, polimerik atıklar, süspansiyon partikülleri, organik maddeler, nitrat, fenolik bileşikler gibi birçok endüstriyel atıksu arıtımında kullanılmakta ve bu uygulamaların yanı sıra prosesten içme sularının arıtımında da yararlanılmaktadır.

Elektrokoagülasyon prosesinin avantajları:

- Gerekli ekipmanlar karmaşık bir yapıya sahip olmayıp sistem basit ve işletilmesi kolaydır.
- Çıkış suyu renksiz, temiz ve kokusuz olup, arıtılmış su kalitesine sahiptir.
- İşlem neticesinde oluşan çamur hidroksitlerden ve/veya yüksek miktarda metal oksitlerden meydana geldiğinden dolayı filtrelenebilir ve çöktürülebilir özelliktedir.
- Elektrokoagülasyon prosesi ile arıtım sonucunda kimyasal olarak oluşan yumaklara benzer yapıda yumaklar oluşmakta ancak boyut olarak büyük yapıdadırlar.

- Asitlere karşı dayanıklı ve daha az bağlı su bulundurma eğiliminde olup, kararlı yapıya sahiptirler.
- Elektrokoagülasyon işlemi neticesinde toplam çözünmüş katı madde içeren artırılmış su elde edilebilir.
- Uygulanan elektriksel alan su içerisindeki yüklü taneciklerin daha hızlı hareket etmesini sağlayarak taneciklerin yumak oluşturmalarını kolaylaştırır.
- Kimyasal madde kullanılmadığından, elektrokoagülasyon prosesinde ikincil bir kirlenme problemi oluşmamaktadır. Elektroliz esnasında gaz kabarcıklarının oluşmasıyla ve bu gaz kabarcıkları yardımıyla kirleticiler çözeltinin üst kısmına kolaylıkla taşınarak çözümlerden uzaklaştırılabilir.
- Elektrokoagülasyon prosesi, elektrik olmayan bölgelerde yenilenebilir enerji ile örneğin güneş panellerinin kullanımı ile rahatlıkla uygulanabilir bir yöntemdir (Mollah ve ark., 2001).

Elektrokoagülasyonun dezavantajları:

- Elektrokoagülasyonun prosesinde yükseltgenme neticesinde anot elektrodu çözünür ve sürekli olarak anot elektrodun yenisi ile değiştirilmesi gerekir.
- Elektrokoagülasyon prosesinde elektrik maliyeti yüksek olabilir.
- Arıtımın yapılabilmesi için suyun yüksek iletkenliğe sahip olması gerekir.
- Hidroksitler jelimsi yapıda olabilir ve bazen çözünme eğilimi gösterebilirler (Mollah ve ark., 2001).

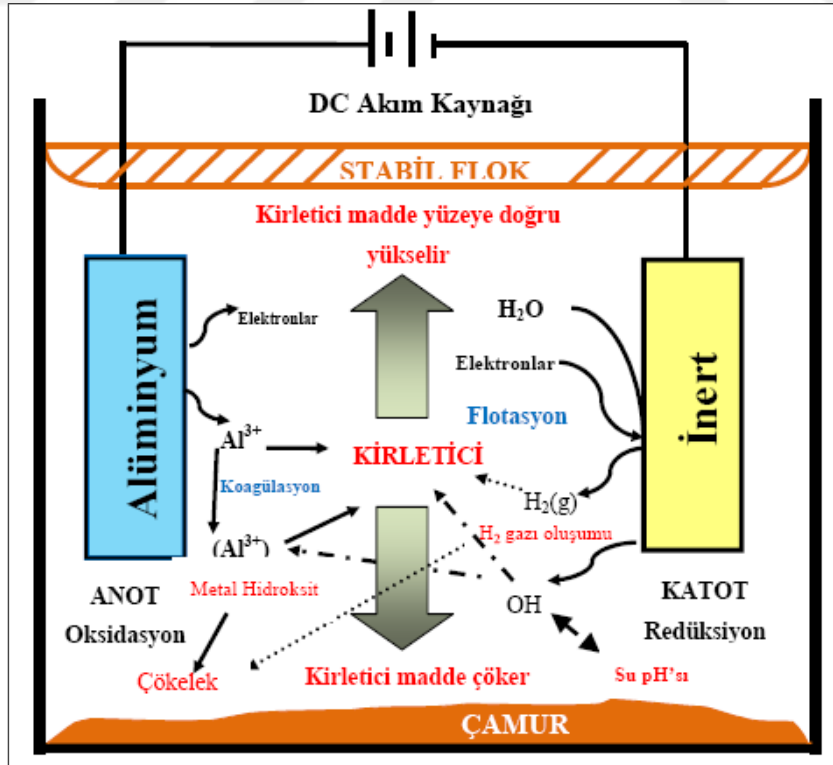
1.3.1. EK teorisi

Parekh (1979); Joffe ve Knieper (2000); Mollah ve ark. (2001), tarafından Elektrokoagülasyon prosesinin teorisi ele alınmıştır. Elektrokoagülasyon prosesinde adsorpsiyon, yumaklaştırma (koagülasyon), yüzdürme ve çöktürme prosesleri genel mekanizmada bulunur. Sulu ortama elektrik akımı verilmesi ile stabilize olmuş kirleticiler elektrokoagülasyon prosesinde flotasyonla ve çöktürme ile giderilmektedir. Metal hidroksitlerin oluşmasıyla sistemde arıtım başlamaktadır. Elektrokoagülasyon prosesinde adsorpsiyon kapasitesi yüksek olan metal hidroksitler suda bulunan değişik kirleticileri adsorbe ederek çökelti ve flok şeklinde sudan

uzaklaştırmaktadır. Elektrokoagülasyon prosesinde metal levhaların katot yüzeyinde oluşan hidrojen gazı kabarcıkları yumaklara yapışarak onları reaktörün üst kısmına doğru kaldırarak yüzmeye zorlar. Bu da elektrokoagülasyon prosesinde reaktörde suda bulunan bazı kirleticilerin elektroflotasyon ile sudan uzaklaştırıldığıının kanıtıdır.

Elektrokoagülasyon reaktöründe gerçekleşen reaksiyonlar ve olaylar Şekil 1.5.'te gösterilmiştir. Genellikle sudaki kirleticilerin giderilme sırasının ard arda üç aşamadan oluştuğu kabul edilmektedir (Can, 2010).

1. Elektrokoagülasyon prosesinde anodun elektrolitik olarak yükseltgenmesi sonucunda yumaklaştırıcının oluşması,
2. Elektrokoagülasyon prosesinde suda bulunan askıdaki partiküllerin destabilizasyonu, kirleticilerin ve emülsiyonların kırılması.
3. Elektrokoagülasyon prosesinde suda destabilize olmuş bileşenlerin yumaklar oluşturarak bir araya gelip çökmesi veya hidrojen kabarcıkları aracılığı ile yüze çıkması.



Şekil 1.5. Elektrokoagülasyon Prosesinde Meydana Gelen Reaksiyonlar (Can, 2010)

Süspanse haldeki partiküllerin ve kirleticilerin parçalanma mekanizması ve destabilizasyon mekanizması aşağıda maddeler halinde özetlenmiştir (Can, 2010).

1. Elektrokoagülasyon prosesinde yüklü taneciklerin etrafındaki difüze çift tabakanın sıkıştırılması sudan geçirilen akım sebebi ile su içerisinde bulunan anot elektrot yüzeyinde çözünen iyonların etkileşimi ile sağlanmaktadır.

2. Atıksuda yükün nötralize edilmesi suda bulunan iyonik türler sayesinde olmaktadır. Su ortamındaki tanecikler arasındaki itme kuvvetlerini suda bulunan zıt iyonlar azaltarak, Van Der Waals çekim kuvvetleri ile sudaki taneciklerin birbirlerine yaklaşmalarına ve pıhtılaşmalarına imkan verir. Sonuçta net yük “sıfır” olur.

3. Pıhtılaştırma ve yumak oluşumu sonucunda oluşan kütle bir çamur örtüsü oluşturarak henüz suda kompleks oluşturmamış kolloidal tanecikler arasında köprü oluşturur.

Elektrokoagülasyon hücresinde belirtilen reaksiyonlara ilaveten aşağıdaki reaksiyonlar da gerçekleşebilir:

- Katodik olarak sudaki kirleticilerin indirgenmesi
- Sudaki koloidal partiküllerin koagülasyonu ve deşarjı
- Elektroforetik olarak sudaki iyonların taşınımı
- Elektrotlarda oluşan hidrojen (H_2) ve oksijen (O_2) gazları yardımı ile koagüle olmuş partikül kirleticilerin elektroflotasyonu
- Katotta metal iyonlarının indirgenmesi
- Diğer kimyasal ve elektrokimyasal prosesler

Sistemin verimi üzerine elektrot malzemesinin seçimi çok önemli etkiye sahiptir. Alüminyum ve demir metalleri en yaygın elektrot malzemesi olarak kullanılmaktadır. Alüminyum ve demir özellikle kolay bulunabilen, etkili ve ucuz olan elektrot malzemelerdir (Can, 2010). Elektrokoagülasyon prosesinde anot elektrotunda çözünen Al ve Fe iyonları Al^{+3} ve Fe^{+2} formlarına yükseltgenmekte, katot elektrotunda ise suyun elektrolizi sonucunda OH^- ve H^+ iyonları oluşmaktadır (Şekil 1.5). Çözelti içine difüzlenen OH^- iyonları Al^{+3} ve Fe^{+2} iyonları ile tepkime vererek $Al(OH)_3$ veya $Fe(OH)_2$ bileşikleri oluşturur. Suda bulunan kolloidal ve

organik kirleticiler bu esnada, oluşan $\text{Al}(\text{OH})_3$ veya $\text{Fe}(\text{OH})_2$ kompleksleriyle birleşip flok oluşturarak yer çekimi etkisiyle eşzamanlı olarak çöker (Chen, 2004).

Alüminyumun elektrot malzemesi olarak kullanıldığında reaksiyonlar (Yıldız, 2003):

Anotta:



Katotta:



Çözeltide:



Bu reaksiyonlarla birlikte sulu ortamın pH değerine bağlı olarak sulu ortamda reaksiyon sonucu $\text{Al}_2(\text{OH})_2^{+4}$, $\text{Al}(\text{OH})^{+2}$ ve $\text{Al}(\text{OH})_4^-$ bileşikleri gibi diğer bazı alüminyum bileşik türleri görülebilir. Al^{+3} iyonlarının hidrolizi ile $\text{Al}(\text{H}_2\text{O})_6^{+3}$, $\text{Al}(\text{H}_2\text{O})_4\text{OH}^{+2}$, $\text{Al}(\text{H}_2\text{O})_5\text{OH}^{+2}$ ve geniş pH aralığında hidroliz ürünleri $\text{Al}_2(\text{OH})_2^{+4}$, $\text{Al}(\text{OH})^{+2}$, $\text{Al}(\text{OH})_2^+$, $\text{Al}(\text{OH})_4^-$, $\text{Al}_6(\text{OH})_{15}^{+3}$, $\text{Al}_7(\text{OH})_{17}^{+4}$, $\text{Al}_{13}(\text{OH})_{34}^{+5}$, $\text{Al}_8(\text{OH})_{20}^{+4}$, $\text{Al}_{13}\text{O}_4(\text{OH})_{24}^{+7}$, gibi birçok polimerik ve monomerik türleri oluşturabilirler (Can, 2010).

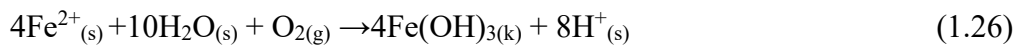
Anot olarak demir elektrot kullanılması durumunda sulu ortamda anotta $\text{Fe}(\text{OH})_n$ 'in reaksiyonun oluşumunda iki farklı mekanizma öne sürülmektedir. ($n=2$ veya $n=3$ olmak şartı ile) Katotta $\text{Fe}^{+3}_{(aq)} + 3\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{Fe}(\text{OH})_{3k} + 3\text{H}_2 + (\text{aq})$ reaksiyon gerçekleşirken çözelti ve anot reaksiyonları ise aşağıda verildiği şekilde oluşmaktadır.

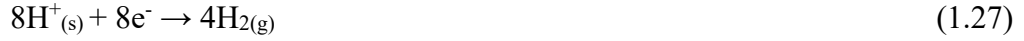
1. Mekanizma:

Anot:

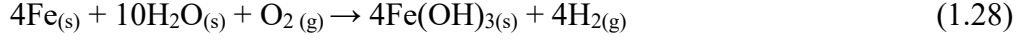


ve çözültideki çözülmüş oksijen ile;



Katot:

Nihai olarak toplam reaksiyon ise



Şeklinde özetlenebilir.

2. Mekanizma:**Anot:****Katot:**

Nihai olarak toplam reaksiyon ise



Şeklinde özetlenebilir.

Su ortamının pH değerine bağlı olarak ve demir elektrodun elektrokimyasal oksidasyonu sonucunda üretilen demir iyonları su ortamında $\text{Fe}(\text{H}_2\text{O})_4(\text{OH})_2^+$, $\text{Fe}(\text{H}_2\text{O})_6^{+3}$, $\text{Fe}_2(\text{H}_2\text{O})_8(\text{OH})_2^{+4}$, $\text{Fe}(\text{H}_2\text{O})_5(\text{OH})^{+2}$, ve $\text{Fe}_2(\text{H}_2\text{O})_6(\text{OH})_4^{+4}$ polimerik iyonlarını ve $\text{Fe}(\text{OH})_3$ monomerik iyonlarını oluşturabilir. Su ortamının pH'sına bağlı olarak demir iyonları hidrate olabilir ve düşük pH'ya bağlı olarak asidik koşullar altında $\text{Fe}(\text{OH})^{+2}$, $\text{Fe}(\text{OH})_3$ ve $\text{Fe}(\text{OH})_2^+$ bileşiklerini oluşturabilir. Ayrıca $\text{Fe}(\text{OH})_4^-$ ve $\text{Fe}(\text{OH})_6^-$ iyonları alkali koşullar altında görülebilir (Mollah ve ark., 2001).

Redoks reaksiyonu ile su ortamında üretilen hidrojen gazı (H_2), askıdaki veya çözülmüş maddeleri flotasyon yoluyla giderebilir. Su arıtımında demir iyonlarının alüminyum iyonlarına göre avantajı toksik etkisinin olmamasıdır (Mollah ve ark., 2001).

1.3.2. EK'ya etki eden parametreler

Sulu ortamın kimyası ile sulu ortamın iletkenliği bir ilişki içerisinde dir Bunun yanı sıra etkin parametreler arasında; tanecik boyutu, kimyasal bileşenlerin konsantrasyonları ve pH sayılabilir (Mollah ve ark., 2001). Elektrokoagülasyon prosesine etki eden parametreler aşağıda açıklanmıştır (Can, 2010).

Akım yoğunluğu ve elektriksel yük: Akım miktarı elektrokoagülasyon sisteminde, metal elektrotlardan ayrılan Fe^{+2} ve Al^{+3} miktarını belirler. Elektrokimyasal eşdeğer kütle demir için 1041 mg/(Amper saat), alüminyum için 335,6 mg/(Amper saat)'dir. Elektrokoagülasyon prosesinde en önemli işletme gideri elektrik enerjisidir. Bu nedenle yüksek akım elektrik enerjisinin fazla harcanması demektir. Çok yüksek düzeyde akım yoğunluğu, akım veriminde önemli düzeyde azalmaya neden olmaktadır. Akım verimliliğinin yüksek olmasını sağlamak için akım yoğunluğu seçiminin yanı sıra işletme parametreleri olan sıcaklık ve pH'nın da düzenlenmesi gerekir. Elektrokoagülasyon prosesini kesintisiz uzun süre çalıştırmak için akım yoğunluğu 2-2,5 mA/cm² olarak önerilmektedir. Akım verimi demir için %100 iken alüminyum için %120-140 civarındadır. Elektrokoagülasyon prosesinde akım veriminin alüminyum elektrotlarda yüksek olmasının nedeni amfoter bir metal olma özelliğinden kaynaklanmaktadır. Elektrokoagülasyon prosesinde arıtılmış suyun kalitesi, elektriksel yüke veya üretilen iyonların miktarına (mg), zamana ve akım verimine bağlıdır.

NaCl'nin varlığı: Genelde atıksuyun veya arıtılacak suyun iletkenliğini artırmak için tuz kullanılır. Tuz ilavesi ile su ortamında klorür iyonları elektriksel yüke katkıda bulunurken ortamda bulunan ve olumsuz etkisi olan SO_4^{-2} ve HCO_3^{-} gibi anyonların etkileri de büyük oranda azaltılmış olur. Su ortamında bulunan Ca^{+2} ve Mg^{+2} iyonları elektrotların yüzeyinde izolasyon tabakası oluşturmakta ve su ortamında bulunması durumunda sülfat veya karbonat iyonları Ca^{+2} ve Mg^{+2} iyonlarını çöktürmektedir. Suda bulunan Ca^{+2} ve Mg^{+2} iyonlarının oluşturduğu izolasyon tabakası ise demir ve alüminyum elektrotlar arasındaki potansiyeli attırmakta ve akım verimini önemli bir ölçüde düşürmektedir. Elektrokoagülasyon

işleminde bu nedenle mevcut anyonlar içinde atıksu ve su arıtımında normal çalışmayı sağlamak için Cl^- 'nin %20 oranında olması gerekir. İletkenliği arttırmak elektrik tüketiminin azalmasını sağlamaktadır. Suyu NaCl ilave edilmesi sonucunda ortamda elektrokimyasal olarak üretilen klor aynı zamanda suyun dezenfeksiyon edilmesinde etkilidir.

pH'nın etkisi: Elektrokoagülasyon üzerine atıksu veya su pH'sının etkisi hem metal hidroksitlerin çözünürlüğü hem de akım verimi üzerinden olmaktadır. Genellikle su ortamının alkali ya da asidik şartlarda alüminyumun akım verimi nötral durumdan daha yüksektir. Elektrokoagülasyon sisteminde nötral pH'da iletkenliğin değişiminden dolayı enerji tüketimi yüksektir. Elektrokoagülasyon sisteminde pH'nın etkisi iletkenliğin yüksek olduğu durumlarda önemsizdir.

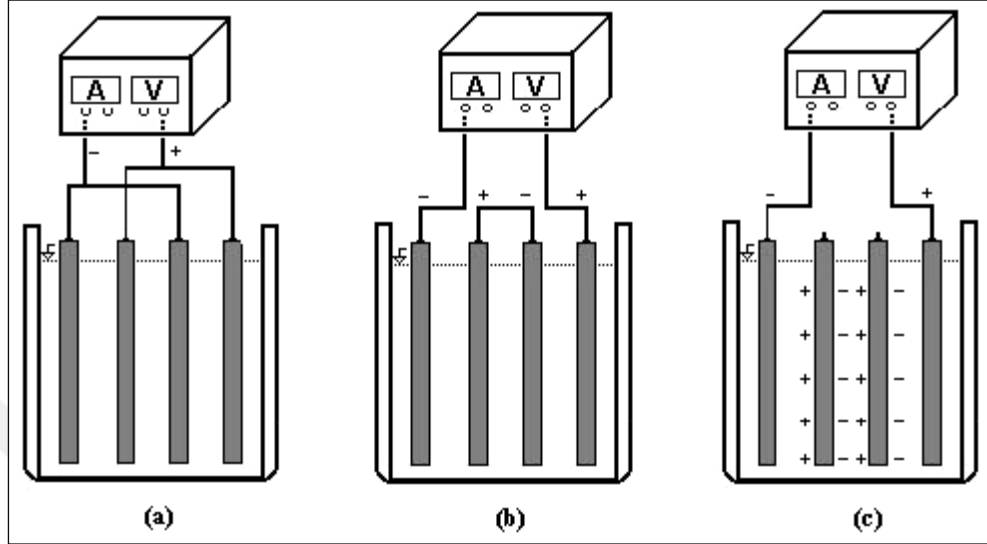
Sıcaklık: Literatürde yapılan çalışmalar, elektrot olarak alüminyumun kullanılması durumunda sıcaklığın $60^{\circ}C$ 'ye kadar artmasıyla akım veriminin arttığını göstermektedir. Suda daha fazla sıcaklık artışı elektrokogülasyon sisteminin arıtım veriminin düşmesine neden olur. Elektrokoagülasyon veriminin sıcaklıkla artışına neden olarak, elektrot yüzeyindeki alüminyum oksit filminin sıcaklığın etkisi ile yok olması gösterilebilir.

Güç kaynağı: Genellikle elektrokoagülasyon sistemlerinde doğru akım (DC) güç kaynağı kullanılmaktadır. Güç kaynağından proseste uygulanacak gerilim (Volt) ve akım (Amper) ayarlamaları ve kontrolü için kullanılmaktadır.

1.3.3. EK işleminde elektrot düzenlemeleri

Elektrokoagülasyon reaktörü en basit şekilde anot ve katottan oluşan elektrotların elektrolit içine daldırılmış hali ile ifade edilebilir. Elektrokoagülasyon reaktöründe su içerisinde bulunan alüminyum veya demir katot ve anot elektrotlar güç kaynağına bağlanmaktadır. Elektrokoagülasyon prosesinde anotta oksidasyon gerçekleşeceğinden anot elektrotunda elektrokimyasal olarak çözünme meydana gelmektedir. Katot elektrodu da pasivizasyona maruz kalacaktır. Arıtım için

elektrotların geniş yüzey alanına sahip olmaları gerekir. Katot ve anot elektrotlar tek kutuplu (monopolar) seri veya paralel bağlanmak suretiyle elektrokimyasal reaktörler oluşturulabilir. Bu bağlantı şekilleri aşağıda verilmiştir.



Şekil 1.6. EK Sistemleri, (a) MP-P sistemi, (b) MP-S sistemi, (c) BP-S sistemi.

Paralel bağlı monopolar elektrotlar (MP-P) (Şekil 1.6a): Düzenekte akım katot ve anotların paralel bağlantı düzeninde her bir hücrenin direncine göre bölünür. Böylece, seri bağlantıya oranla daha düşük potansiyel fark gereklidir.

Seri bağlı monopolar elektrotlar (MP-S) (Şekil 1.6b): Bu reaktör düzeninde dahili olarak her bir elektrot çifti birbirine bağlanmaktadır. Seri bağlantıda her bir hücre gerilimi toplamaktadır ve verilen akım için yüksek potansiyel fark gerekmektedir.

Seri bağlı bipolar elektrotlar (BP-S) (Şekil 1.6c): Bu sistemde sadece dış elektrotlar güç kaynağına bağlıdır ve iç kısımdaki iki elektrotta elektrik bağlantısı yoktur. İç kısımda bulunan bipolar ve dış kısımda bulunan elektrotlar monopoldür. Bu bağlantı şekli, bakımı kolay proses süreci ve kolay kurulumu olduğu için avantajlıdır.

1.3.4. EK hücresinin dizaynı

Elektrokoagülasyon hücresinin dizaynı prosten maksimum verim elde etmek için çok önemlidir. Bu problemle ilgili olarak elektrot yüzeylerindeki hidrojen ve oksijen gazı kabarcıklarının birikmesi, elektrotlar arasındaki IR-düşüşü, elektrotlar arasındaki boşlukta kütle transferi için oluşan engeller en düşük seviyeye indirilmelidir (Jiang ve ark., 2002).

IR-düşüşü elektrot geometrisine, elektrotlar arası mesafeye ve elektrolit çözeltisinin iletkenliğine bağlıdır. IR-düşüşünden kaynaklanan hata miktarı asgari seviyeye üç farklı şekilde indirilebilir;

- Elektrolit çözeltisinin iletkenliğinin artırılması
- Elektrotlar arasındaki mesafenin azaltılması
- IR-düşüşünü karşılayacak elektronik gerecin tasarlanması

Hidrojen ve oksijen gazları, anot ve katotta gaz kabarcıkları formunda tekâmül eder. Buldukları alanı izole eden hidrojen ve oksijen gazları kabarcıklarına ve bunun yanı sıra elektrot yüzeylerinde birikmelerine izin verilir ise, bu durum hücrelerin elektriksel direncinin artmasına neden olur. Direnç artması sonucunda optimum giderim koşullarına ulaşmak için daha fazla elektrik enerjisi sarfiyatı olur. Elektrolitik akıştaki gaz kabarcıklarının elektrot etrafında birikmesini en düşük seviyeye indirmek için bu bölgeden gaz kabarcıklarının uzaklaştırılması gerekir. Akışın türbülans seviyesi yükseltilerek elektrokoagülasyon hücresinde, kütle transferi azami seviyeye çıkarılabilir. Elektrokoagülasyon prosesinde elektrot plakaların yüzeyinde oluşabilecek pasifleşme tabakasının kalınlığını türbülans seviyedeki akış azaltabilir.

Maliyeti düşürmek için önemli etkenlerinden biri elektrokoagülasyon prosesinde IR düşüşünü asgari seviyeye indirmektir. İstenmeyen akım zayıflığının ortaya çıkması tüm akım etkinliğini azaltan, anotta oksijen gazının oluşumudur. Bu

problem, anodik malzeme olarak daha yüksek potansiyel gösteren uygun bir malzemenin seçilmesi ile giderilmiş olur (Mollah ve ark., 2004).

1.3.5. EK prosesinde alternatif akım (AC) ve doğru akım (DC)

Doğru akım kullanılan elektrokoagülasyon prosesinde sıklıkla karşılaşılan ve elektrotların etkinliğini kaybetmesine neden olan iki problem vardır. Bunlar;

- Anodun etkinliğinin yükseltgenme sebebi ile azalması
- Geçirimsiz oksit tabakasının katot yüzeyinde oluşumu

Doğru akım elektrokoagülasyon prosesinin bu problemleri, elektrokoagülasyon prosesindeki hücrelere paralel levhalar “kurban elektrotlar” yerleştirilmesi ile belirli bir seviyeye kadar azaltılmaktadır. Seçenek olarak alternatif akım elektrokoagülasyon tekniğinin kullanımı bu problemlerin azaltılmasında bir diğer seçenektir. Elektrokoagülasyon prosesinde alternatif akım kullanılmasının, belirli periyotlarda elektrotların katot ve anot sıralamasını değiştirmesi nedeni ile yukarıda bahsedilen pasifleşme problemini önleyeceğine ve kabul edilebilir bir elektrot ömrü sağlayacağına inanılmaktadır (Yıldız, 2003).

2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR

2.1. Elektrokoagülasyon Prosesi ile Sulardan Arsenik Giderimi

Elektrokoagülasyon yönteminin sulardan arsenik gideriminde kullanımı oldukça yenidir. Elektrokoagülasyon prosesi ile yapılan çalışmalarda atık sulardan ve yeraltı sularından arsenik gideriminde elektrot olarak alüminyum, titanyum, çelik ve demir elektrotlar kullanılarak %98-99 oranında giderim sağlanmıştır (Parga ve ark., 2005a, 2005b).

Kumar ve ark. (2004), yaptıkları çalışmada arsenat ve arsenit gideriminde alüminyum, titanyum ve demir elektrotlar kullanmışlar ve en yüksek arsenik giderim verimine (%99) demir elektrotlar kullanarak yaptığı denemelerle ulaşmışlardır. Yaptıkları denemelerde arseniğin giderim süresi açısından akım yoğunluğunun 0,65 mA/cm²'den ve 1,53 mA/cm²'ye çıkarılması süreyi kısaltırken pH'nın etkisi pH=6-8 aralığında olmamıştır.

Ihoş ve ark. (2005) tarafından yapılmış olan çalışmada 100 µg/L As (III) konsantrasyonun, pH=7 de, 0,01 M NaCl destek elektrolit kullanılarak giderimi araştırılmıştır. Akım yoğunluğu olarak 25, 50 ve 150 A/m² değerlerinde, değişen elektroliz sürelerinde (5, 10, 15, 30 ve 60 dakika) ve alüminyum elektrot ile farklı denemeler yapılmıştır. Ayrıca aynı şartlarda elektrokoagülasyon prosesinde kullanılarak kimyasal koagülasyon denemeleri de yapılmıştır. Kimyasal koagülasyonda %30-40 oranında, elektrokoagülasyonda ise %90'ın üzerinde arsenik giderimi elde edilmiştir. Kumar ve ark. (2004), tarafından yapılmış olan karşılaştırmalı demir klorür'lü koagülasyon ve eletrokogülasyon çalışmasında As (V) gideriminde her iki proses verimlerinin birbirlerine çok yakın çıktığı görülürken, As (III) gideriminde ise elektrokoagülasyon prosesinin daha iyi olduğu belirtilmiştir.

Hansen ve ark. (2006), tarafından; paralel bağlı demir plaka elektrotlar, sürekli akışlı elektrokoagülasyon reaktörü ve çöktürme havuzundan oluşan arıtım sisteminde

arsenik giderim çalışmaları yapılmıştır. 100 mg/L As(V) konsantrasyonu, 9 dakikalık alıkonma süresinde ve 1,2 A/cm² akım yoğunluğunda 2 mg/L'nin altına düşmüştür. Denemelerde 3 L/saatlik bir akış hızı ve doğru akım her 2 dakikada bir yer değiştirmiştir. Akım yoğunluğunun 0,8'den 1,2 A/cm²'ye yükselmesi sonucunda OH⁻ ve Fe⁺³ miktarlarında artma meydana geldiğinden dolayı arsenik giderim verimi de artmıştır. Akım yoğunluğunu maksimum değerin üzerine çıkarınca elektrokoagülasyon sistem veriminde değişiklik olmamıştır. Bunun nedeni, elektrotların en yüksek akım yoğunluğunda pasifize olması olarak açıklanmıştır.

Gomes ve ark. (2007), konsantrasyonu 1-1000 ppm aralığındaki arsenik ve pH 4-10 aralığında demir (Fe)-alüminyum (Al) elektrotları kullanarak yaptıkları elektrokoagülasyon denemelerinde, oluşan elektrokimyasal ürünün analizini XPS, XRD, FT-IR, SEM/EDAX, Mössbauer spektroskopisi ile yapmışlar ve lepidokratit (FeO(OH)), kristalimsi manyetit (Fe₃O₄), demiroksit (FeO) gibi demir oksit yapılarını ve diaspor (AlO(OH)), mansfildit (AlAsO₄.2H₂O) bayerit (Al(OH)₃) gibi alüminyum oksit bileşiklerini tespit etmişlerdir. Flokların içinde çok iyi şekillenmiş fazlar ya da şekilsiz (amorf) fazlar tespit etmişler ve oluşan flokların yüzeyinde demir (Fe⁺³) iyonlarının alüminyum (Al⁺³) iyonlarıyla yer değiştirdiğini gözlemlemişlerdir. Arseniğin oluşan bu alüminyum ve demir metal oksihidroksitlerin ve hidroksitlerin üzerinde adsorplandığı tespit edilmiştir.

Hansen ve ark. (2007), sürekli akımlı reaktör, hava kaldırmalı reaktör ve türbülans akımlı reaktörler ile yapılmış olan denemelerinde; reaktör tasarımlarının arsenik giderim verimi üzerindeki performanslarını karşılaştırmışlardır. 1,2 A/dm² akım yoğunluğunda, 100 mg/L başlangıç As(V) konsantrasyonunun hava kaldırmalı reaktör ve sürekli akımlı reaktörde 2 mg/L'nin altına düşürülebildiği (%98 verim), aynı giderim verimine türbülans akımlı reaktörde ulaşamadığı gösterilmiştir.

Basha ve ark. (2008), tarafından gerçekleştirilen çalışmada; sülfat, ağır metal ve arsenikçe zengin atıksularda bulunan kirleticilerin iyon değişimi prosesinden hemen sonra uygulanan elektrokoagülasyon prosesi ile giderimi incelenmiştir. Yapılmış olan denemelerde 1,5 A/dm² akım yoğunluğunda, arsenik konsantrasyonu

1000-2000 ppm iken pH 4-10 aralığında çelik elektrotlar ile yapılan elektrokoagülasyon çalışmasında arsenik konsantrasyonu 10-20 ppb'ye kadar inmiştir. Kumar ve Goel (2010), ise yaptıkları çalışmada nitrat ve arsenik içeren sulardan sürekli akışlı elektrokoagülasyon sisteminde 20 V'da %75 arsenik giderimi ve 25 V'da %84 nitrat giderimi elde etmişlerdir.

Balasubramanian ve ark. (2009), elektrokoagülasyon prosesinde çelik elektrot kullanarak sulu çözeltilerden arsenik gideriminde %94 oranında arsenik giderim verimi elde etmişlerdir. Balasubramanian ve Madhavan (2001), tarafından yapılan çalışmada arsenik ihtiva eden metal döküm endüstrisi atıksularının elektrokoagülasyon prosesinde çelik elektrotlar kullanılarak giderilebilirliği çalışılmıştır. Denemeler hava enjeksiyonsuz ve hava enjeksiyonlu olmak üzere iki şekilde gerçekleştirilmiştir. Hava enjeksiyonsuz denemelerde 7 saatte etkili bir arsenik giderimine ulaşılırken hava enjeksiyonlu denemelerde ise bu süre kısalmış ve buna ilaveten atık miktarı minimum olmakla birlikte düşük maliyetli arıtım sağlanmıştır.

Lakshmipathiraj ve ark. (2010), tarafından yapılmış olan çalışmada demir elektrot ile Na_2SO_4 , NaCl ve NaNO_3 gibi destek elektrolitlerin bulunduğu su ortamından arsenik giderimi çalışmaları yapılmıştır. Na_2SO_4 ile %75, NaCl ile %98 oranında arsenik giderimi elde edilmiştir. EK esnasında oluşan flokların analizi SEM-EDAX, FT-IR, XPS, XRD ve manyetometre ile yapılmış ve analiz sonucunda demir hidroksit flokları lepidokratit ve maghemit olarak tanımlanmıştır. Arsenik adsorpsiyonunda demir oksihidroksit çökeleğinin partikül boyutu, manyetik ve yüzey özellikleri etkili olmuştur. Elektrokoagülasyon sisteminde oluşan demirin ve arseniğin oksidasyon basamağı tespiti XPS ile yapılmış ve elektrokoagülasyon prosesi esnasında bazı As^{+3} 'lerin As^{+5} 'e dönüştüğü gözlemlenmiştir. Demiroksit çökeltisi ile arsenik türleri arasındaki özel bir kimyasal etkileşimin olduğunu ve demir ile arseniğin bir araya gelerek çökeldiği, yapılan FT-IR ve elektrokinetik ölçümler ile tespit edilmiştir. Elektrokoagülasyon esnasında ayrıca çalışmada oluşan ürünün toksik olmadığı ve fakat toksik olmayan ürünün yine de güvenli şekilde bertaraf edilmesi belirtilmiştir.

Lakshmanan ve ark. (2010), tarafından yapılan çalışmada As(V) ve As(III) gideriminde, FeCl₃ koagülasyonu ve elektrokoagülasyon metodu karşılaştırılmıştır. As(III) oksidasyonunun ve klor oluşumunun gerçekleştiği doğrulanmak istenmiştir. Sonuçlar elektrokoagülasyon esnasında pH 6,5'te As(V) gideriminin kararsız olduğunu ve demir (Fe⁺²) oluşumuna dayanarak giderim veriminin beklenilenden daha yüksek oranda elde edildiği belirtilmiştir. Her iki proses esnasında da pH düştükçe As(V) giderim verimi artmıştır. En yüksek adsorpsiyon kapasitesi kimyasal koagülasyonda pH 6,5'te elde edilirken; pH 7,5 ve 8,5'te elektrokoagülasyon ile As(V) giderimi kimyasal koagülasyona göre daha yüksek veya eşit çıkmıştır. Elektrokoagülasyon esnasında As(III) giderim veriminin kimyasal koagülasyona oranla yüksek çıkmasına pH'nın artması sebep olmuştur.

Can (2010), yaptığı çalışmada, sulu çözeltilerden elektrokoagülasyon yöntemi ile bor ve arseniğin birlikte arıtılabilirliği ve elektrot malzemesi, akım yoğunluğu, çözeltinin başlangıç pH'sı, başlangıç bor ve arsenik konsantrasyonu, karıştırma hızı, destek elektrolit türü ve konsantrasyonu gibi sistem parametrelerinin giderim verimi üzerine etkileri incelenmiştir. Bor endüstrisinde oluşan atık sularında bulunan bor ve arsenik miktarına eşdeğer miktarda suni olarak hazırlanmış bor ve arsenik ihtiva eden atık sular ve Bandırma Borik Asit Fabrikasının borik asit ana çözeltisi kullanılmıştır. Alüminyum elektrotla arsenik ve bor giderimi yapılabilirken, demir elektrotla sadece arsenik gideriminin gerçekleştirildiği vurgulanmıştır. Akım yoğunluğunun artması bor ve arsenik giderim hızını ve aynı zamanda enerji tüketimini artırmış olduğu belirtilmiştir. Alüminyum elektrotlar kullanılarak yapılan deneylerde 0,54 mA/cm² akım yoğunluğunda, 150 devir/dakika karıştırma hızında, 60 dakika sonunda 50 mg/L başlangıç arsenik çözeltisi için %85 giderim verimi elde edilmiştir.

Ulu (2010), alüminyum elektrotlar kullanarak içme sularından elektrokoagülasyon prosesi ile arsenik giderimini araştırmıştır. Arsenik giderim verimi üzerinde arsenik konsantrasyonu, pH, akım yoğunluğu, elektrot bağlantı şekli, işletme süresi etkileri ve elektrot tüketimi, enerji tüketimi, işletme maliyetinin etkileri ve oluşan çamur miktarı incelenmiştir. Arsenik, başlangıç pH 5-8 aralığında 10 mikrogram/L'nin altına düşmüştür. 15 dakikalık işletme süresinde EK çıkış pH'sı

6,9-8,9 arasında ve arsenik çıkış konsantrasyonu 9,5-3,5 mikrogram/L aralığında olduğu belirtilmiştir. 2,5 A/m² akım yoğunluğu ve 4 dk işletme süresinin düşük arsenik konsantrasyonlarında (75 mikrogram/L) 10 mikrogram/L'lik As çıkış değerini sağlamak için yeterli olduğu ve aynı şartlarda daha yüksek arsenik konsantrasyonları için (150 mikrogram/L) 10 dk işletme süresinin gerekli olduğu belirtilmiştir. Düşük akım yoğunlukları ve düşük işletme süresinde Mono Polar-Seri bağlantı şeklinin (işletme süresi = 2 dk ve akım yoğunluğu=2,5 A/m²) daha etkili olduğu sonucuna varılmıştır. Arsenik gideriminde işletme maliyeti ve As giderim verimi bakımından bağlantı şekli için etkinlik sırasının MP-S>MP-P>BP-S şeklinde olduğu belirtilmiştir.

Dönmez (2011), suların As gideriminde kimyasal koagülasyon, adsorpsiyon ve elektrokoagülasyon yöntemlerini karşılaştırmıştır. Kimyasal koagülasyonda koagülant olarak demir (II) sülfat, demir (III) klorür ve alüminyum sülfat kullanılmış, adsorpsiyonda adsorban malzeme olarak limonit, demir oksitle kaplanmış sepiyolit ve pomza seçilmiştir; elektrokoagülasyonda ise demir katot-demir anot ve alüminyum katot- alüminyum anot- elektrot çiftleri denenmiştir. Ayrıca arsenik giderim verimi üzerine pH, elektroliz süresi ve akım yoğunluğu gibi parametrelerin etkisi araştırılmıştır. Kimyasal koagülasyon, adsorpsiyon ve elektrokoagülasyonun içme suyundan arsenik gideriminde uygulanabilir yöntemler olduğu belirtilmiştir.

Ucar (2011), yaptığı çalışmada, içme sularından arsenik giderimi için demir elektrotlar kullanılarak EK işlemi ardından, filtrasyon işlemi uygulamıştır. Demir elektrot kullanılmasından dolayı elektokoagülasyon işlemi sırasında demir hidroksit, magnetit, pas gibi yan ürünler meydana geldiği ifade edilmiştir. pH 6-8 aralığında, temas süresi, başlangıç arsenik konsantrasyonu, tuz varlığı, akım, elektrot yüzey alanı ve arsenik oksidasyon durumlarının arsenik giderim verimi üzerinde etkileri irdelenmiştir. Elektrokoagülasyon prosesinin performansının kontrolü ve optimizasyonu için temas süresi ve akım değişiminin önemli olduğu belirtilmiştir. As(III)'nin As(V) oksidasyonu nedeninden dolayı arsenattan daha yavaş giderildiği belirtilmiştir. Elektrokoagülasyon sisteminde çözeltiliye tuz eklenmesi sonucunda

daha yoğun ve daha büyük flok (yeşil pas) oluşumunun görüldüğü ve arsenik gideriminin %99 olduğu belirtilmiştir.



3. MATERYAL ve YÖNTEM

3.1. Materyal

3.1.1. Elektrokoagülatör tasarımı ve deney düzeneği

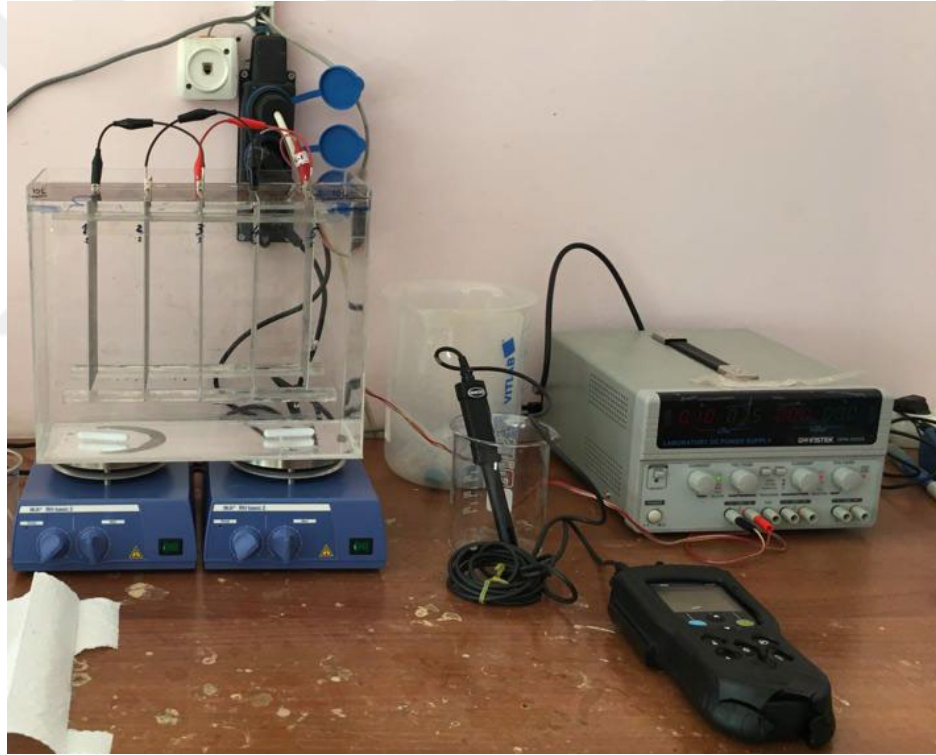
Elektrokoagülasyon deneylerinde kesikli olarak işletilen ve Şekil 3.1.'de yer alan ve pleksiglas malzemeden yapılmış 10 L'lik bir elektrokoagülatör tasarlanmıştır. Elektrokoagülatöre ve proses şartlarına ait özellikler Çizelge 3.1.'de sunulmuştur. Elektrot materyali olarak monopolar paralel bağlı 10,5 cm x 18 cm boyutlarında 5 adet alüminyum levha (elektrot) kullanılmıştır. Pleksiglas haznede karıştırma işlemi IKA marka, RH Basic 2 model iki adet manyetik karıştırıcı ile sağlanmıştır (Şekil 3.2.). Güç kaynağı olarak maksimum 30V ve 3A akımda çalışan GW INSTEK GPS-3303 marka cihaz kullanılmıştır. Elektrokoagülasyon deneyi sırasında iletkenliği sağlamak amacı ile elektrolit olarak NaCl kullanılmıştır. Alüminyum ve arsenik analizleri merkez laboratuvarında Optima 2100 DV marka ICP'de (İndüktif Eşleşmiş Plazma-Optik Emisyon Spektrometresi) yapılmıştır (arsenik için CIP hidrür sistem kullanılmıştır). İletkenlik kontrolü HQ 40d marka iletkenlik cihazı ile; pH kontrolü ise WTW 340İ marka pH metre ile gerçekleştirilmiştir (Şekil 3.3.). Belirli zamanlarda alınan numuneler arsenik işlemi için tek kullanımlık 0.45 µm'lik filtre kullanılmış. Tüm ölçümler Standart Metotlara uygun olarak gerçekleştirilmiştir. Örnekler polipropilen kaplarda saklanmış ve deneylerde kullanılan tüm kimyasalların analitik saflıkta olmasına dikkat edilmiştir.

Çizelge 3.1. Elektrokoagülasyon Çalışmalarında Kullanılan Akım (A) Ve Gerilimler (V)

Çalışma No	Gerilim (V)	Amper (A)	Çalışma No	Gerilim (V)	Amper (A)
1	1.5	0.1	8	3	2
2	2	0.1	9	5	1
3	2.5	0.1	10	5	2
4	2	1	11	10	1
5	2.5	1	12	10	2
6	3	1	13	15	2
7	3	1.5			

Çizelge 3.2. Elektrokoagülasyon Çalışmalarında Reaktörün Özellikleri

Parametre	Özellikler
EK Reaktör Hacmi (L)	11.25
Reaktörde Kullanılan Sentetik Su Hacmi (L)	10
Reaktör Boyutları (mm)	300x150x250
Aktif Elektrot Yüzey Alanı (cm ²)	735
Kullanılan Elektrot Sayısı	5
Kullanılan Anot Sayısı	3
Kullanılan Katot Sayısı	2
Elektrotlar Arası Mesafe (mm)	50
Elektrot Boyutları (mm)	10.5x18x2
Aktif Elektrot Boyutları (mm)	105x175x2
Elektrot Bağlantı Şekli	MP-P
Kullanılan Elektrot Materyali	Al
DC Akım Ölçüm Aralığı (A)	0.1-2
DC Gerilim Ölçüm Aralığı (V)	1-15



Şekil 3.1. Elektrokoagülasyon Deney Düzenegi



Şekil 3.2. Manyetik Karıştırıcı



Şekil 3.3. pH Metre (A), İletkenlik Cihazı (B), Filtreler (C) Ve Numune Tüpleri (D)

Çizelge 3.2. Elektrokoagülasyonda kullanılan Giriş Sentetik Arsenikli Su analiz sonuçları

Parametre	Birim	Sonuçlar
pH	-	6-9
İletkenlik	$\mu\text{S/cm}$	350-410
Sıcaklık	$^{\circ}\text{C}$	17-27
Alüminyum	ppm	0.143-3.017

3.2. Yöntem

Elektrokoagülatöre alınan su içerisine iletkenliği sağlamak amacı ile elektrolit olarak elektrokoagülatöre 1mg/L, 50 mg/L ve 1000 mg/L NaCl ve başlangıç (giriş) konsantrasyonu 1.00 mg/L olacak şekilde +5 değerlikli arsenik (AsV) ilavesi yapılmıştır. Elektrokoagülatöre elektrotlar 5 cm aralıklarla yerleştirilerek ve Sentetik arsenikli su üzerinde değişen gerilim ve akım çizelge 3.1’de verilen şartlar altında elektrik akımı uygulanmıştır. Homojenliği sağlamak amacıyla reaktörde manyetik karıştırıcı vasıtasıyla 250 rpm hızda karıştırma yapılmıştır. Kesikli işletilen sistemde numune alımı sırasında reaktör durdurulmuş ve oluşan flokların altından 15 cc’lik şırıngalar ile alınan numuneler 0.45 μm ’lik filtrelerden geçirildikten sonra 15 mL lik numune tüplerine alınmış ve birer damla nitrik asit ilave edilerek analiz için bekletilmiştir. Her işletim sonrası elektrokoagülatörün temizliğinde yıkama asidi ve bol distile su kullanılmıştır. Alüminyum elektrot levhalar da deneylerden hemen sonra saf su ile yıkandıktan sonra kurutulmuştur.

3.2.1. EK prosesi ve sentetik arsenikli su

1.00 mg/L başlangıç arsenik konsantrasyonuna sahip sentetik su, 1000 mg/L As standardının seyreltilmesiyle hazırlanmıştır. Güç kaynağı üzerinde istenen gerilim ve akım ayarlaması yapıldıktan sonra deney başlatılmış ve pH, iletkenlik, gerilim ve akım değerleri numune alınan zaman aralıklarında ayrı ayrı kaydedilmiştir. Elektrokoagülasyon işlemi esnasında anot levhaların yüzeyinde çözünen alüminyum iyonların suda destabilize olmuş bileşenler ile flok oluşturarak (alüminyum floklar) katot levhaların yüzeyinde oluşan hidrojen gazı yardımı ile reaktörün üst kısmında toplandığı ve bu flok tabakasının köpük şeklinde olduğu gözlemlenmiştir. Elektrokoagülasyon reaktörünün üst yüzeyinde köpük tabakası oluşurken reaktörün

orta kısmında artırılmış su ve reaktörün alt kısmında yer çekimi etkisi ile oluşan çökelti tabakasının varlığı kaydedilmiştir.

3.2.2. Elektrokoagülasyon için hesaplamalar ve kullanılan eşitlikler

Akım Yoğunluğu: Aşağıdaki eşitlikle akım yoğunluğu hesaplanmıştır.

$$J = \frac{I}{A} \quad (3.1)$$

Burada; J: Akım yoğunluğu, (mA/cm²), I: Akım şiddeti, (mAmper), A: Aktif anot yüzey alanı, (cm²)'dir.

Enerji Tüketimi: Harcanan elektrik enerjisi Watt-saat (Wh) cinsinden aşağıdaki gibi hesaplanmıştır;

$$E = V \times I \times t \quad (3.2)$$

Burada; E: Elektrik enerjisi (Wh), V: volt, I: akım şiddeti (A), t. zaman (saat)'dir.

Faraday/m³: Faraday aşağıdaki formül ile hesaplanır.

$$\left(\frac{\text{Faraday}}{\text{m}^3} \right) = \frac{I \cdot t}{F \cdot v} \quad (3.3)$$

Burada, I: Akım şiddeti, Amper, t: Zaman, sn, v: Elektrolit hacmi, m³
F=96.500 Coulomb/mol

4. ARAŞTIRMA BULGULARI ve TARTIŞMA

Çalışmada, 0.5-1.193 mg/L aralığındaki başlangıç konsantrasyonuna sahip sentetik arsenikli su üzerinde alüminyum elektrotların kullanıldığı elektrokoagülasyon yöntemi ile arsenik giderimi araştırılmıştır. Arsenik giderim verimi üzerinde akım yoğunluğu, gerilim ve amper şartları, elektrokoagülasyon süresi, pH, iletkenlik, elektrolit ilavesi gibi parametrelerin etkileri incelenmiş ve aşağıda yer alan alt başlıklarda detaylı bir şekilde tartışılmıştır.

4.1. Arsenik Giderim Verimi ve Bunu Etkileyen Şartlar

Elektrokoagülasyon sisteminde akım değerleri, metal elektrotlardan ayrılan Al^{+3} iyonların çözünmesini ve enerji tüketimini etkilemektedir. Çözelti içinden geçen akımdan dolayı elektrotun çözünmesiyle meydana gelen iyonların etkileşimleri sonucu yüklü türlerin etrafındaki dağınık çift tabakanın sıkıştırılması sağlanır. Elektrokoagülasyon prosesinde en önemli işletme gideri elektrik enerjisidir. Bu nedenle yüksek akım, elektrik enerjisinin fazla harcanması ve metal levhaların hızlı tükenmesine sebebiyet vermektedir. Yapılan bütün çalışmaların her biri için enerji tüketimi grafikler halinde oluşturulmuştur. Elektrokoagülasyon prosesinde arıtılmış suyun kalitesi, iletkenliğe, üretilen iyonların miktarına, zamana ve akım yoğunluğuna bağlı olmuştur. Ortam pH'sı hem metal hidroksitlerin çözünürlüğü hem de akım verimini etkileyerek arsenik giderimi üzerinde etkili olmuştur. Genellikle su ortamının alkali ya da asidik olması durumunda akım verimi nötral durumdan daha yüksektir. Elektrokoagülasyon sisteminde pH'nın etkisi iletkenliğin yüksek olduğu durumlarda önemsizdir. Suyun iletkenliğini artırmak için bazı çalışmalarımızda elektrolit olarak tuz kullanılmıştır. Tuz ilavesi ile su ortamında klorür iyonları elektriksel yüke katkıda bulunmaktadır. Suyu NaCl ilave edilmesi sonucunda ortamda elektrokimyasal olarak üretilen klor aynı zamanda suyun dezenfekte edilmesinde etkilidir. Literatürde yapılan çalışmalarda sıcaklığın 60°C'ye kadar artmasıyla akım veriminin arttığını ve 60°C'den sonraki sıcaklıkların akım verimini ve arıtım verimini olumsuz etkilediği belirtilmiştir (Can, 2010). Yaptığımız

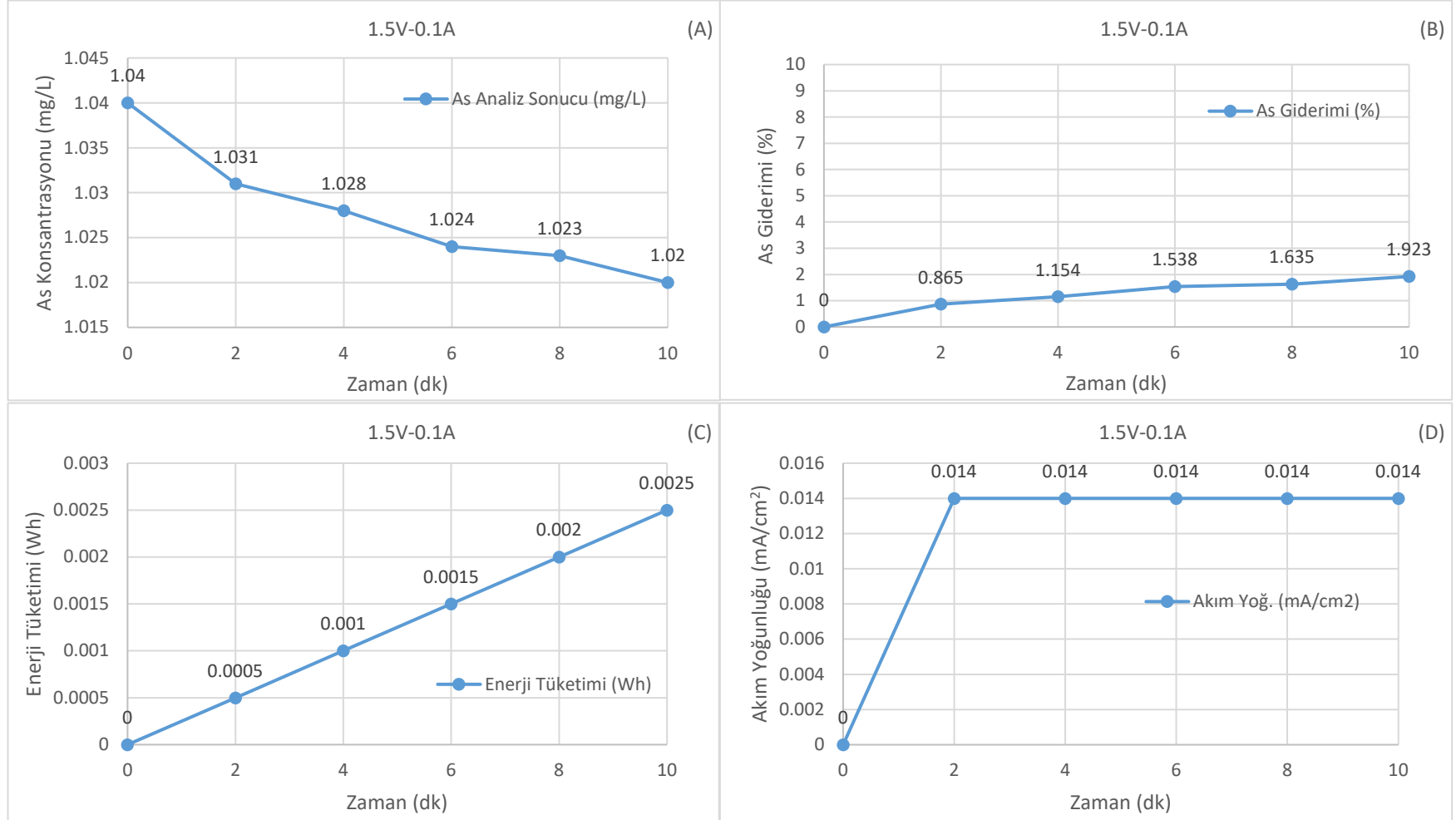
çalışmalarda su sıcaklığı 17°C-27°C arasında olduğundan, sıcaklığın arıtım verimi üzerinde herhangi bir etkisi beklenmemektedir. Ancak yüksek gerilim uygulanan çalışmalarda suyun sıcaklığının arttığı görülmüştür. Bunun nedeninin verilen enerjinin bir kısmının ısıya dönüştüğü düşünülmektedir.

4.1.1. Artan gerilim (voltaj) değerlerinde arsenik giderimi

1.5V-0.1A akım şartlarında 10 dakika işletim süresi için deneysel şartlar Çizelge 4.1.'de verilmiştir. 2'şer dakikalık zaman aralıklarında değişen Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (Wh) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D) grafikleri ise Şekil 4.1.'de yer almaktadır. 1.040 mg/L giriş As konsantrasyonu 10 dk sonunda yaklaşık 1.020 mg/L'ye düşmüştür. Enerji tüketimi 0.0025 Wh, akım yoğunluğu ise 0.014 mA/cm² olarak belirlenmiştir.

Çizelge 4.1. 1.5V-0.1A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları

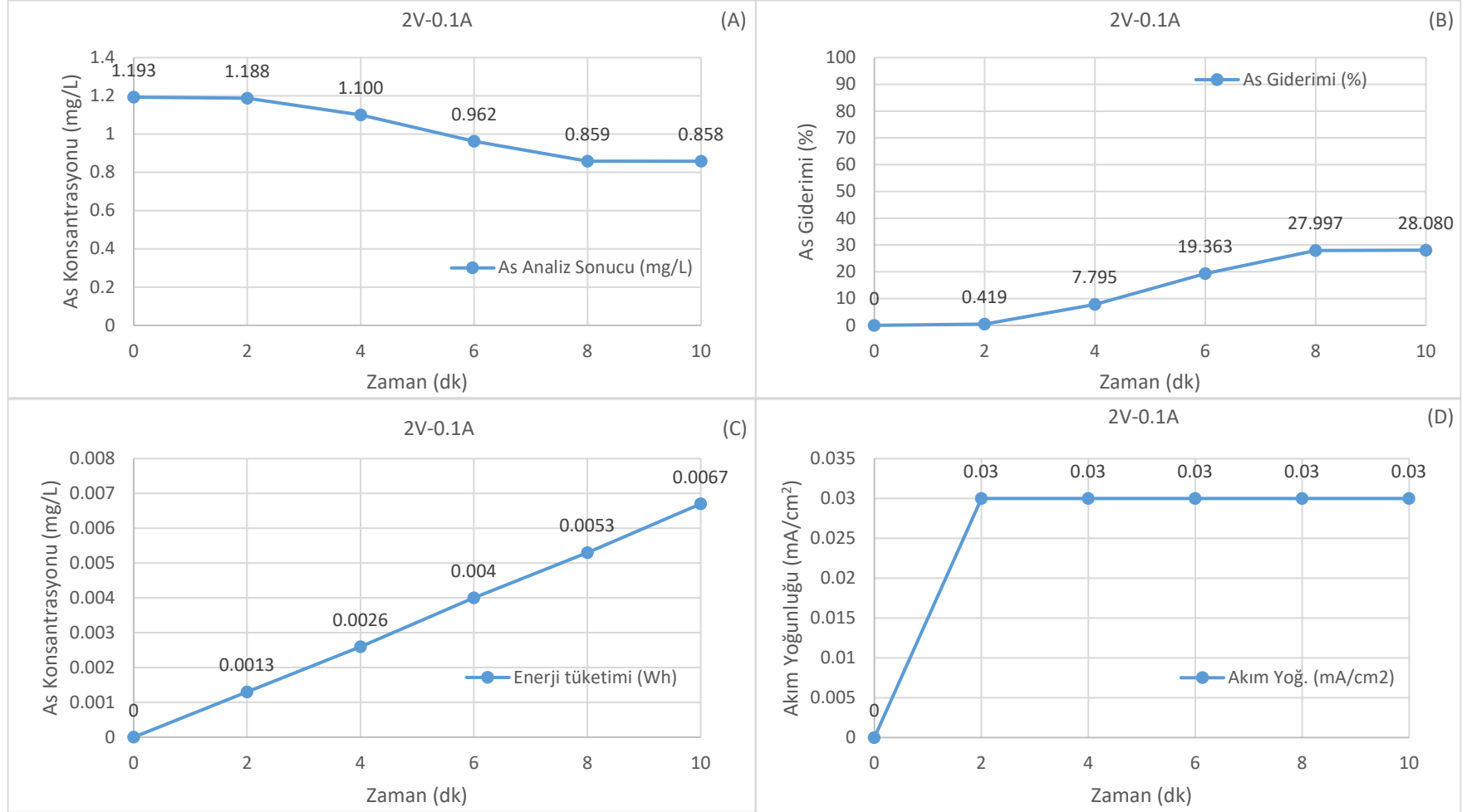
Başlangıç	1.5V-0.1A					
	0	2	4	6	8	10
Zaman (dk)	0	2	4	6	8	10
İletkenlik (µS/cm)	403	404	404	404	404	404
Amper (A)	0.1	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
Gerilim (V)	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
Sıcaklık (°C)	20.3	20.3	20.3	20.3	20.3	20.3
Akım Yoğ. (mA/cm ²)	0	0.014	0.014	0.014	0.014	0.014
Enerji Tüketimi (Wh)	0	0.0005	0.001	0.0015	0.002	0.0025
As Analiz Sonucu (mg/L)	1.040	1.031	1.028	1.024	1.023	1.020
As Giderimi (%)	0	0.865	1.154	1.538	1.635	1.923
Faraday (F/m ³)	0	0.0012	0.0025	0.0037	0.0050	0.0062
Al (ppm)	0.641	0.189	1.066	1.671	0.657	1.148

Şekil 4.1. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%), (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D)

2V-0.1A akım şartlarında 10 dakika işletim süresi için deneysel şartlar Çizelge 4.2.'de verilmiştir. 2'şer dakikalık zaman aralıklarında değişen Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (Wh) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D) grafikleri ise Şekil 4.2.'de yer almaktadır. 1.19 mg/L giriş As konsantrasyonu 10 dk sonunda yaklaşık 0.858 mg/L'ye inerken, As giderimi %28.080 olarak gerçekleşmiştir. Enerji tüketimi 0.0067 Wh, akım yoğunluğu ise 0.03 mA/cm² olarak belirlenmiştir.

Çizelge 4.2. 2V-0.1A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları

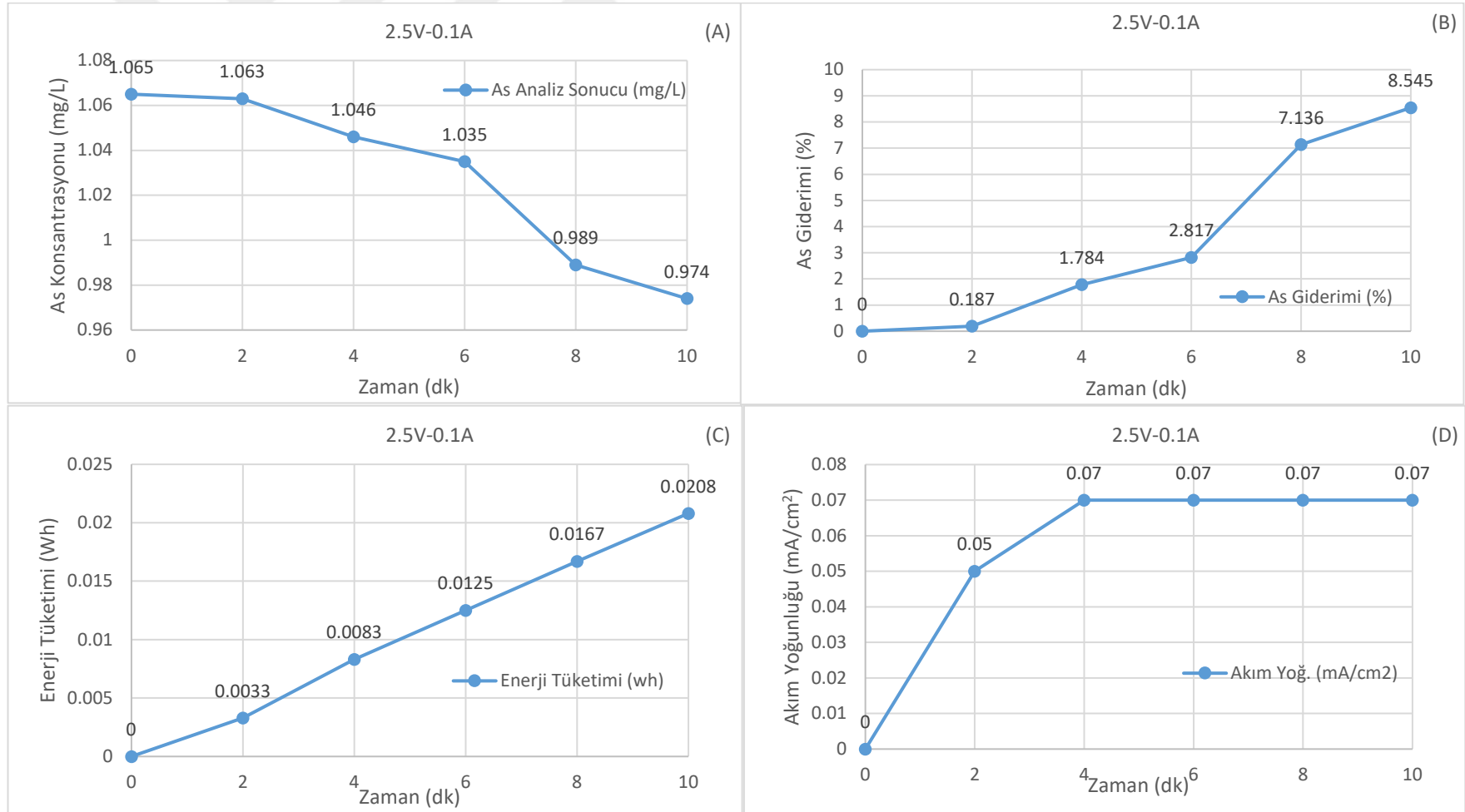
Başlangıç	2V-0.1A					
Zaman (dk)	0	2	4	6	8	10
İletkenlik (µS/cm)	402	402	403	402	402	402
Amper (A)	0.1	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02
Gerilim (V)	2	2	2	2	2	2
Sıcaklık (°C)	20.7	20.7	20.7	20.7	20.7	20.8
Akım Yoğ. (mA/cm ²)	0	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03
Enerji tüketimi (Wh)	0	0.0013	0.0026	0.004	0.0053	0.0067
As Analiz Sonucu (mg/L)	1.193	1.188	1.100	0.962	0.859	0.858
As Gideriği (%)	0	0.419	7.795	19.363	27.997	28.080
Faraday (F/m ³)	0	0.0025	0.0050	0.0075	0.0099	0.0124
Al (ppm)	0.143	1.302	0.917	0.140	0.418	0.489

Şekil 4.2. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%), (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D)

2.5V-0.1A akım şartlarında 10 dakika işletim süresi için deneysel şartlar Çizelge 4.3.'de verilmiştir. 2'şer dakikalık zaman aralıklarında değişen Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (Wh) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D) grafikleri ise Şekil 4.3.'de yer almaktadır. 1.065 mg/L giriş As konsantrasyonu 10 dk sonunda yaklaşık 0.974 mg/L'ye inerken, As giderimi %8.545 olarak gerçekleşmiştir. Enerji tüketimi 0.0208 Wh, akım yoğunluğu ise 0.07 mA/cm² olarak belirlenmiştir.

Çizelge 4.3. 2.5V-0.1A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları

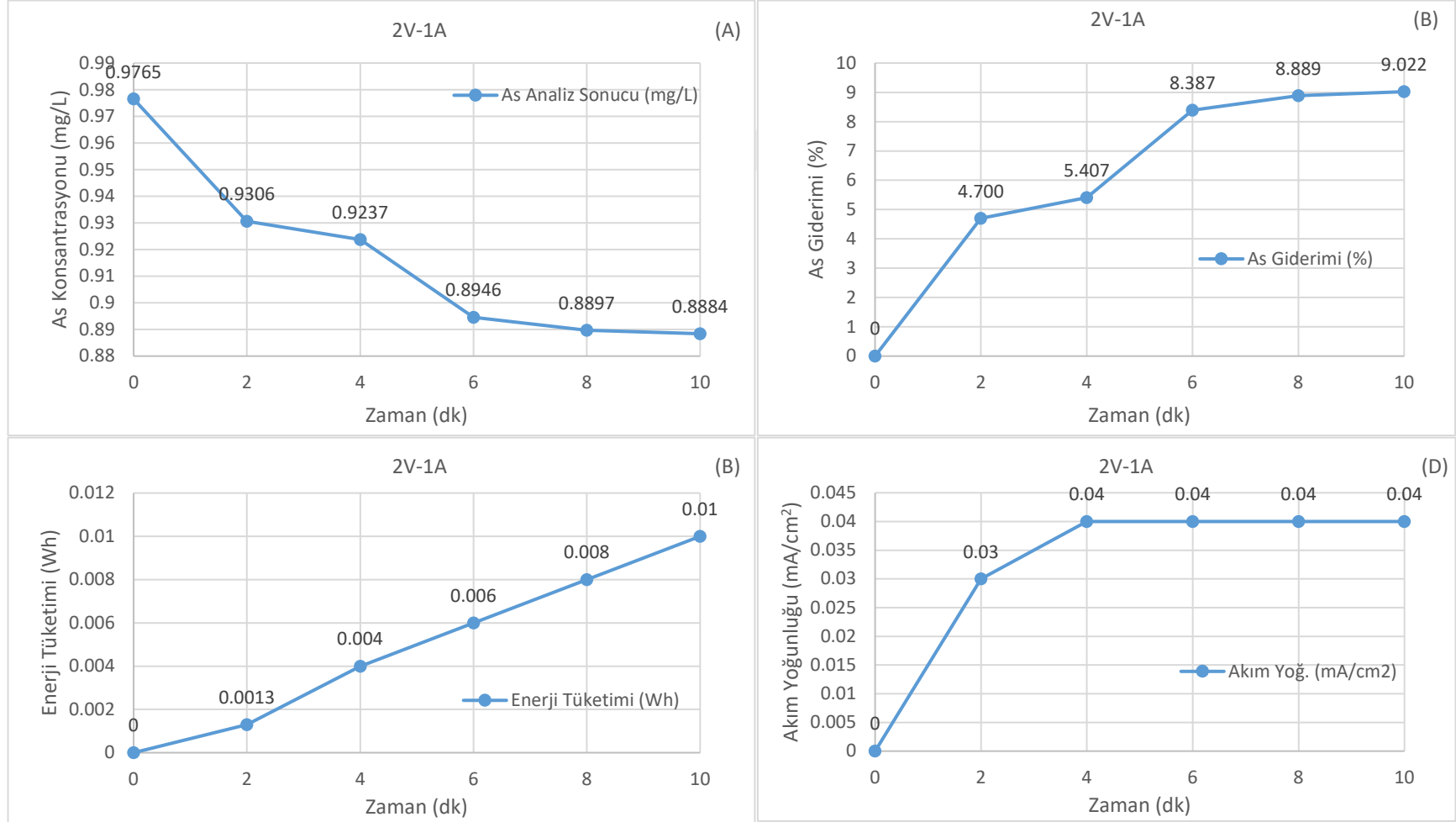
Başlangıç	2.5V-0.1 A					
	0	2	4	6	8	10
Zaman (dk)	0	2	4	6	8	10
İletkenlik (µS/cm)	401	401	400	400	401	401
Amper (A)	0.1	0.04	0.05	0.05	0.05	0.05
Gerilim (V)	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5
Sıcaklık (°C)	20.1	20.1	20.1	20.1	20.1	20.1
Akım Yoğ. (mA/cm ²)	0	0.05	0.07	0.07	0.07	0.07
Enerji Tüketimi (Wh)	0	0.0033	0.0083	0.0125	0.0167	0.0208
As Analiz Sonucu (mg/L)	1.065	1.063	1.046	1.035	0.989	0.974
As Giderimi (%)	0	0.187	1.784	2.817	7.136	8.545
Faraday (F/m ³)	0	0.0050	0.0124	0.0187	0.0249	0.0311
Al ppm	3.017	0.280	1.845	4.895	0.602	0.160

Şekil 4.3. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%), (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D)

2V-1A akım şartlarında 10 dakika işletim süresi için deneysel şartlar Çizelge 4.4.'de verilmiştir. 2'şer dakikalık zaman aralıklarında değişen Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (Wh) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D) grafikleri ise Şekil 4.4.'de yer almaktadır. 0.9765 mg/L giriş As konsantrasyonu 10 dk sonunda yaklaşık 0.8884 mg/L'ye inerken, As giderimi %9.022 olarak gerçekleşmiştir. Enerji tüketimi 0.01 Wh, akım yoğunluğu ise 0.04 mA/cm² olarak belirlenmiştir.

Çizelge 4.4. 2V-1A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları

Başlangıç	2V-1A					
	0	2	4	6	8	10
Zaman (dk)	0	2	4	6	8	10
pH	6.69	7.93	7.36	7.38	7.31	7.35
İletkenlik (µS/cm ²)	402	402	402	402	402	401
Amper (A)	1	0.02	0.03	0.03	0.03	0.03
Gerilim (V)	2	2	2	2	2	2
Sıcaklık (°C)	27.4	27.5	27.4	27.4	27.4	27.4
As Analiz Sonucu (mg/L)	0.9765	0.9306	0.9237	0.8946	0.8897	0.8884
Akım Yoğunluğu (mA/cm ²)	0	0.03	0.04	0.04	0.04	0.04
Enerji Tüketimi (Wh)	0	0.0013	0.004	0.006	0.008	0.01
As Giderimi (%)	0	4.700	5.407	8.387	8.889	9.022
Al (ppm)	0.886	0.159	0.177	0.211	0.247	0.309
Faraday (F/m ³)	0	0.0025	0.0075	0.0112	0.0149	0.0187

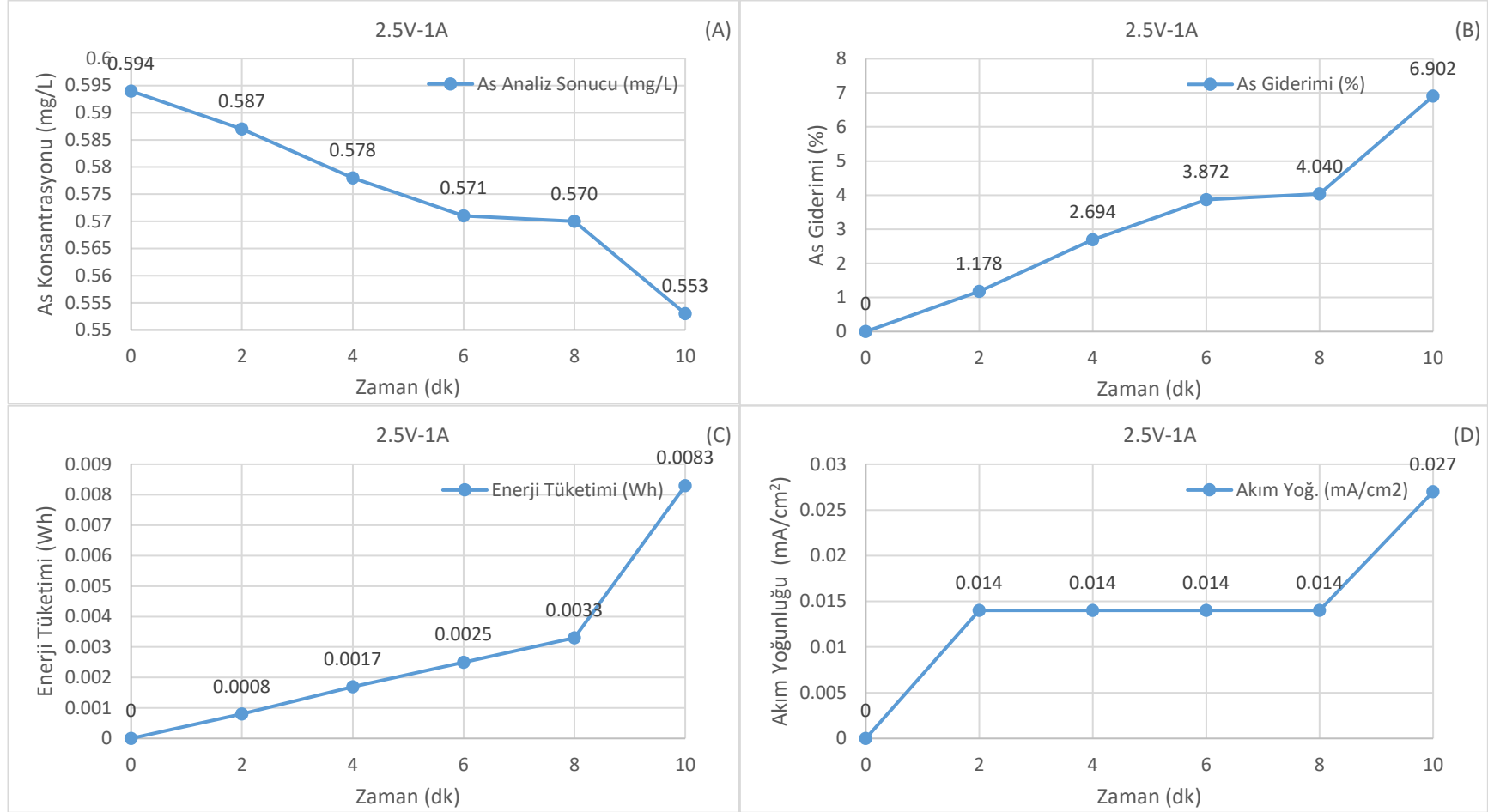


Şekil 4.4. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%), (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D)

2.5V-1A akım şartlarında 10 dakika işletim süresi için deneysel şartlar Çizelge 4.5.'de verilmiştir. 2'şer dakikalık zaman aralıklarında değişen Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (Wh) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D) grafikleri ise Şekil 4.5.'de yer almaktadır. 0.594 mg/L giriş As konsantrasyonu 10 dk sonunda yaklaşık 0.553 mg/L'ye inerken, As giderimi %6.902 olarak gerçekleşmiştir. Enerji tüketimi 0.0083 Wh, akım yoğunluğu ise 0.027 mA/cm² olarak belirlenmiştir.

Çizelge 4.5. 2.5V-1A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları

Başlangıç	2.5V-1A					
	0	2	4	6	8	10
Zaman (dk)	0	2	4	6	8	10
İletkenlik (µS/cm)	390	389	389	389	389	389
Amper (A)	1	0.01	0.01	0.01	0.01	0.02
Gerilim (V)	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5
Sıcaklık (°C)	18.5	18.5	18.6	18.6	18.6	18.6
As Analiz Sonucu (mg/L)	0.594	0.587	0.578	0.571	0.570	0.553
Akım Yoğ. (mA/cm ²)	0	0.014	0.014	0.014	0.014	0.027
Enerji Tüketimi (Wh)	0	0.0008	0.0017	0.0025	0.0033	0.0083
As Giderimi (%)	0	1.178	2.694	3.872	4.040	6.902
Faraday (F/m ³)	0	0.0012	0.0025	0.0037	0.0050	0.0124

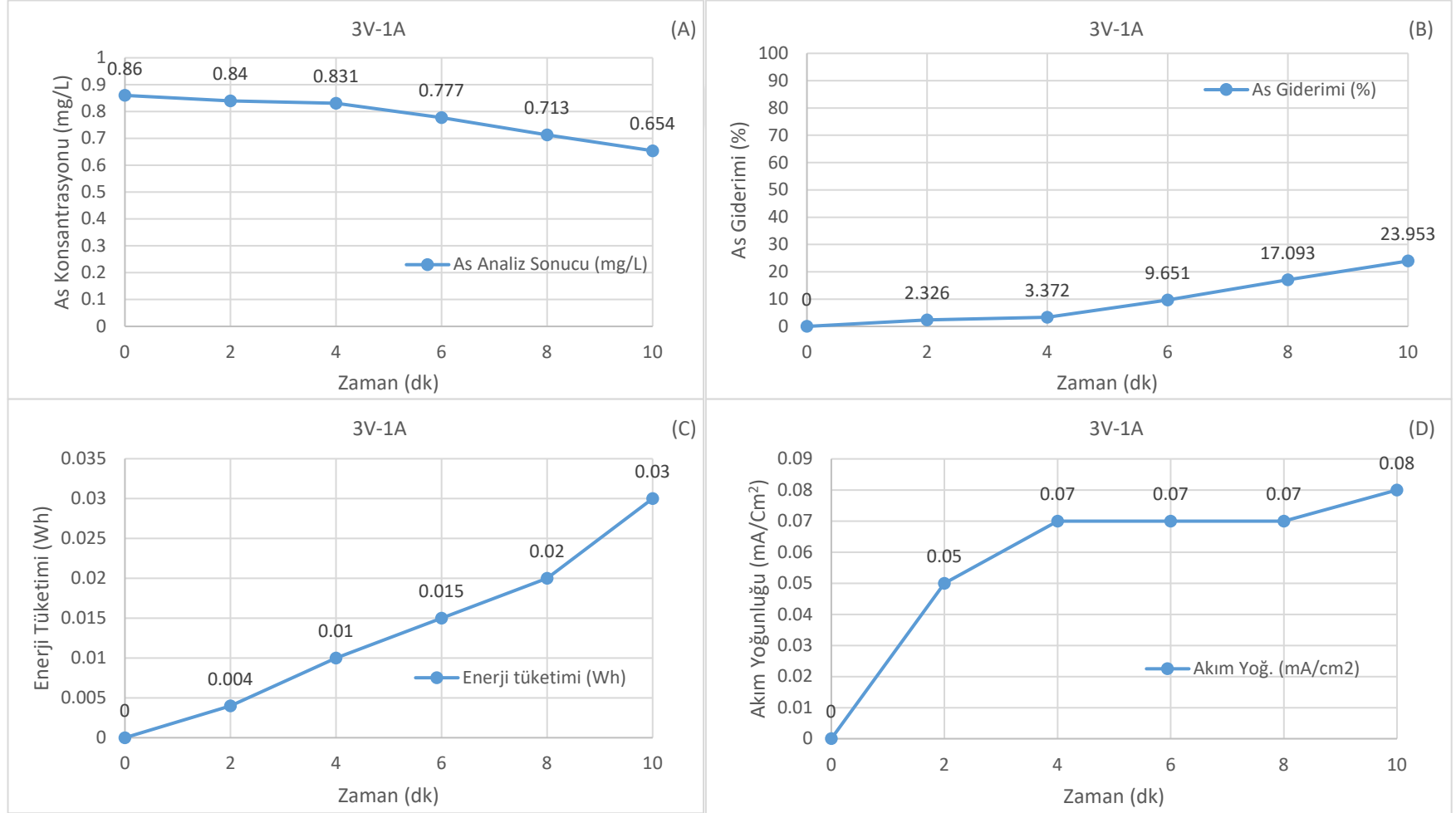


Şekil 4.5. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D)

3V-1A akım şartlarında 10 dakika işletim süresi için deneysel şartlar Çizelge 4.6.'da verilmiştir. 2'şer dakikalık zaman aralıklarında değişen Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (Wh) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D) grafikleri ise Şekil 4.6.'da yer almaktadır. 0.860 mg/L giriş As konsantrasyonu 10 dk sonunda yaklaşık 0.654 mg/L'ye inerken, As giderimi %23.953 olarak gerçekleşmiştir. Enerji tüketimi 0.03 Wh, akım yoğunluğu ise 0.08 mA/cm² olarak belirlenmiştir.

Çizelge 4.6. 3V-1A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları

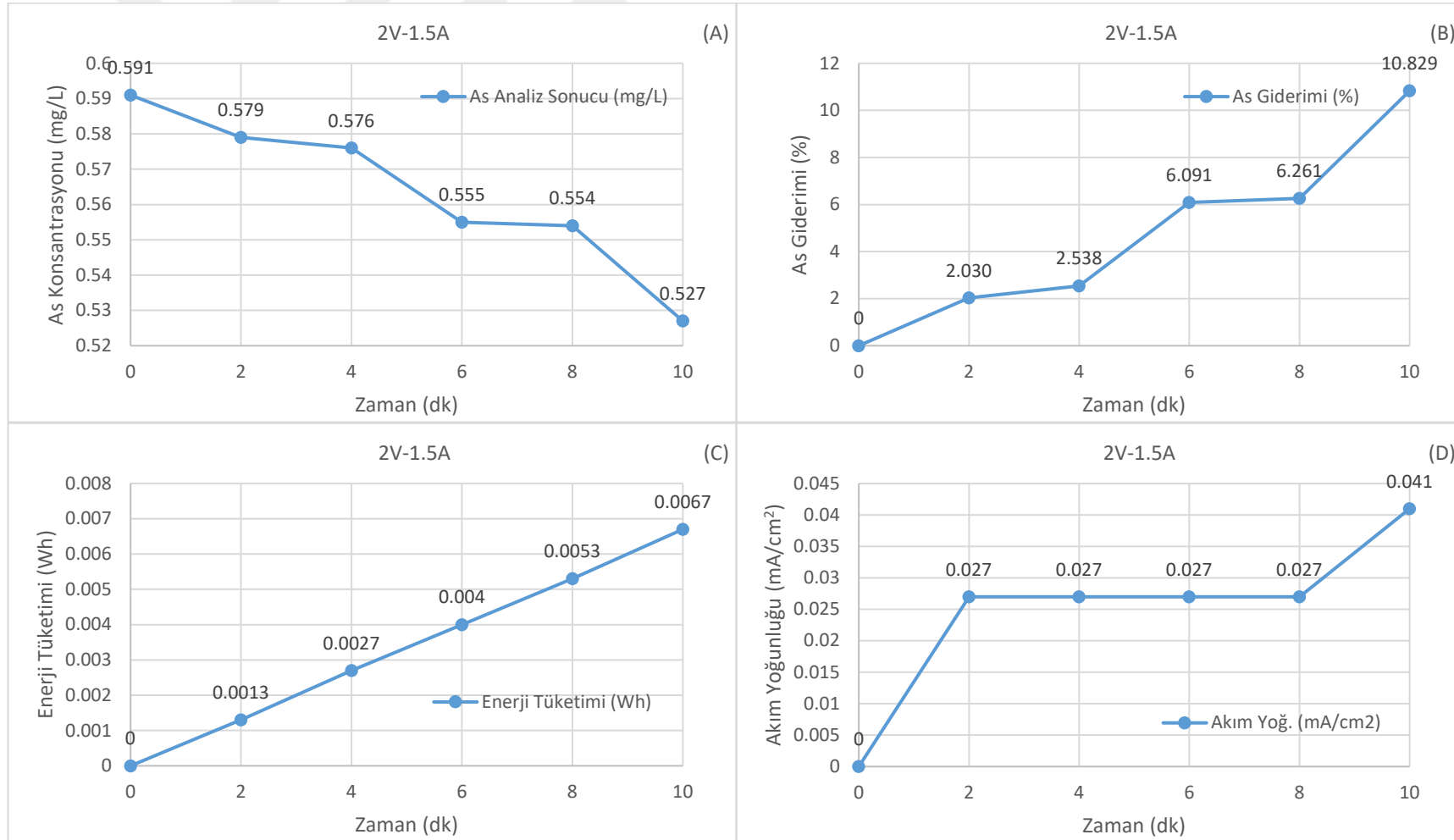
Başlangıç	3V-1A					
Zaman (dk)	0	2	4	6	8	10
İletkenlik µs/cm	398	399	400	400	400	400
Amper (A)	1	0.04	0.05	0.05	0.05	0.06
Gerilim (V)	3	3	3	3	3	3
Sıcaklık (°C)	19.3	19.4	19.4	19.4	19.4	19.4
As Analiz Sonucu (mg/L)	0.860	0.840	0.831	0.777	0.713	0.654
Akım Yoğ. (mA/cm ²)	0	0.05	0.07	0.07	0.07	0.08
Enerji Tüketimi (Wh)	0	0.004	0.01	0.015	0.02	0.03
As Giderimi (%)	0	2.326	3.372	9.651	17.093	23.953
Faraday (F/m ³)	0	0.0050	0.0124	0.0187	0.0249	0.0373
Al (ppm)	0.176	0.575	0.096	0.166	0.131	0.139

Şekil 4.6. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D)

2V-1.5A akım şartlarında 10 dakika işletim süresi için deneysel şartlar Çizelge 4.7.'de verilmiştir. 2'şer dakikalık zaman aralıklarında değişen Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (Wh) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D) grafikleri ise Şekil 4.7.'de yer almaktadır. 0.591 mg/L giriş As konsantrasyonu 10 dk sonunda yaklaşık 0.527 mg/L'ye inerken, As giderimi %10.829 olarak gerçekleşmiştir. Enerji tüketimi 0.0067 Wh, akım yoğunluğu ise 0.041 mA/cm² olarak belirlenmiştir.

Çizelge 4.7. 2V-1.5A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları

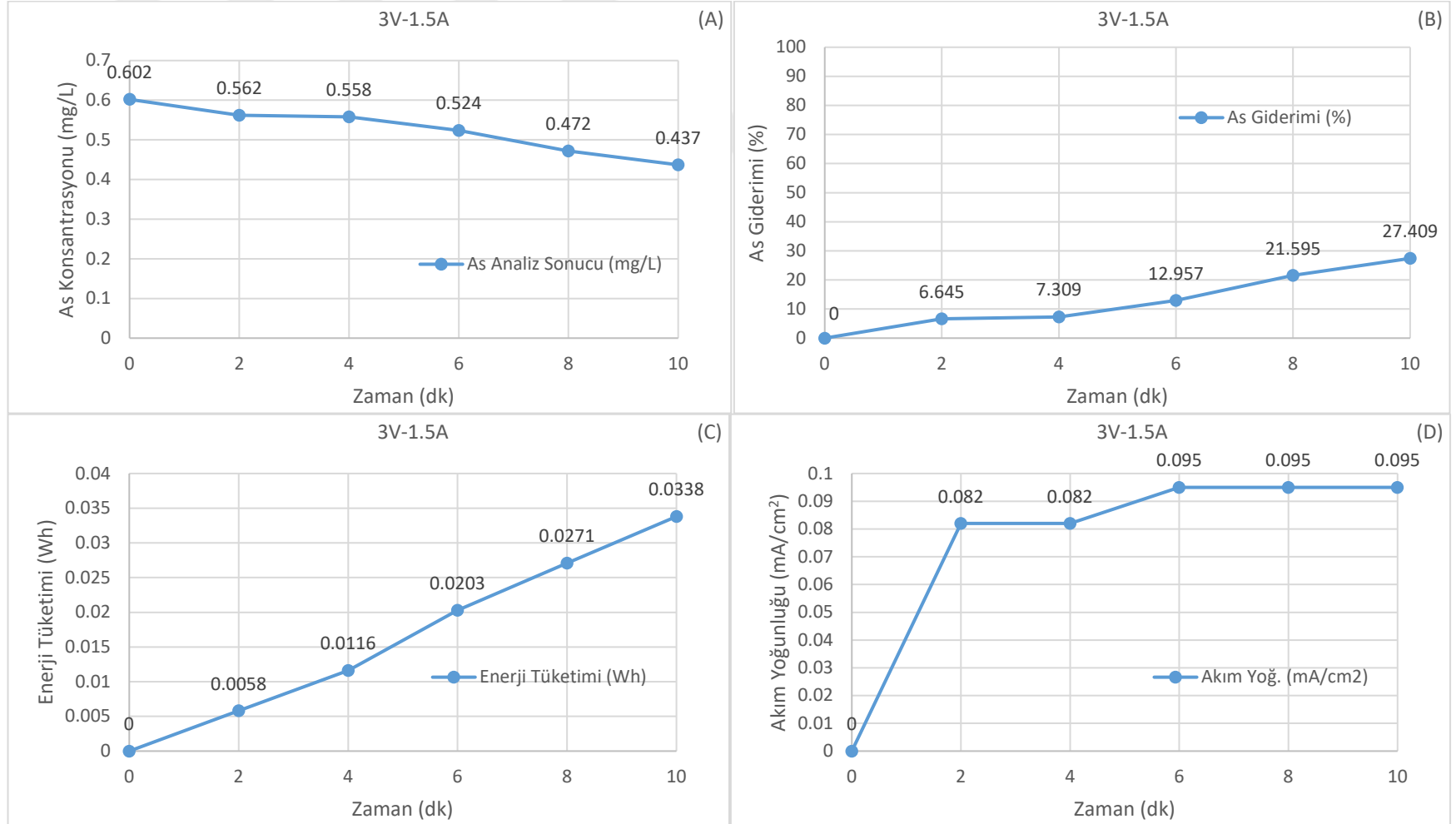
Başlangıç	2V-1.5 A					
Zaman (dk)	0	2	4	6	8	10
İletkenlik (µS/cm)	389	390	390	390	390	390
Amper (A)	1.5	0.02	0.02	0.02	0.02	0.03
Gerilim (V)	2	2	2	2	2	2
Sıcaklık (°C)	18.5	18.5	18.5	18.5	18.5	18.5
Akım Yoğ. (mA/cm ²)	0	0.027	0.027	0.027	0.027	0.041
Enerji Tüketimi (Wh)	0	0.0013	0.0027	0.0040	0.0053	0.0067
As Analiz Sonucu (mg/L)	0.591	0.579	0.576	0.555	0.554	0.527
As Giderimi (%)	0	2.030	2.538	6.091	6.261	10.829
Faraday (F/m ³)	0	0.0025	0.0050	0.0075	0.0099	0.0187

Şekil 4.7. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderim (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D)

3V-1.5A akım şartlarında 10 dakika işletim süresi için deneysel şartlar Çizelge 4.8.'de verilmiştir. 2'şer dakikalık zaman aralıklarında değişen Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (Wh) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D) grafikleri ise Şekil 4.8.'de yer almaktadır. 0.602 mg/L giriş As konsantrasyonu 10 dk sonunda yaklaşık 0.437 mg/L'ye inerken, As giderimi %27.409 olarak gerçekleşmiştir. Enerji tüketimi 0.0338 Wh, akım yoğunluğu ise 0.095 mA/cm² olarak belirlenmiştir.

Çizelge 4.8. 3V-1.5A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları

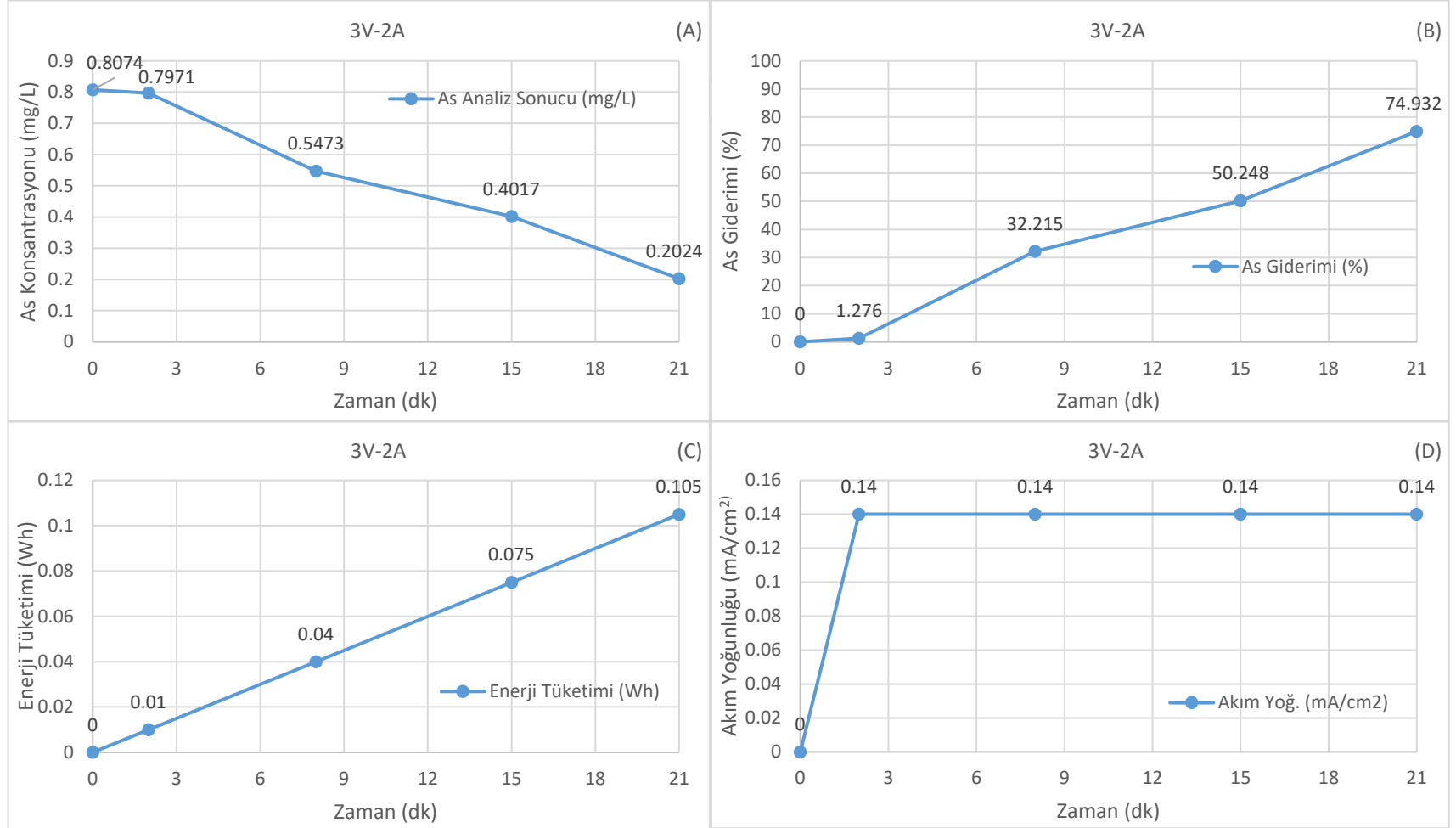
Başlangıç	3V-1.5A					
	0	2	4	6	8	10
Zaman (dk)	0	2	4	6	8	10
İletkenlik (µS/cm)	391	391	390	390	390	390
Amper (A)	1.5	0.06	0.06	0.07	0.07	0.07
Gerilim (V)	3	2.9	2.9	2.9	2.9	2.9
Sıcaklık (°C)	18.6	18.6	18.6	18.6	18.6	18.6
Akım Yoğ. (mA/cm ²)	0	0.082	0.082	0.095	0.095	0.095
Enerji Tüketimi (Wh)	0	0.0058	0.0116	0.0203	0.0271	0.0338
As Analiz Sonucu (mg/L)	0.602	0.562	0.558	0.524	0.472	0.437
As Giderimi (%)	0	6.645	7.309	12.957	21.595	27.409
Faraday (F/m ³)	0	0.0075	0.0149	0.0261	0.0348	0.0435

Şekil 4.8. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D)

3V-2A akım şartlarında 21 dakika işletim süresi için deneysel şartlar Çizelge 4.9.'da verilmiştir. 2, 8, 15 ve 21. dakikalık zaman aralıklarında değişen Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (Wh) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D) grafikleri ise Şekil 4.9.'da yer almaktadır. 0.8074 mg/L giriş As konsantrasyonu 21 dk sonunda yaklaşık 0.2024 mg/L'ye inerken, As giderimi %74.932 olarak gerçekleşmiştir. Enerji tüketimi 0.105 Wh, akım yoğunluğu ise 0.14 mA/cm² olarak belirlenmiştir.

Çizelge 4.9. 3V-2A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları

Başlangıç	3V-2A				
Zaman (dk)	0	2	8	15	21
pH	8.15	7.9	7.55	7.81	7.94
İletkenlik (µS/cm)	386	384	383	385	379
Amper (A)	2	0.1	0.1	0.1	0.1
Gerilim (V)	3	3	3	3	3
Sıcaklık (°C)	19.5	19.9	19.7	19.9	20.4
As Analiz Sonucu (mg/L)	0.8074	0.7971	0.5473	0.4017	0.2024
Akım Yoğunluğu (mA/cm ²)	0	0.14	0.14	0.14	0.14
Enerji Tüketimi (Wh)	0	0.01	0.04	0.075	0.105
As Giderimi (%)	0	1.276	32.215	50.248	74.932
Faraday (F/m ³)	0	0.0124	0.0497	0.0933	0.1306



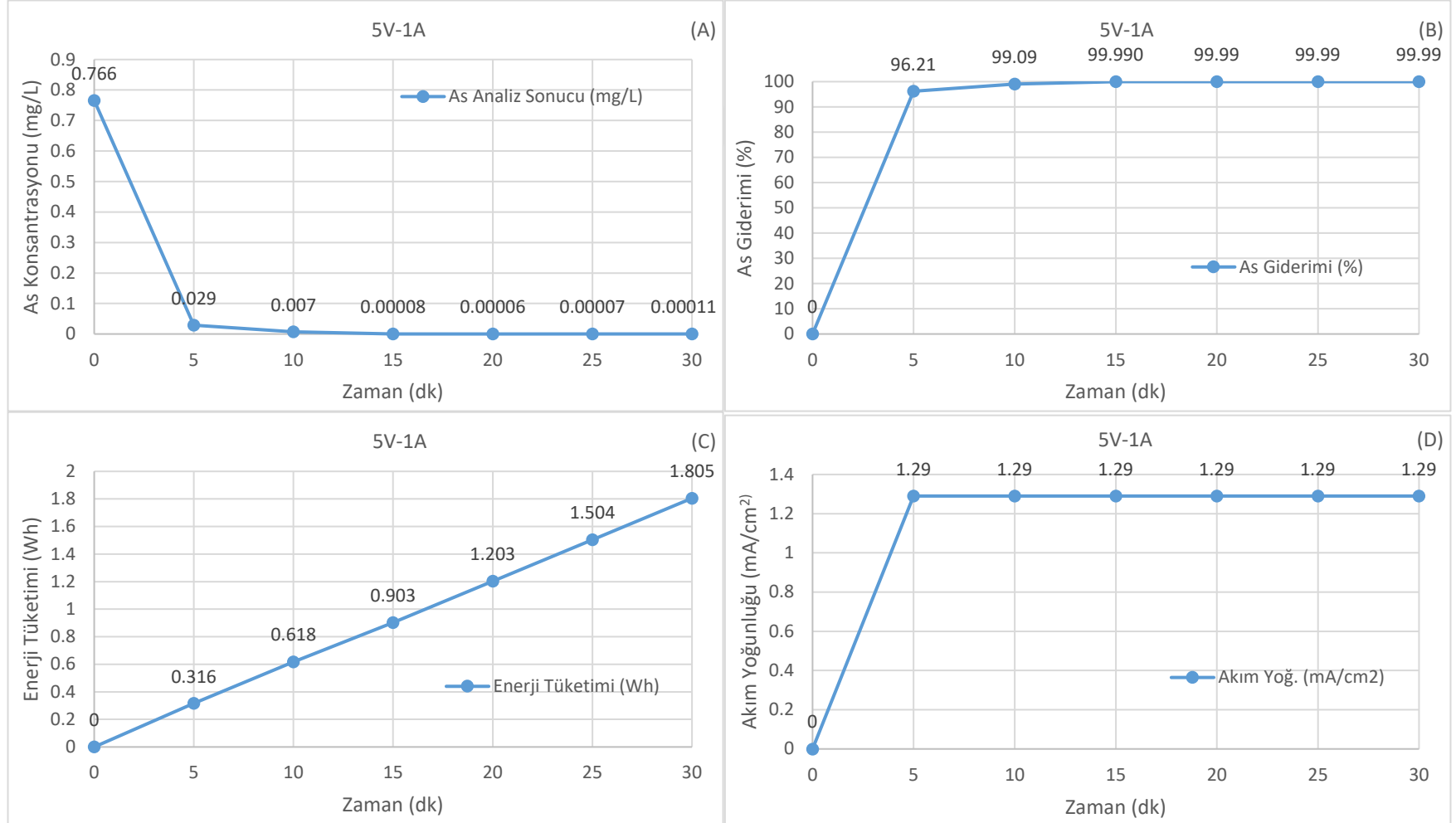
Şekil 4.9. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D)

4.1.2. Artan gerilim (volt) değerlerinde arsenik giderim

5V-1A akım şartlarında 30 dakika işletim süresi için deneysel şartlar Çizelge 4.10.'da verilmiştir. 5'şer dakikalık zaman aralıklarında değişen Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (Wh) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D) grafikleri ise Şekil 4.10.'da yer almaktadır. 0.766 mg/L giriş As konsantrasyonu 30 dk sonunda yaklaşık 0.00011 mg/L'ye inerken, As giderimi %99.99 olarak gerçekleşmiştir. Enerji tüketimi 1.805 Wh, akım yoğunluğu ise 1.29 mA/cm² olarak belirlenmiştir.

Çizelge 4.10. 5V-1A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları

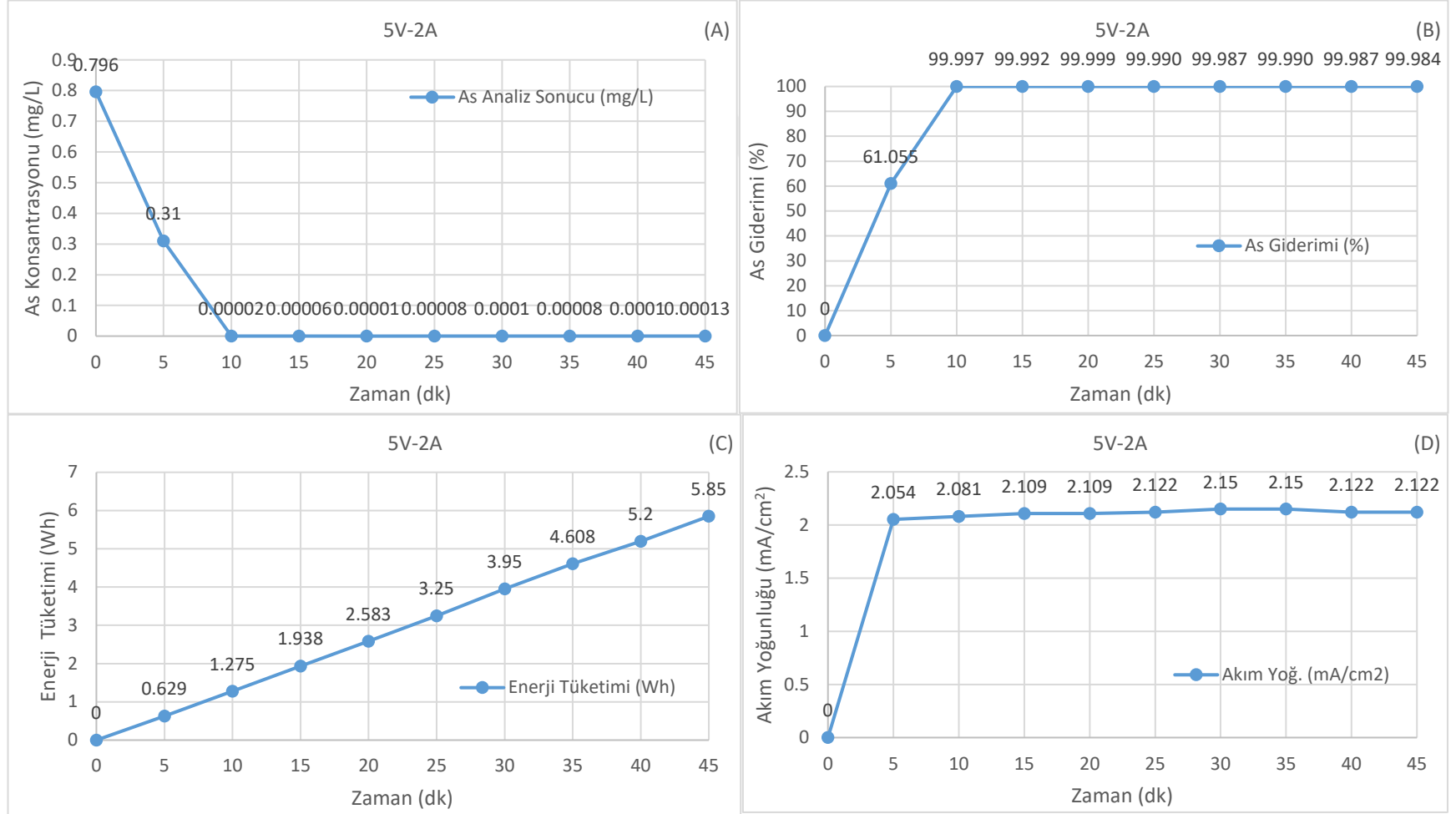
Başlangıç	5V-1A						
Zaman (dk)	0	5	10	15	20	25	30
pH	7.03	7.32	7.4	7.61	7.69	7.74	7.86
İletkenlik (µS/cm)	2430	2430	2420	2420	2420	2410	2410
Amper (A)	1	0.95	0.95	0.95	0.95	0.95	0.95
Gerilim (V)	5	4	3.9	3.8	3.8	3.8	3.8
Sıcaklık (°C)	19.8	19.9	20	20.1	20.2	20.3	20.4
As Analiz Sonucu (mg/L)	0.766	0.029	0.007	0.00008	0.00006	0.00007	0.00011
Akım Yoğunluğu (mA/cm ²)	0	1.29	1.29	1.29	1.29	1.29	1.29
Enerji Tüketimi (Wh)	0	0.316	0.618	0.903	1.203	1.504	1.805
Enerji Tüketimi (kWh/m ³)	0	0.0316	0.06118	0.0903	0.1203	0.1504	0.1805
As Giderimi (%)	0	96.21	99.09	99.990	99.99	99.99	99.99
Faraday (F/m ³)	0	0.2953	0.5907	0.8860	1.1813	1.4767	1.772
Elektrot Harcanması (mg/m ³)	0	0,004	0,008	0,012	0,016	0,02	0,024
Tuz (g/L)	1	1	1	1	1	1	1

Şekil 4.10. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D)

5V-2A akım şartlarında 45 dakika işletim süresi için deneysel şartlar Çizelge 4.11.'de verilmiştir. 5'şer dakikalık zaman aralıklarında değişen Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (Wh) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D) grafikleri ise Şekil 4.11.'de yer almaktadır. 0.796 mg/L giriş As konsantrasyonu 45 dk sonunda yaklaşık 0.00013 mg/L'ye inerken, As giderimi % 99.98 olarak gerçekleşmiştir. Enerji tüketimi 5.85 Wh, akım yoğunluğu ise 2.122 mA/cm² olarak belirlenmiştir.

Çizelge 4.11. 5V-2A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları

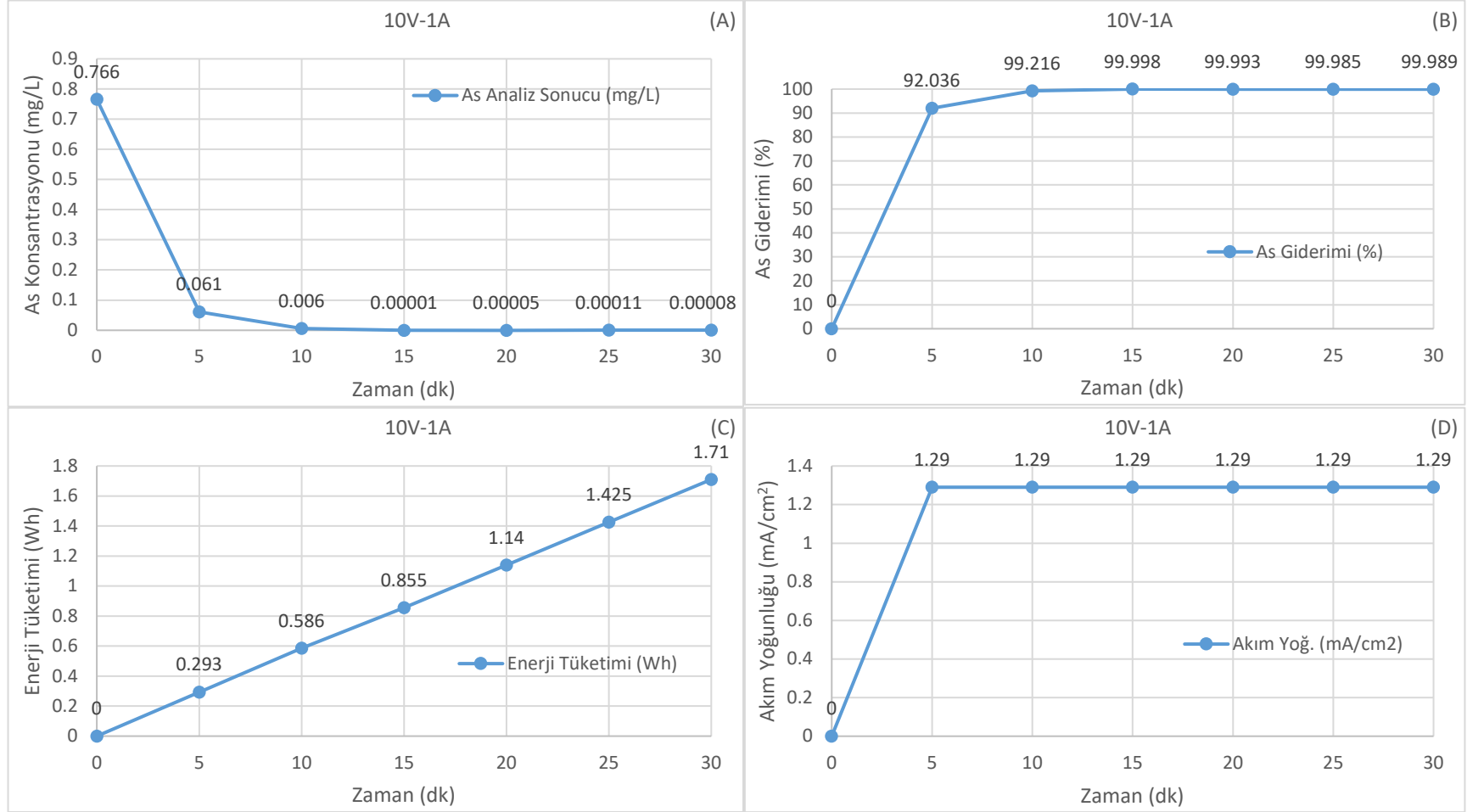
Başlangıç	5V-2A									
Zaman (dk)	0	5	10	15	20	25	30	35	40	45
pH	8.4	8.8	9.51	9.78	10.01	9.27	9.7	6.34	8.67	9.23
İletkenlik (µS/cm)	2330	2310	2300	2310	2300	2310	2300	2300	2300	2300
Amper (A)	2	1.51	1.53	1.55	1.55	1.56	1.58	1.58	1.56	1.56
Gerilim (V)	10	5	5	5	5	5	5	5	5	5
Sıcaklık (°C)	19.6	19.6	19.7	19.8	20.0	20.1	20.2	20.3	20.5	20.6
Akım Yoğunluğu (mA/cm ²)	0	2.054	2.081	2.109	2.109	2.122	2.150	2.150	2.122	2.122
Enerji Tüketimi (Wh)	0	0.629	1.275	1.938	2.583	3.25	3.95	4.608	5.2	5.85
Enerji Tüketimi (kWh/m ³)	0	0.0629	0.1275	0.1938	0.2583	0.325	0.395	0.4608	0.52	0.585
As Analiz Sonucu (mg/L)	0.796	0.31	0.00002	0.00006	0.00001	0.00008	0.0001	0.00008	0.0001	0.00013
As Giderimi (%)	0	61.055	99.997	99.992	99.999	99.990	99.987	99.990	99.987	99.984
Faraday (F/m ³)	0	0.4694	0.9513	1.4456	1.9275	2.4249	2.9472	3.4383	3.8798	4.3648
Elektrot Harcanması (mg/m ³)	0	0.008	0.016	0.024	0.032	0.04	0.048	0.056	0.064	0.072
Tuz (g/L)	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1

Şekil 4.11. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D)

10V-1A akım şartlarında 30 dakika işletim süresi için deneysel şartlar Çizelge 4.12.'de verilmiştir. 5'şer dakikalık zaman aralıklarında değişen Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (Wh) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D) grafikleri ise Şekil 4.12.'de yer almaktadır. 0.766 mg/L giriş As konsantrasyonu 30 dk sonunda yaklaşık 0.00008 mg/L'ye inerken, As giderimi %99.99 olarak gerçekleşmiştir. Enerji tüketimi 1.71 Wh, akım yoğunluğu ise 1.29 mA/cm² olarak belirlenmiştir.

Çizelge 4.12. 10V-1A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları

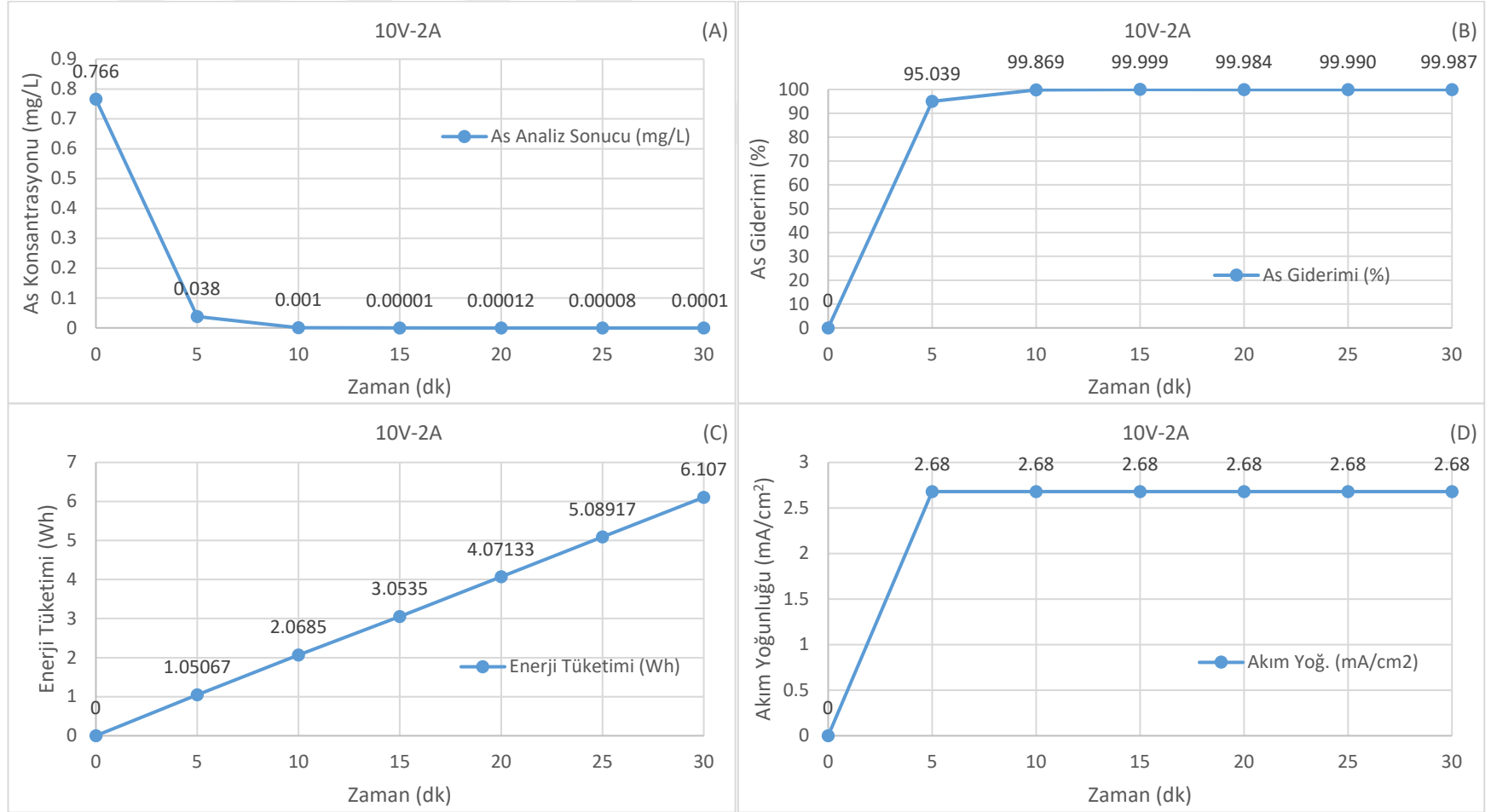
Başlangıç	10V-1A						
	0	5	10	15	20	25	30
Zaman (dk)	0	5	10	15	20	25	30
İletkenlik (µS/cm)	2860	2730	2430	2430	2410	2410	2410
pH	9.15	9.37	9.43	9.61	9.17	9.6	9.81
Amper (A)	1	0.95	0.95	0.95	0.95	0.95	0.95
Gerilim (V)	10	3.7	3.7	3.6	3.6	3.6	3.6
Sıcaklık (°C)	20.1	20.2	20.2	20.4	20.4	20.5	20.6
Akım Yoğunluğu (mA/cm ²)	0	1.29	1.29	1.29	1.29	1.29	1.29
Enerji Tüketimi (Wh)	0	0.293	0.586	0.855	1.14	1.425	1.71
Enerji Tüketimi (kWh/m ³)	0	0.0293	0.0586	0.0855	0.114	0.1425	0.171
As Analiz Sonucu (mg/L)	0.766	0.061	0.006	0.00001	0.00005	0.00011	0.00008
As Giderimi (%)	0	92.036	99.216	99.998	99.993	99.985	99.989
Faraday (F/m ³)	0	0.2953	0.5907	0.8860	1.1813	1.4767	1.7720
Elektrot Harcanması (mg/m ³)	0	0.0055	0.011	0.0165	0.022	0.0275	0.033
Tuz (g/L)	1	1	1	1	1	1	1

Şekil 4.12. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D)

10V-2A akım şartlarında 30 dakika işletim süresi için deneysel şartlar Çizelge 4.13.'de verilmiştir. 5'şer dakikalık zaman aralıklarında değişen Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (Wh) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D) grafikleri ise Şekil 4.13.'de yer almaktadır. 0.766 mg/L giriş As konsantrasyonu 30 dk sonunda yaklaşık 0.0001mg/L'ye inerken, As giderimi %99.987 olarak gerçekleşmiştir. Enerji tüketimi 6.107 Wh, akım yoğunluğu ise 2.68 mA/cm² olarak belirlenmiştir.

Çizelge 4.13. 10V-2A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları

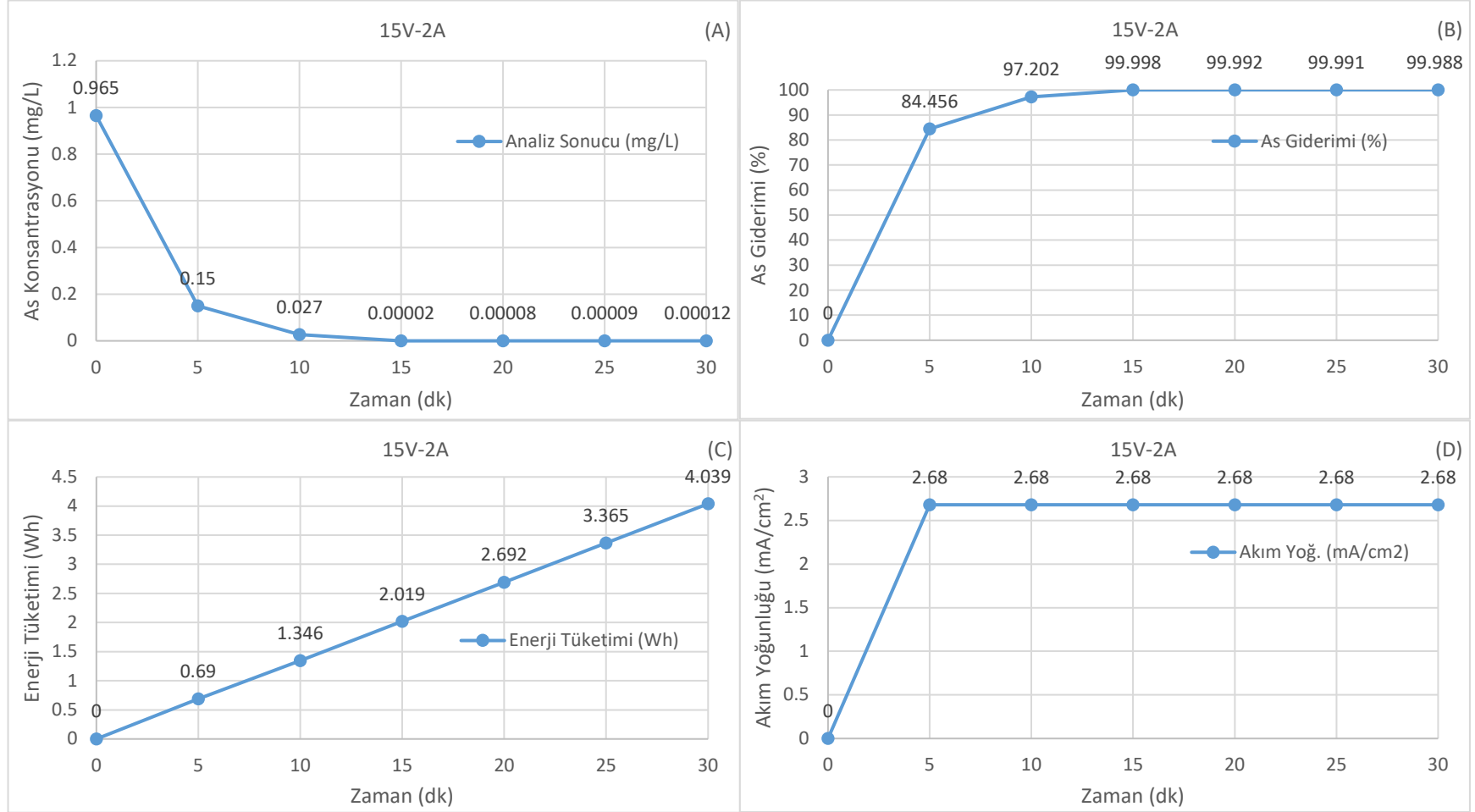
Başlangıç	10V-2A						
Zaman (dk)	0	5	10	15	20	25	30
pH	7.25	7.38	7.43	7.61	7.66	7.84	7.85
İletkenlik (µS /cm)	2350	2330	2340	2340	2330	2330	2330
Amper (A)	2	1.97	1.97	1.97	1.97	1.97	1.97
Gerilim (V)	10	6.4	6.3	6.2	6.2	6.2	6.2
Sıcaklık (°C)	18.6	18.7	18.8	19.0	19.1	19.3	19.5
Akım Yoğunluğu (mA/cm ²)	0	2.68	2.68	2.68	2.68	2.68	2.68
Enerji Tüketimi (Wh)	0	1.05067	2.0685	3.0535	4.07133	5.08917	6.107
Enerji Tüketimi (kWh/m ³)	0	0.1057	0.2069	0.3054	0.4071	0.5089	0.6107
As Analiz Sonucu (mg/L)	0.766	0.038	0.001	0.00001	0.00012	0.00008	0.0001
As Giderimi (%)	0	95.039	99.869	99.999	99.984	99.990	99.987
Faraday (F/m ³)	0	0.6124	1.2249	1.8373	2.4497	3.0622	3.6746
Elektrot Harcanması (mg/m ³)	0	0,009	0,018	0,027	0,036	0,045	0,054
Tuz (g/L)	1	1	1	1	1	1	1

Şekil 4.13. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D)

15V-2A akım şartlarında 30 dakika işletim süresi için deneysel şartlar Çizelge 4.14.'de verilmiştir. 5'şer dakikalık zaman aralıklarında değişen Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (Wh) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D) grafikleri ise Şekil 4.14.'de yer almaktadır. 0.965 mg/L giriş As konsantrasyonu 30 dk sonunda yaklaşık 0.0001 mg/L'ye inerken, As giderimi %99.988 olarak gerçekleşmiştir. Enerji tüketimi 4.039 Wh, akım yoğunluğu ise 2.68 mA/cm² olarak belirlenmiştir.

Çizelge 4.14. 15V-2A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartları

Başlangıç	15V-2A						
Zaman (dk)	0	5	10	15	20	25	30
pH	7.21	7.23	7.33	7.35	7.38	7.47	7.64
İletkenlik (µS/cm)	2410	2410	2410	2410	2410	2410	2410
Amper (A)	2	1.97	1.97	1.97	1.97	1.97	1.97
Gerilim (V)	15	4.2	4.1	4.1	4.1	4.1	4.0
Sıcaklık (°C)	19.7	19.8	19.8	19.9	20	20.1	20.2
Akım Yoğunluğu (mA/cm ²)	0	2.68	2.68	2.68	2.68	2.68	2.68
Enerji Tüketimi (Wh)	0	0.690	1.346	2.019	2.692	3.365	4.039
Enerji Tüketimi (kWh/m ³)	0	0.690	0.1346	0.2019	0.2692	0.3365	0.4039
Analiz Sonucu (mg/L)	0.965	0.15	0.027	0.00002	0.00008	0.00009	0.00012
As Giderimi (%)	0	84.456	97.202	99.998	99.992	99.991	99.988
Faraday (F/m ³)	0	0.6124	1.2249	1.8373	2.4497	3.0622	3.6746
Elektrot Harcanması (mg/m ³)	0	0,0065	0,013	0,0195	0,026	0,0325	0,039
Tuz (g/L)	1	1	1	1	1	1	1

Şekil 4.14. Zamana Bağlı Olarak Arsenik Konsantrasyonu (mg/L) (A), As Giderimi (%) (B), Enerji Tüketimi (%As) (C) ve Akım Yoğunluğu (mA/cm²) (D)

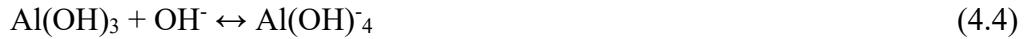
4.2. Arsenik Gideriminde pH'nın Etkisi

Bu bölümde yapılmış olan çalışmada arsenik giderimi üzerinde ortam pH'sının etkisi araştırılmıştır. 0.5-1 mg/L aralığında değişen başlangıç arsenik konsantrasyonları için deneyler yapılmış ve değişen zaman peryotlarında pH ölçümleri gerçekleştirilmiştir. Elektrokoagülasyon prosesinde sulu çözelti içerisinde anot ve katot reaksiyonları sonucu çözeltinin pH değerinde değişimler olmuştur.

Elektrokoagülasyon prosesinde koagülant üretimi kimyasal koagülasyona benzemektedir. Her iki proseste de alüminyumun hidrolizi ve bunun sonunda çeşitli alüminyum hidroksit polimer kompleks ve çökeltileri meydana gelmektedir (Can, 2002). Alüminyum anot-katot elektrot çifti kullanılan elektrokoagülasyon proseslerinde pH dengesi değişimi katot ve anotta meydana gelen indirgenme ve yükseltgenme reaksiyonları ile kontrol edilmektedir. Katotta hidrojen indirgenmekte ve anotta alüminyum yükseltgenmektedir.



Suyun katotta indirgenmesi sonucunda hidroksit birikmesi ve hidrojen gazı oluşumu sonucunda pH artmaktadır (Eşitlik 4.3). $\text{Al}(\text{OH})_3$ amfoterik metal hidroksit özelliğinden dolayı çok yüksek pH' larda mevcut OH^- iyonlarıyla reaksiyona girerek ortamın pH'sını düşürmektedir.



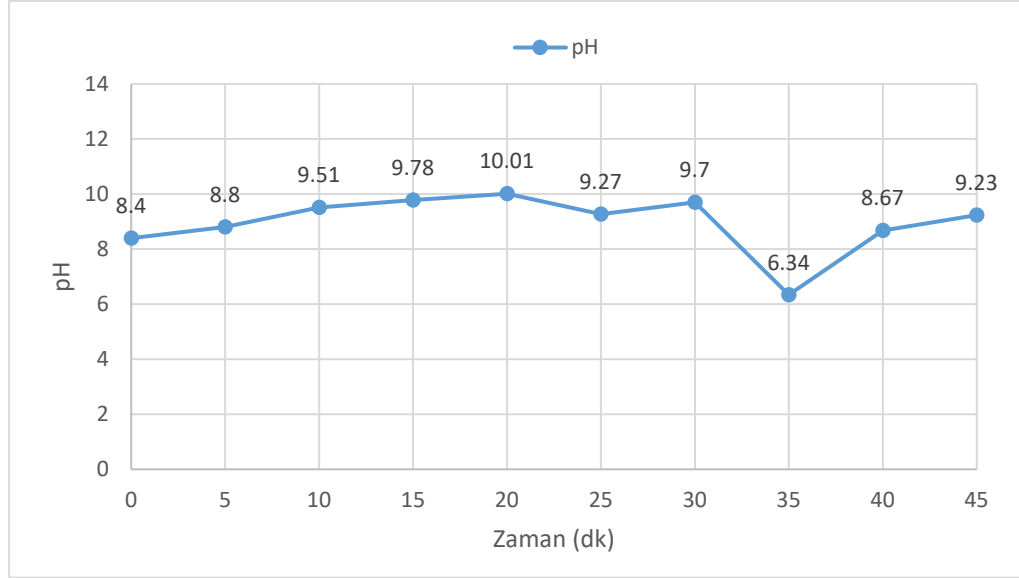
Elektrokoagülasyon deneylerinde alüminyum elektrot kullanıldığından dolayı düşük pH'lara sahip çözeltilerde pH değerleri bir süre sonra artmaktadır (Eşitlik 4.3). Elektrolizle alüminyum anot elektrot ve alüminyum katot elektrot çiftinden üretilen alüminyum iyonları, pH'ya bağlı olarak monomerik ve polimerik alüminyum hidroksit kompleks türlerini oluşturmaktadır. Monomerik olarak en çok bilinen

alüminyum hidroksit türleri; $Al(OH)^{2+}$, $Al(OH)_2^+$, $Al_2(OH)_2^{4+}$ ve polimerik olarak en çok bilinen alüminyum hidroksit türleri; $Al_6(OH)_{15}^{3+}$, $Al_7(OH)_{17}^{4+}$, $Al_{13}O_4(OH)_{24}^{7+}$, $Al_{13}(OH)_{34}^{5+}$ dir (Karpuzcu ve ark., 2000).

Çizelge 4.15.'de verilen 5V ve 2A akım şartlarında ve 45 dakikalık çalışma süresinde başlangıç pH'sı 8.4 iken 20. dakikada pH 10.01 'e yükselmiş ve 45 dakika sonunda pH 9.23 olarak ölçülmüştür. İşletim süresi sonuna kadar pH değerlerinde birtakım iniş-çıkışlar kaydedilmiştir (Şekil 4.15.). As giderimi 5. dakikada %61 iken 10. dakikadan sonra %99'un üzerinde giderim yüzdelerine ulaşılmıştır. Bu durum, pH'ya bağlı olarak oluşan monomerik ve polimerik alüminyum hidroksit komplekslerin polimerize olma eğiliminden kaynaklanır. Elektrokoagülasyon sisteminde pH'nın etkisi iletkenliğin yüksek olduğu durumlarda önemsizdir. 5V-2A akım değerinde 45 dakika işletim süresi boyunca pH değerleri minimum 6.34, maksimum 10.01 olarak kaydedilirken, As giderimi 5. dakika hariç tüm periyotlarda %99'un üzerinde bulunmuştur. 35. Dakikada pH 6.34 değerine indiğinde As giderim oranında önemli bir düşüş kaydedilmemiştir. Dolayısıyla daha çok bazik pH değerlerinde yürütülen bu denemede, As gideriminde pH'nın önemli bir etkisi gözlemlenememiştir.

Çizelge 4.15. 5V-2A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartlarında pH Değişimi

Başlangıç	5V-2A									
Zaman (dk)	0	5	10	15	20	25	30	35	40	45
pH	8.4	8.8	9.51	9.78	10.01	9.27	9.7	6.34	8.67	9.23
İletkenlik ($\mu\text{S/cm}$)	2330	2310	2300	2310	2300	2310	2300	2300	2300	2300
Amper (A)	2	1.51	1.53	1.55	1.55	1.56	1.58	1.58	1.56	1.56
Gerilim (V)	10	5	5	5	5	5	5	5	5	5
Sıcaklık ($^{\circ}\text{C}$)	19.6	19.6	19.7	19.8	20.0	20.1	20.2	20.3	20.5	20.6
Akım Yoğunluğu (mA/cm^2)	0	2.054	2.081	2.109	2.109	2.122	2.150	2.150	2.122	2.122
Enerji Tüketimi (Wh)	0	0.629	1.275	1.938	2.583	3.25	3.95	4.608	5.2	5.85
Enerji Tüketimi (kWh/m^3)	0	0.0629	0.1275	0.1938	0.2583	0.325	0.395	0.4608	0.52	0.585
As Analiz Sonucu (mg/L)	0.796	0.31	0.00002	0.00006	0.00001	0.00008	0.0001	0.00008	0.0001	0.00013
As giderimi (%)	0	61.055	99.997	99.992	99.999	99.990	99.987	99.990	99.987	99.984
Faraday (F/m^3)	0	0.4694	0.9513	1.4456	1.9275	2.4249	2.9472	3.4383	3.8798	4.3648
Elektrot Harcanması (mg/m^3)	0	0.008	0.016	0.024	0.032	0.04	0.048	0.056	0.064	0.072
Tuz (g/L)	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1



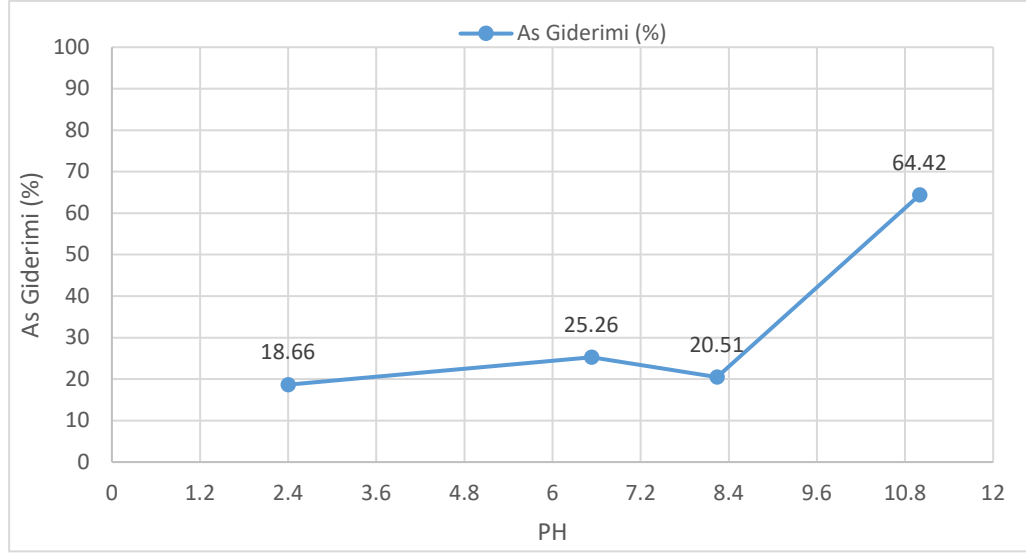
Şekil 4.15. 5V-2A Akım Uygulamasında Zamana Bağlı Olarak pH Değişimi

Asidik, nötr ve bazik şartların As gideriminde etkisini görebilmek için bir sonraki EK denemesi başlatılmıştır. Bu denemelerde gerilim değerleri düşürülerek 3V-2A akım şartları ve 10 dakikalık işletim süreleri esas alınmıştır. Yüksek gerilim ile giderim yüzdeleri artabileceğinden daha düşük akım şartları seçilerek pH'nın As giderimi üzerindeki etkisini daha rahat belirlemek amaçlanmıştır. Ayrıca artan işletim sürelerinde As giderimi yükselebileceğinden, tüm pH'larda süre 10 dakika ile sabitlenmiştir. Çizelge 4.16.'da 3V-2A akım şartlarında ve 10 dakikalık işletim sürelerinde 2.40, 6.53, 8.24 ve 11.00 pH değerleri için elde edilen sonuçlar yer almaktadır. Elektrokoagülasyon süresi başlangıç ve sonunda pH değerlerinde ufak da olsa iniş-çıkışlar yaşanmıştır. $Al(OH)_3$ amfoterik metal hidroksit özelliğinden dolayı pH şartlarında oluşan bu küçük değişimler yukarıda Esitlik 4.3. ve Eşitlik 4.4. ile açıklanmıştır. 3V-2A akım değerinde 10 dakikalık EK prosesi sonunda pH 2.4-8.9 aralığındaki As giderim yüzdeleri birbirine oldukça yakın olup, %19-%25 aralığında gerçekleşmiştir. pH 11 için ise %64 giderim elde edilmiştir (Şekil 4.16.). Yüksek pH seviyelerinde metallerin düşük çözünürlük özelliğinden dolayı, ortamda çözünmüş halde As konsantrasyonunun azalması giderim yüzdesinin artışına imkân vermiştir. Dolayısıyla Al floklarına tutunan veya arasında sıkışan As bileşikleri su ortamından giderilmiştir. Ancak 8-10 aralığındaki pH değerlerinde ve daha yüksek akım şartlarında yürütülen bir önceki çalışmada (5V-2A) elde edilen %99'un üzerinde As giderim yüzdeleri ile kıyaslandığında; As gideriminde sistemde yüksek akım

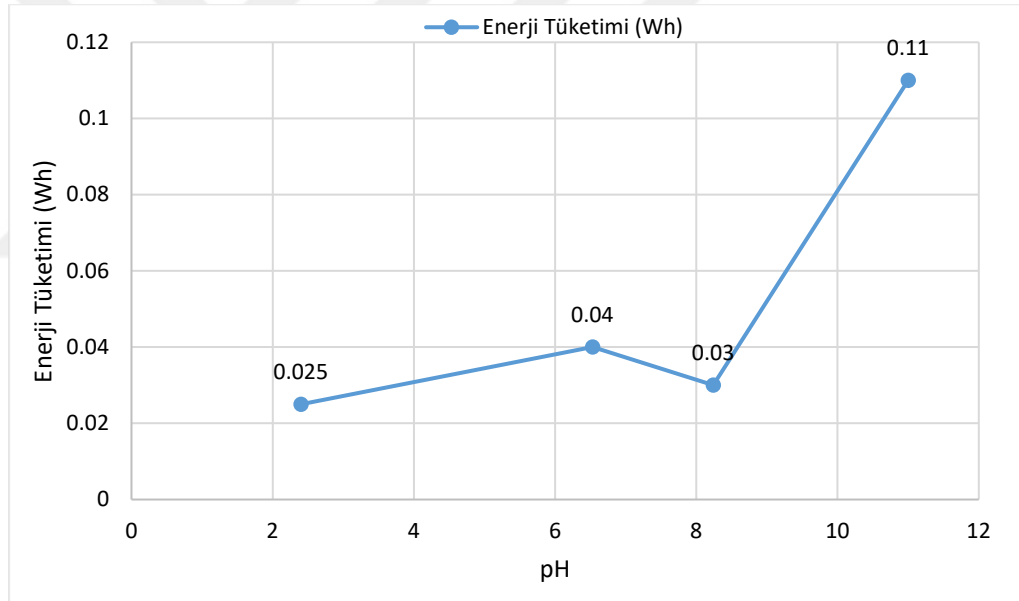
uygulamasının, yüksek pH'da sistemi işletmekten daha etkili olduğu görülmektedir. Bununla birlikte pH 10'un üzerine çıkınca As gideriminde önemli bir artış gözlenmektedir. Şekil 4.17.'de farklı pH değerleri için enerji tüketimi verilmektedir. 10 dakikalık çalışma süresinde enerji tüketimi pH 2.6 için 0.025Wh, pH 6.53 için 0.04 Wh, pH 8.24 için 0.03 Wh ve pH 11 için 0.11Wh olarak belirlenmiştir. Genellikle su ortamının alkali ya da asidik şartlarında alüminyumun akım verimi nötral durumdan daha yüksektir.

Çizelge 4.16. 3V-2A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartlarında pH'nın Etkisi

Başlangıç	3V-2A			
pH Giriş	2.40	6.53	8.24	11
pH Çıkış	2.60	7.53	8.86	10.56
İletkenlik ($\mu\text{S}/\text{cm}$) Giriş	495	388	380	789
İletkenlik ($\mu\text{S}/\text{cm}$) Çıkış	495	386	379	725
Amper (A)	0.1	0.08	0.06	0.22
Gerilim (V)	3	3	3	3
Sıcaklık ($^{\circ}\text{C}$) Giriş	19.1	17	18.1	18
Sıcaklık($^{\circ}\text{C}$) Çıkış	19.5	17.3	18.6	19.1
Zaman (dk)	10	10	10	10
Giriş Arsenik Konsantrasyonu (mg/L)	1.037	0.8216	0.9093	0.7419
Çıkış Arsenik Konsantrasyonu (mg/L)	0.8434	0.6141	0.7228	0.264
Akım Yoğunluğu (mA/cm^2)	0.14	0.109	0.081	0.30
Enerji Tüketimi (Wh)	0.025	0.04	0.03	0.11
Enerji Tüketimi (kWh/m^3)	0.0025	0.004	0.003	0.011
As Giderimi (%)	18.66	25.26	20.51	64.42
Al (ppm)	1.124	0.728	0.313	31.2
Faraday (F/m^3)	0.0622	0.0497	0.0373	0.1368



Şekil 4.16. 3V-2A Akım Şartlarında ve 10 dk İşletim Süresinde pH'ya Bağlı Olarak As Giderimi

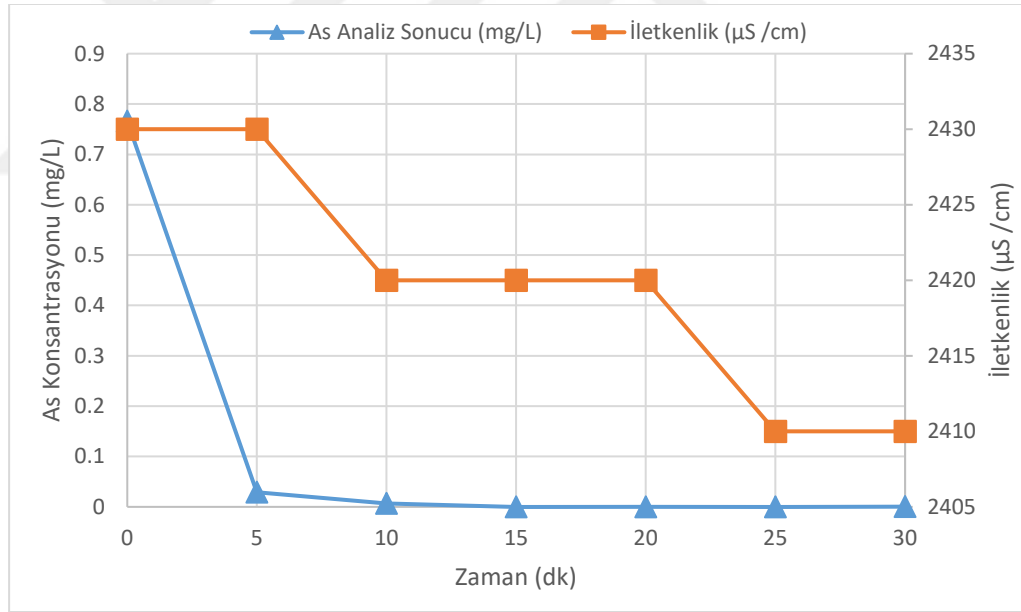


Şekil 4.17. 3V-2A Akım Şartlarında ve 10 dk İşletim Süresinde pH'ya Bağlı Olarak Enerji Tüketimi

4.3. Arsenik Gideriminde İletkenliğin Etkisi

İletkenliği arttırmak için tuz kullanılmıştır. Elektrokoagülasyon prosesinde yapılan denemelerde kullanılan musluk suyunun iletkenliği 350-410 $\mu\text{S}/\text{cm}$ aralığında iken 1g/L NaCl ilavesi ile 2430 $\mu\text{S}/\text{cm}$ 'ye yükselmiştir (Çizelge 4.10.).

Arsenik gideriminde kullanılan ve laboratuvarında hazırlanan sentetik arsenikli su üzerinde deney başlangıcında ve deney sonucunda iletkenlik ölçümleri yapılmıştır. Zamanla EK prosesinde iletkenliğin değişimini belirlemek için 5'er dakikalık aralıklarla iletkenlik değerleri okunmuş ve zamana bağlı olarak iletkenlik değişim grafiği Şekil 4.18.'de verilmiştir. Aynı şekil üzerinde görüldüğü üzere, giriş ve çıkış arsenik konsantrasyonundaki azalışa paralel olarak, iletkenlik değerleri de bir miktar azalış kaydederek, giriş iletkenlik 2430 $\mu\text{S}/\text{cm}$ 'den 2410 $\mu\text{S}/\text{cm}$ 'ye (çıkış iletkenlik değeri) düşmüştür (Çizelge 4.10.). Bu durum çözünmüş halde iletkenlik artışına neden olan anyon ve katyonların bileşikler oluşturarak ve flokların yardımıyla ya tabanda çökelerek ya da yüzeyde birikerek ortamdaki uzaklaştırıldığını göstermektedir. Ancak 30 dakikalık işletim süresi sonunda iletkenlikte önemli bir değişimin olmadığı düşünülmektedir. Çünkü As giderimini arttırmak için ortama ilave edilen tuz (NaCl) iletkenliği kontrol eden asıl unsur olarak görülebilir.



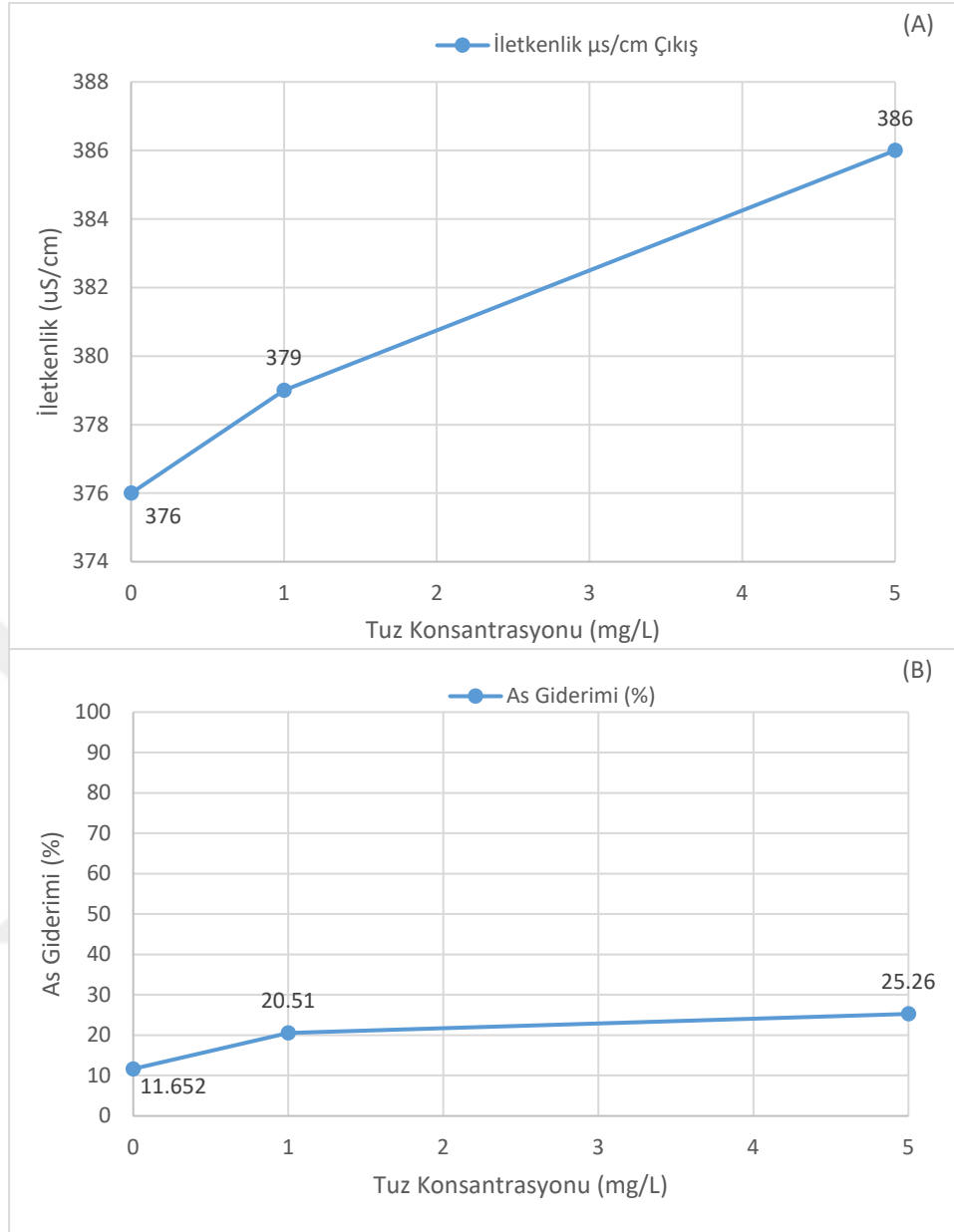
Şekil 4.18. İletkenlik ve As Konsantrasyonunun Zamana Göre Değişimi (5V-1A Akım Şartlarında)

Elektrokoagülasyon prosesinde elektrolit çözeltisinin iletkenliği önemli bir faktördür. Sentetik olarak hazırlanan suyun iletkenliğini arttırmak için NaCl kullanılmıştır.

3V-2A akım şartları ve 10 dakikalık işletim süreleri esas alınarak (yüksek gerilim ile giderim yüzdeleri artabileceğinden daha düşük akım şartları seçilmiştir) tuzun As giderimi üzerindeki etkisini daha rahat belirlemek amaçlanmıştır. Çizelge 4.17.'de 3V-2A akım şartlarında ve 10 dakikalık işletim sürelerinde 0 mg/L, 1mg/L ve 5 mg/L tuz konsantrasyonu değerleri için elde edilen sonuçlar yer almaktadır. 3V-2A akım değerinde 10 dakikalık EK prosesi sonunda tuz konsantrasyonunu 0 mg/L'den 5 mg/l'ye arttırınca çıkış iletkenlik değerleri 376 $\mu\text{s/cm}$ 'den 386 $\mu\text{s/cm}$ 'ye artarken, As gideriminin de %11.65'den %25.26'ya yükseldiği görülmektedir (Şekil 4.19.). Tüm diğer şartlar sabit olduğu halde, 5 mg/L tuz konsantrasyonu ile As gideriminde yaklaşık %15'lik bir artış sağlandığı farkedilmektedir. Ayrıca ortama ilave edilen NaCl ile suyun iletkenliğini artırarak elektrik sarfiyatının azalmasına da imkan verildiği bilinmektedir.

Çizelge 4.17. 3V-2A Akım Uygulaması İçin Deneysel Çalışma Şartlarında Tuzun Etkisi

Başlangıç	3V-2A		
	0	1	5
Tuz (mg/L)	0	1	5
Zaman (dk)	10	10	10
pH Giriş	8.5	8.86	7.53
pH Çıkış	8.06	8.24	6.53
İletkenlik $\mu\text{s/cm}$ Giriş	380	380	388
İletkenlik $\mu\text{s/cm}$ Çıkış	376	379	386
Amper (A)	0.04	0.06	0.08
Gerilim (V)	3	3	3
Sıcaklık ($^{\circ}\text{C}$) Giriş	17.2	18.1	17
Sıcaklık ($^{\circ}\text{C}$) Çıkış	17.5	18.6	17.3
Arsenik Analiz Sonucu (mg/L) Giriş	0.8582	0.9093	0.8216
Arsenik Analiz Sonucu (mg/L) Çıkış	0.7562	0.7228	0.6141
Akım Yoğunluğu (mA/cm^2)	0.054	0.081	0.109
Enerji Tüketimi (Wh)	0.02	0.03	0.04
Enerji Tüketimi (kWh/m^3)	0.002	0.003	0.004
As Giderimi (%)	11.652	20.51	25.26
Al ppm Giriş	0.15	0.142	0.218
Al ppm Çıkış	0.458	0.313	0.728
Faraday (F/m^3)	0.0249	0.0373	0.0497



Şekil 4.19. 3V-2A Akım Şartlarında ve 10 dakika İşletim Süresinde Tuz konsantrasyonuna Bağlı Olarak İletkenlik Değişimi (A) ve Tuz Konsantrasyonuna Bağlı Olarak As Giderimi (%) (B)

4.4. Arsenik Gideriminde Elektrokoagülasyon Süresinin Etkisi

Bu kısımda arsenik giderimi üzerinde elektrokoagülasyon süresinin etkisi çalışılmıştır. Elektrokoagülasyon prosesinde diğer şartlar sabit tutularak 5 dakika ile 30 dakika arasında proses devam ettirilmiş ve numuneler alınmıştır. Artan sürelerde ve 0.14 mA/cm^2 ve 1.29 mA/cm^2 akım yoğunlukları için As giderim oranları ayrı ayrı incelenmiş ve deney şartları sırasıyla Çizelge 4.18. ve Çizelge 4.19.'da

verilmiştir. İşletim süresinin artışıyla birlikte arsenik giderim yüzdelerinin arttığı görülmüştür (Şekil 4.20. ve Şekil 4.22.). Prose süresi doğrudan enerji tüketimini de etkilemektedir. Enerji tüketimi 0.14 ve 1.29 mA/cm² akım yoğunluğunun her ikisi için de arsenik giderim süresine bağlı olarak artmaktadır (Şekil 4.21. ve Şekil 4.23.). Şekil 4.23.'de görüldüğü gibi 1.29 mA/cm² akım yoğunluğunda 5 dk'dan 30 dk'ya artan sürede enerji tüketimi 0.316 Wh'den 1.805 Wh'e yükselmektedir. İşletim süresi uzadıkça arsenik giderim oranlarıyla birlikte enerji tüketimi de artış göstermektedir. Sonuçlar literatürle uyumludur (Dönmez, 2011; Can, 2010).

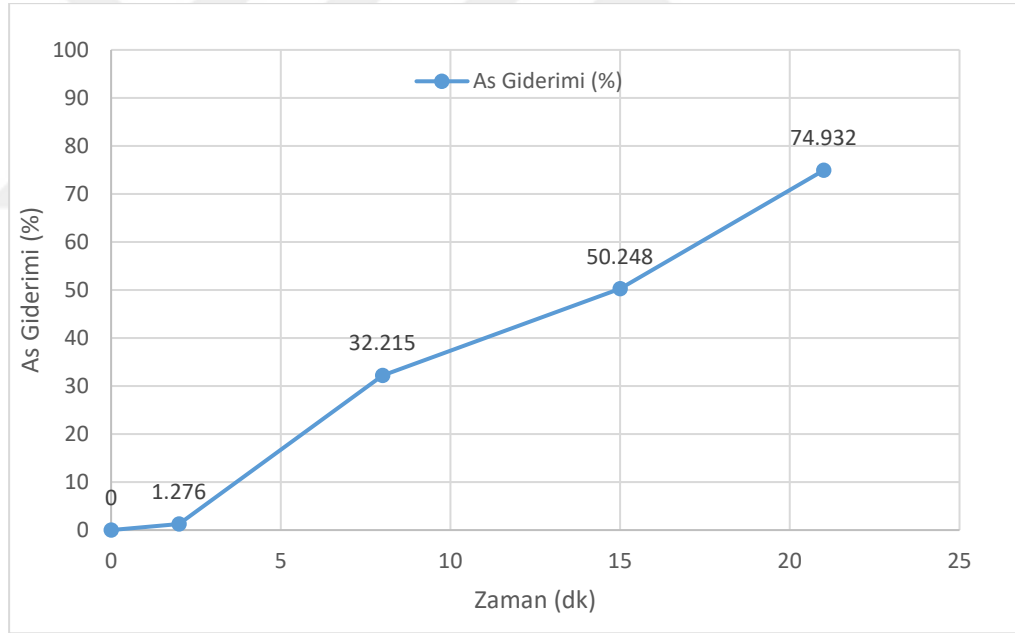
Maliyetler ve enerji tüketimi göz önünde bulundurulduğunda optimum işletim süresi 10 dakika olarak kabul edilebilir. 10 dakikalık işletim süresinde %99.09 giderim verimi elde edilmiştir. Sabit akım yoğunluğu, sabit iletkenlik ve farklı zaman periyotlarında yapılan denemelerde süredeki değişime bağlı olarak her bir deney için enerji tüketimi farklı hesaplanmıştır. Elektroagülasyon prosesinde farklı yoğunluklarda yapılan denemelerde süre artışına bağlı olarak enerji tüketimi 5. dakikada 0.316 Wh iken 30. dakikada 1.805 Wh'e yükselmiştir.

Çizelge 4.18. 3V-2A Akım Uygulaması ve 0.14 mA/cm² Akım Yoğunluğu için Deneysel Şartlar ve Proses İşletim Süresinin Etkisi

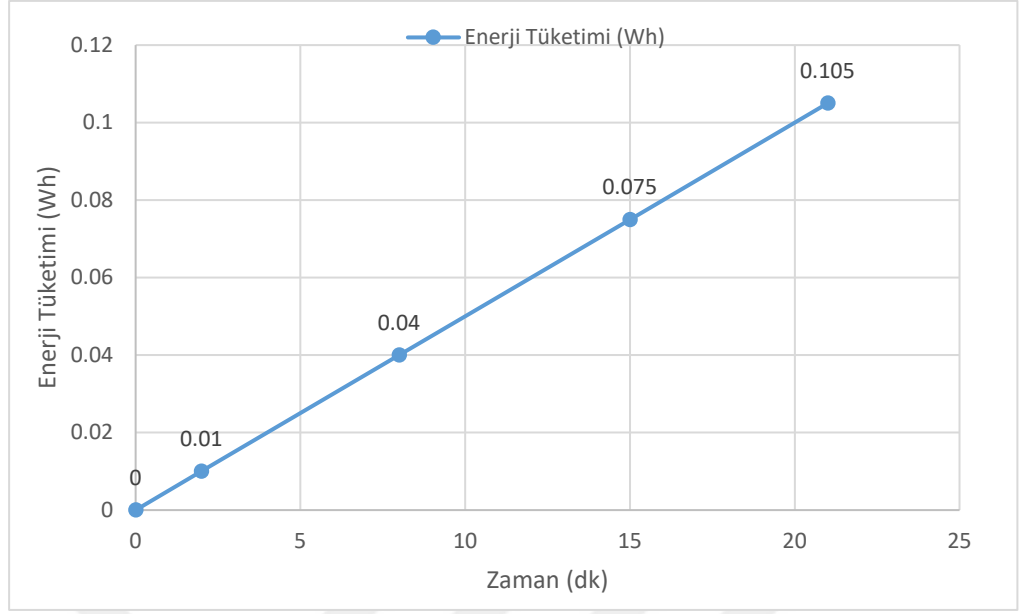
Başlangıç	3V-2A				
Zaman (dk)	0	2	8	15	21
pH	8.15	7.9	7.55	7.81	7.94
İletkenlik (µS/cm)	386	384	383	385	379
Amper (A)	2	0.1	0.1	0.1	0.1
Gerilim (V)	3	3	3	3	3
Sıcaklık (°C)	19.5	19.9	19.7	19.9	20.4
As Analiz Sonucu (mg/L)	0.8074	0.7971	0.5473	0.4017	0.2024
Akım Yoğu. (mA/cm ²)	0	0.14	0.14	0.14	0.14
Enerji Tüketimi (Wh)	0	0.01	0.04	0.075	0.105
Enerji Tüketimi (kWh/m ³)	0	0.001	0.004	0.0075	0.0105
As Giderimi (%)	0	1.276	32.215	50.248	74.932
Faraday (F/m ³)	0	0.0124	0.0497	0.0933	0.1306

Çizelge 4.19. 5V-1A Akım Uygulaması ve 1.29 mA/cm² Akım Yoğunluğu için Deneysel Şartlar ve Proses İşletim Süresinin Etkisi

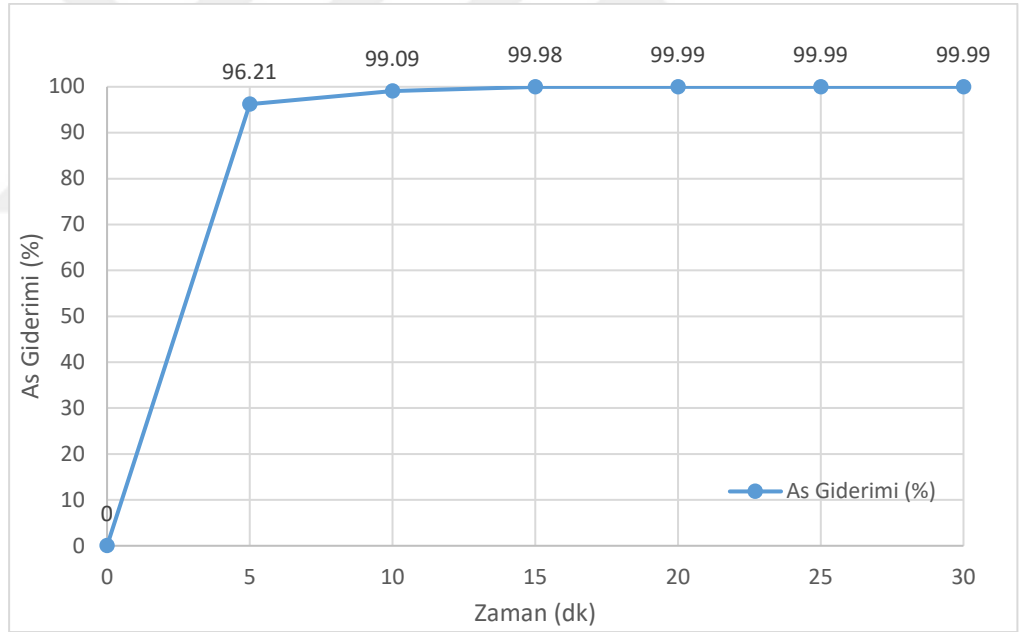
Başlangıç	5V-1A						
Zaman (dk)	0	5	10	15	20	25	30
pH	7.03	7.32	7.4	7.61	7.69	7.74	7.86
İletkenlik (µS/cm)	2430	2430	2420	2420	2420	2410	2410
Amper (A)	1	0.95	0.95	0.95	0.95	0.95	0.95
Gerilim (V)	5	4	3.9	3.8	3.8	3.8	3.8
Sıcaklık (°C)	19.8	19.9	20	20.1	20.2	20.3	20.4
Akım Yoğunluğu (mA/cm ²)	0	1.29	1.29	1.29	1.29	1.29	1.29
As Analiz Sonucu (mg/L)	0.766	0.029	0.007	0.00008	0.00006	0.00007	0.00011
Enerji Tüketimi (Wh)	0	0.316	0.618	0.903	1.203	1.504	1.805
Enerji Tüketimi (kWh/m ³)	0	0.0316	0.0618	0.0903	0.0903	0.1504	0.1805
As Giderimi (%)	0	96.21	99.09	99.98	99.99	99.99	99.99
Faraday (F/m ³)	0	0.295	0.591	0.886	1.181	1.477	1.772
Elektrot Tüketimi (mg/m ³)	0	0,004	0,008	0,012	0,016	0,02	0,024



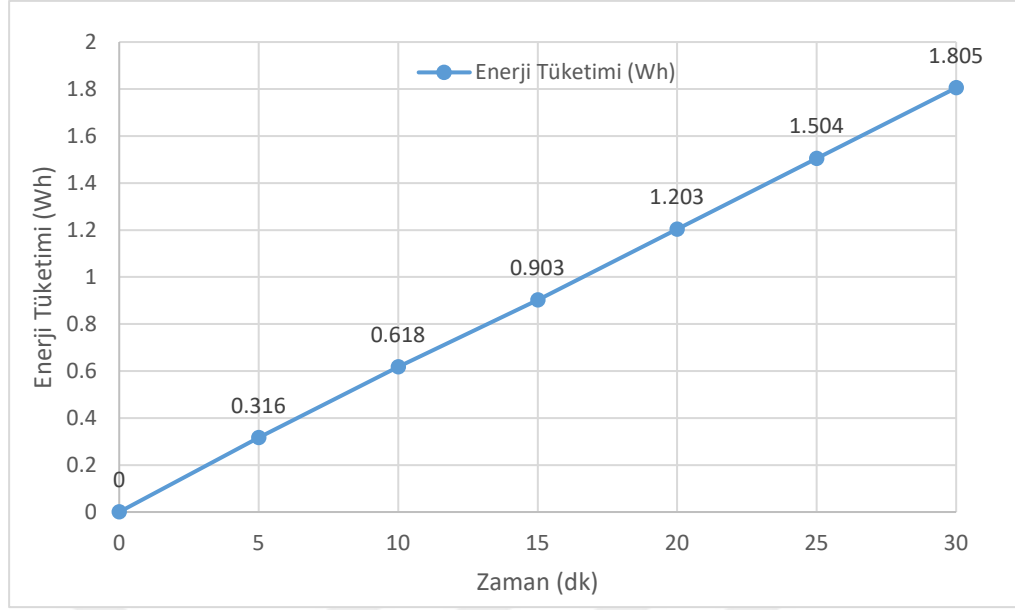
Şekil 4.20. 3V-2A Akım şartlarında Zamana Bağlı Olarak As giderimi (%)



Şekil 4.21. 3V-2A Akım Şartlarında Zamana Bağlı Olarak Enerji Tüketimi (Wh)



Şekil 4.22. 5V-1A Akım Şartlarında Zaman Bağlı Olarak Arsenik Giderimi (%)



Şekil 4.23. 5V-1A Akım Şartlarında Zamana Bağlı Olarak Enerji Tüketimi (Wh)

4.5. Arsenik Gideriminde Akım Yoğunluğunun Etkisi

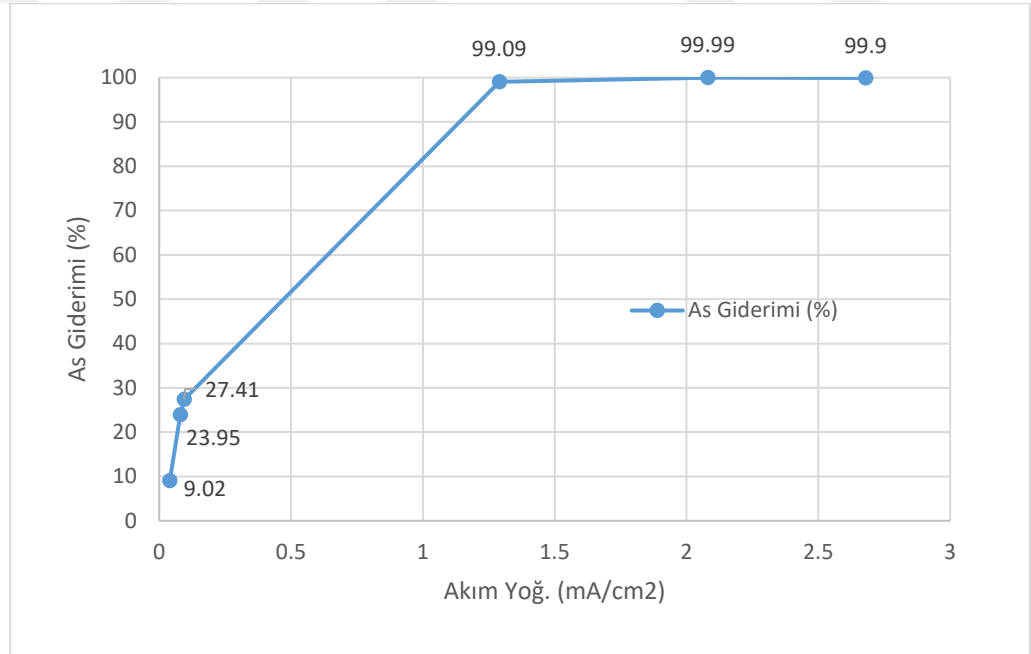
Elektrokoagülasyon prosesinde aktif elektrot yüzey alanı ve sisteme uygulanacak akım arasındaki ilişki akım yoğunluğu olarak bilinmektedir. Elektrokoagülasyon sistemine uygulanan akım şiddetine bağlı olarak çözünen anot elektrot miktarı arasında bir ilişki vardır. Akım yoğunluğu birim anot aktif elektrot yüzey alanına uygulanan akım miktarı (mili Amper veya Amper) olduğuna göre akım miktarının artması ile çözünen anot miktarının arttığı görülür (Çizelge 4.20.). Diğer taraftan EK prosesinde elektrokimyasal çözünmenin (Faraday yasası) yanı sıra reaktördeki proses kimyasına bağlı olarak katodik çözünme de gözlenebilir. Bunun en önemli kanıtı ise akım verimliliğinden belirlenir. Faraday Yasası'na göre elektrokoagülasyon prosesinde akım yoğunluğu ile ilişkili olarak sadece anot elektrotların çözünmesi gerekir. Fakat akım verimliliğinin %100 'ün üzerinde olması katotların da çözüldüğünü göstermektedir. Normal koşullarda katot elektrotunda H₂ çıkışı ve anot elektrotunda çözünme (Al) gözlenecektir. Anot elektrotlardan çözünen metal miktarı dışında elektrokoagülasyon sisteminin arıtım verimini etkileyecek flokların boyutu ve büyüklüğü ve gaz kabarcıklarının oluşum hızı da akım yoğunluğuna bağlıdır. Akım yoğunluğunun artması gaz kabarcıkların yoğunluğunu artırırken, boyutların azalmasına neden olmaktadır (Khosla, 1991). EK prosesinde

anot Al elektrotların çözünerek çözeltiye iyonların geçişi Faraday kanunu ile ifade edilir (Mollah, 2004; Adhoum ve Monser, 2004).

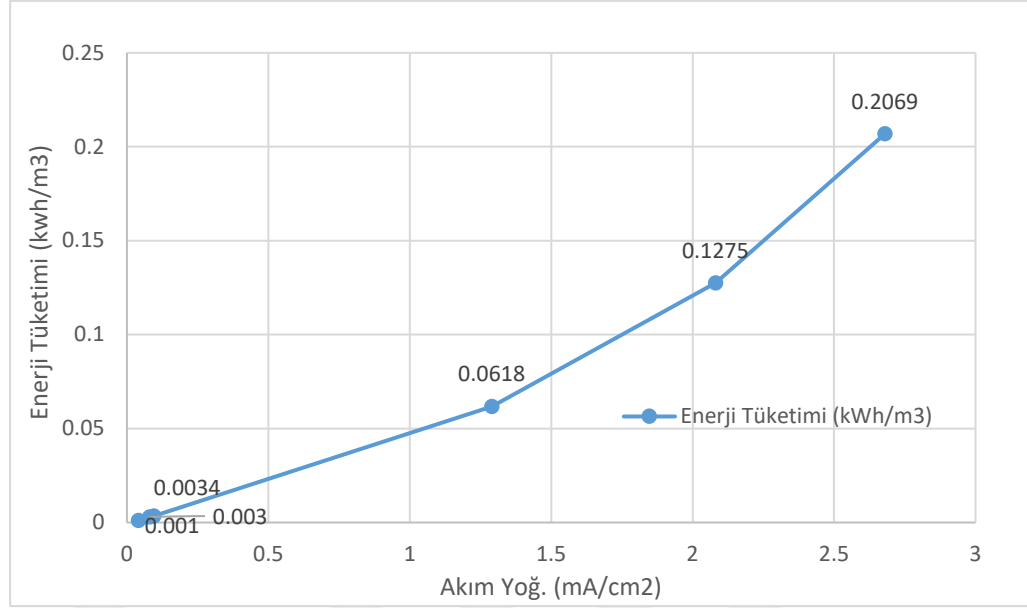
Başlangıç konsantrasyonu 0.5-1 mg/L arasında olan sentetik arsenikli suyun arıtma verimi üzerinde akım yoğunluğunun etkisi araştırılmıştır. 0,04-2.68 mA/cm² akım yoğunluğu aralığında çeşitli denemeler yapılmıştır. Çizelge 4.20.' de ve Şekil 4.24. ve Şekil 4.25.'te deney şartları ve sonuçları verilmiştir. Sonuçlardan da anlaşılacağı üzere akım yoğunluğu arttıkça arsenik giderim verimi artmıştır. Elektrokoagülasyon sisteminin 10 dk çalışma süresinde 0.04 mA/cm² akım yoğunluğunda %9.02 As giderim verimi elde edilirken 2.68 mA/cm² akım yoğunluğunda ise As giderim verimi %99,99'a çıktığı görülmüştür. 10 dk çalışma süresinde 0.04 mA/cm² akım yoğunluğunda enerji tüketimi 0.01 Wh'dir. Akım yoğunluğunun artmasına bağlı olarak elektrotlar arası potansiyel fark arttığından dolayı 2.68 mA/cm² akım yoğunluğunda enerji tüketimi 2.0685 Wh olarak tespit edilmiştir. Değişen sürelerde ve değişen akım yoğunluklarında gerçekleştirilen denemelerde, akım yoğunluğundaki artışla elektrotlar arası potansiyel fark artmıştır. Dolayısıyla akım yoğunluğu arttıkça her bir deney için enerji tüketimi ve As giderim verimi artmıştır. Sonuçlar literatürle uyumludur (Can, 2010; Ulu, 2010; Dönmez, 2011).

Çizelge 4.20. Değişen Akım Yoğunluklarında Oluşturulan Deneysel Şartlar

Başlangıç	2V-1A	3V-1A	3V-1.5A	5V-1A	5V-2A	10V-2A
Zaman (dk)	10	10	10	10	10	10
İletkenlik ($\mu\text{s/cm}$) Giriş	402	398	391	2430	2330	2340
İletkenlik ($\mu\text{s/cm}$) Çıkış	401	400	390	2420	2300	2340
Amper (A)	0.03	0.06	0.07	0.95	1.53	1.97
Gerilim (V)	2	3	2.9	3.9	5	6.3
Sıcaklık ($^{\circ}\text{C}$)Giriş	27.4	19.3	18.6	19.8	19.6	18.8
Sıcaklık ($^{\circ}\text{C}$)çıkış	27.4	19.4	18.6	20	19.7	18.8
Akım Yoğunluğu (mA/cm^2)	0.04	0.08	0.095	1.29	2.081	2.68
Enerji Tüketimi (Wh)	0.01	0.03	0.0338	0.618	1.275	2.0685
Enerji Tüketimi (kWh/m^3)	0.001	0.003	0.0034	0.0618	0.1275	0.2069
As Analiz Sonucu Giriş mg/L	0.9765	0.860	0.602	0.766	0.796	0.766
As Analiz Sonucu Çıkış mg/L	0.8884	0.654	0.437	0.007	0.00002	0.001
As Giderimi (%)	9.02	23.95	27.41	99.09	99.99	99.9
Faraday (F/m^3)	0.0187	0.0373	0.0435	0.5907	0.9513	1.2249
Al (mg/L) Giriş	0.886	0.176	-	-	-	-
Al (mg/L) Çıkış	0.309	0.139	-	-	-	-
pH Giriş	6.69	-	-	7.03	8.4	7.25
pH Çıkış	7.35	-	-	7.40	9.51	7.43
Elektrot Tüketimi (mg/m^3)	-	-	-	0,008	0,016	0,018



Şekil 4.24. Akım Yoğunluğuna Bağlı Olarak Arsenik Giderim Verimi



Şekil.4.25. Akım Yoğunluğuna Bağlı Olarak Enerji Tüketimi

4.6. Optimum Koşullara Göre Maliyet Hesabı

Optimum koşulda 10 dk arıtma süresinde 5V-1A, giriş arsenik konsantrasyonu 0.766 mg/L için, iletkenlik değeri 2430 $\mu\text{s/cm}$ ve 1.29 akım yoğunluğunda 6.18×10^{-4} kWh elektrik sarfiyatı gerçekleşmiştir. EPDK (Enerji Piyasası Düzenleme Kurumu) tarafından ulusal tarifelerde açıklanan Mart 2019 tarihli tek zamanlı mesken elektrik kWh fiyatı 0.5375 TL/kWh üzerinden hesaplanmıştır. Optimum koşul için yapılan 10 dk'lık çalışma süresinde toplam enerji tüketimi 3.32×10^{-4} TL'dir. Örnek olarak 10dk arıtma süresinde yapılacak çalışmada giriş arsenik konsantrasyonu 0.766 mg/L ve iletkenlik değeri 2430 $\mu\text{s/cm}$ parametrelerindeki kesikli olarak çalıştırılan 100 L arselikli suyun 1.29 akım koşullarında EK prosesi ile arıtımı için enerji tüketimi maliyeti 3.3×10^{-3} TL'tir.

Çizelge 4.21. Debiye Göre EK Prosesinde Enerji Tüketim Maliyeti Toblosu

Debi(L)	Enerji Tüketimi (kWh)	Birim Elektrik Fiyatı (TL/ kWh)	10 dk Çalışma Süresindeki Tutar (TL)	Günlük maliyet (TL/gün)
10	6.18×10^{-4}	0.5375	3.32×10^{-4}	0.0475
100	6.18×10^{-3}	0.5375	3.3×10^{-3}	0.475

5. SONUÇ ve ÖNERİLER

Çok düşük konsantrasyonda bile canlılar üzerinde zehirleyici etkisi olan ve yaşadığımız bölgede jeotermal bir su kaynağında kabul edilebilir ($10\mu\text{g/L}$) limitlerin üzerinde ($44\ \mu\text{g/L}$) tespit edilen arseniğin elektrokoagülasyon yöntemi ile giderimi araştırılmıştır. Amerika Çevre Koruma Ajansı tarafından sulardan arsenik giderimi için en uygun teknolojiler (Best Available Technologies) olarak seçilen yöntemlerden biri olan elektrokoagülasyon yöntemi kullanılmıştır. Başlangıç konsantrasyonu $0.5-1.193\ \text{mg/L}$ arasında olan sentetik arsenikli su üzerinde alüminyum katot-alüminyum anot elektrot çifti kullanılarak elektrokoagülasyon prosesi uygulanmıştır. Arsenik giderimi üzerinde pH, iletkenlik, tuz konsantrasyonu, proses süresi, akım yoğunluğu gibi parametrelerin etkileri incelenmiştir. Ayrıca, arsenik giderim süresince elektrokoagülatörde gerçekleşen enerji tüketimleri hesaplanmıştır.

Alüminyum katot-alüminyum anot elektrot çifti ile yapılan elektrokoagülasyon denemelerinde $1.29\ \text{mA/cm}^2$ akım yoğunluğunda 5 dk ile 30 dk arasında farklı zaman periyotlarında yapılan deney sonuçlarına göre minimum süre olarak belirlenen 10 dk'lık zaman dilimi sonucunda %99'un üzerinde As giderimi elde edilmiştir. 30 dakika sonunda yaklaşık %100 giderim kaydedilmiştir. 5dk-30dk'lık sürelerde enerji tüketimi sırasıyla $0.316\ \text{Wh} - 1.805\ \text{Wh}$ olmuştur. İşletim süresi uzadıkça arsenik giderim oranlarıyla birlikte enerji tüketimi de artış göstermiştir. Toplam sürede elde edilen yaklaşık giderim oranına 10. dakikada ulaşıldığından, enerji tüketimini arttırmamak adına $1.29\ \text{mA/cm}^2$ akım yoğunluğu için bu değer optimum işletim süresi olarak kabul edilebilir.

Elektrokoagülasyon deneylerinde alüminyum elektrot kullanıldığından dolayı düşük pH'lara sahip çözeltilerde pH değerleri bir süre sonra artmaktadır. 5V ve 2A akım şartlarında ve 45 dakikalık çalışma süresinde başlangıç pH'sı 8.4 iken 20. dakikada pH 10.01'e yükselmiş ve 45 dakika sonunda pH 9.23 olarak ölçülmüştür. As giderimi 5. dakikada %61 iken 10. dakikadan sonra %99'un üzerinde giderim

yüzdelerine ulaşılmıştır. pH değerleri minimum 6.34, maksimum 10.01 olarak kaydedilirken, As giderimi 5. dakika hariç tüm periyotlarda %99'un üzerinde bulunmuştur. Dolayısıyla daha çok bazik pH değerlerinde yürütülen bu denemede, As gideriminin de pH'nın önemli bir etkisi gözlemlenmemiştir. Elektrokoagülasyon sisteminde pH'nın etkisi iletkenliğin yüksek olduğu durumlarda önemsizdir. Asidik, nötr ve bazik şartların As gideriminin de etkisini görebilmek için, gerilim değerleri düşürülerek 3V-2A akım şartları ve 10 dakikalık işletim süreleri esas alınmıştır. Ayrıca artan işletim sürelerinde As giderimi yükselbileceğinden, tüm pH'larda süre 10 dakika ile sabitlenmiştir. 2.40-8.90 aralığındaki pH değerleri için As giderim yüzdeleri birbirine oldukça yakın olup, %19-%25 aralığında gerçekleşmiştir. pH 11 için ise %64 giderim elde edilmiştir (Şekil 4.16.).

Sonuç olarak 5V-2A için elde edilen %99'un üzerinde As giderim yüzdelerine bakıldığında, As gideriminde sistemde yüksek akım uygulamasının, yüksek pH'da sistemi işletmekten daha etkili olduğu görülmektedir. Bununla birlikte pH 10'un üzerine çıkınca As gideriminde önemli bir artış gözlenmektedir. 10 dakikalık çalışma süresinde enerji tüketimi pH 2.4 için 0.025 Wh, pH 6.53 için 0.04 Wh, pH 8.24 için 0.03 Wh ve pH 11 için 0.11 Wh olarak belirlenmiştir.

Zamanla EK prosesinde iletkenliğin değişimini belirlemek için 5'er dakikalık aralıklarla iletkenlik değerleri okunmuş ve zamana bağlı olarak iletkenlik değişim grafikleri oluşturulmuştur. Arsenik konsantrasyonundaki azalışa paralel olarak, iletkenlik değerleri de bir miktar azalış kaydederek, giriş iletkenlik 2430 $\mu\text{S}/\text{cm}$ 'den 2410 $\mu\text{S}/\text{cm}$ 'ye düşmüştür. Bu durum çözülmüş halde iletkenlik artışına neden olan anyon ve katyonların bileşikler oluşturarak ve flokların yardımıyla ya tabanda çökerek ya da yüzeyde birikerek ortamdan uzaklaştırıldığını göstermektedir. Ancak 30 dakikalık işletim süresi sonunda iletkenlikte önemli bir değişimin olmadığı düşünülmektedir. Çünkü As giderimini arttırmak için ortama ilave edilen tuz (NaCl) iletkenliği kontrol eden asıl unsur olarak görülebilir. 3V-2A akım şartları ve 10 dakikalık işletim süreleri esas alınarak (yüksek gerilim ile giderim yüzdeleri artabileceğinden daha düşük akım şartları seçilmiştir) tuzun As giderimi üzerindeki etkisini belirlemek amacıyla, 0 mg/L, 1mg/L ve 5 mg/L tuz konsantrasyonu değerleri

için As giderim yüzdeleri bulunmuştur. Tuz konsantrasyonunu 0 mg/L'den 5 mg/l'ye arttırınca çıkış iletkenlik değerleri 376 $\mu\text{s/cm}$ 'den 386 $\mu\text{s/cm}$ 'ye artarken, As gideriminin de %11.65'ten %25.26'ya yükselmiştir. Tüm diğer şartlar sabit olduğu halde, 5 mg/L tuz konsantrasyonu ile As gideriminde yaklaşık %15'lik bir artış sağlanmıştır.

Zaman sabit tutularak 0.04 mA/cm² ve 2.68 mA/cm² akım yoğunluğu aralığında çeşitli deneyler yapılmıştır. Elektrokoagülasyon yönteminde 10 dk çalışma süresinde 1.29 mA/cm² akım yoğunluğunda %99.09 arsenik giderim verimi elde edilmiş; 2.68 mA/cm² akım yoğunluğunda ise 10 dk çalışma süresinde arsenik giderim verimi %99,99 olarak belirlenmiştir. Enerji tüketimi de akım yoğunluğu arttıkça artmıştır. 1.29 mA/cm² akım yoğunluğunda 0.618 Wh enerji tüketimi ve 2.68 mA/cm² akım yoğunluğunda 2.0685 Wh enerji tüketimi olmuştur. Giderim verimi, enerji tüketimi ve kabul edilebilir arsenik limit değeri (10 $\mu\text{g/L}$) göz önüne alındığında As giderimi için optimum akım yoğunluğu 1.29 mA/cm² olarak önerilmiştir.

Kimyasal koagülasyon işleminde kimyasal madde kullanımından kaynaklı yüksek işletme giderleri söz konusudur. Ayrıca oluşan yüksek çamur miktarları, bunların bertaraf maliyetleri, kullanılan koagülant-flokülant bedelleri ve diğer kimyasal giderler bu proses için büyük bir dezavantaj oluşturmaktadır. Dolayısıyla Elektrokoagülasyon prosesinin tüm bu dezavantajları ortadan kaldırdığı görülmektedir. EK yönteminin gerektirdiği yüksek enerji sarfiyatları ise, laboratuvarında optimum akım yoğunlukları ve işletim süreleri belirlenerek en aza indirgenebilmektedir. Sonuçta bu çalışma ile yeraltı suyundan arsenik giderimin de elektrokoagülasyon prosesinin uygulanabilir bir yöntem olduğu görülmüştür.

KAYNAKLAR

- ADHOUM N., MONSER L., 2004. Decolourization and removal of phenolic compounds from olive mill wastewater by electrocoagulation, *Chem. Eng. Proces.* 43,1281–1287.
- AKDENİZ, İ., 2002. Toprak ve Su gibi Çevre Örneklerinde Arsenik Tayini ve Türlemesi. Fırat Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Doktora Tezi, Elazığ, 3-7.
- BALASUBRAMANIAN, N., MADHAVAN, K., 2001. Arsenic removal from industrial effluent through electrocoagulation. *Chem. Eng. Technol.*, 24 (5) 519.
- BALASUBRAMANIAN, N., TOSHINORI, K., BASHA, A. C., SRINIVASAKANNAN, C., 2009. Removal of arsenic from aqueous solution using electrocoagulation. *Journal of Hazardous Materials*, 167 (1-3), 966-969.
- BASHA, A., C., JOSEPHINE SELVI, S., RAMASAMY, E., CHELLAMMAL, S., 2008. Removal of arsenic and sulphate from the copper smelting industrial effluent. *Chemical Engineering Journal*, 141, 89-98.
- BISSEN, M., FRITZ, H.F., 2003. Arsenic-a review part I: occurrence, toxicity, speciation, mobility. *Acta Hydrochim Hydrobiologia*, 31, 9-18.
- CAN, B.Z., 2010. Sulu Çözeltilerden Arsenik ve Bor'un Birlikte ve Seçimli Olarak Elektrokoagülasyon Yöntemi İle Giderimi. Atatürk Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Doktora Tezi, Erzurum, 50-56.
- CHEN, G., 2004. Electrochemical technologies in wastewater treatment. *Separation and Purification Technology*, 38, 11- 41.
- CHOONG, S.Y.T, CHUAH, T.G., ROBIAH, Y., KOAY, G., AZNI, I., 2007. Arsenic toxicity, health hazards and removal techniques from water: an overview. *Science Direct Desalination*. 217, 139-166
- DONINI, J., KAN, J., HASSAN, T., KAR, K., 1994. The operating cost of electrocoagulation. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 72, 1007-1012.
- DÖNMEZ, M., 2011. İçme Suyundan Arsenik Giderimi. Ondokuz Mayıs Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Yüksek Lisans Tezi, Samsun,168-173.
- DUKER, A.A., CARRANZA, E.J.M., Hale, M. 2005. Arsenic geochemistry and health. *Env. Int.*, 31, 631-641.
- ERDOĞAN, Y. A., 2005. Atıksulardan Çeşitli Adsorbanlarla Arsenik Giderimi.Yüksek Lisans Tezi, İstanbul Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul.
- GAP Projesi Jeotermal Kaynak Araştırması, 2015.
- GHOLAMI, M.M., MOKHTARI M.A., AAMERİ, A., FARD, M.R.A., 2006. Application of reverse osmosis technology for arsenic removal from drinking water. *Desalination*. 200, 725-727.
- GİZLİ, N., DEMİRCİOĞLU M., 2009. Suda Arsenik: Kimyası ve Uzaklaştırılması, TMMOB İzmir Kent Sempozyumu Bildiriler Kitabı, 259-267.
- GOMES, J.A.G., DÍADA, P., KESMEZ, M., WEİR, M., MORENO, H., PARGA, J.R., IRWİN, G., MC WHINNEY, H., GRADY, T., PETERSON, E., COCKE, D.L., 2007. Arsenic removal by electrocoagulation using combined Al-Fe

- electrode system and characterization of products. *Journal of Hazardous Materials*, 139, 220-231.
- GUO, H., Stüben, D., Berner, Z., Yu, Q., 2009. Characteristics of arsenic adsorption from aqueous solution: Effect of arsenic species and natural adsorbents. *Applied Geochemistry*, 24, 47-53.
- HANSEN, H. K., NUEZ, P., GRANDON, R., 2006. Electrocoagulation as a redimedation tool for wastewaters containing arsenic. *Mineral Engineering*, 19, 521-524.
- HANSEN, H. K., NUEZ, P., RABOY, D., SCHİPPACASSE, I., GRANDON, R., 2007. Electrocoagulation in wastewater containing arsenic: Comparing different process designs. *Electrochimica*, 52, 3464-3470.
- IHOŞ, M., NEGREA, A., LUPA, L., CİOPEC, M., NEGREA, P., 2005. Comparative study of As (III) removal efficiency from water by electrocoagulation and conventional coagulation. *Chem. Bull. Politehnica (Univ. Timișoara)*, 50 (64),1-2.
- JİANG, J., GRAHAM, N., ANDRE, C., KELSALL, G., BRANDON, N., 2002. Laboratory study of electrocoagulation-flotation for water treatment. *Water Research*, 36, 4064-4078.
- JOFFE, L., KNİEPER, L., 2000. Electrocoagulation technology quickly removes barium, total suspended solids from a water-retention pond for fractions of a cent per gallon. *Ind. Wastewater*, 5, 1-5.
- KARPUZCU, M., DİMOGLO, A., ROMANOV, A., Akbulut, H.Y., 2000. Siyanür ve Krom İçeren Atıksuların Elektrokimyasal Yöntemlerle Arıtımı, Gebze İleri Teknoloji Enstitüsü, Çevre Müh. Bölümü, 41400.
- KHOSLA N.K., VENKACHALAM S., SONRASUNDARAM P., 1991. Pulsed Electrogeneration of Bubbles for Electroflotation, *J. Appl. Electrochem.*, 21: 986–990.
- KOPARAL, A.S., GÖKÇEN, Ş., ÖĞÜTVEREN, Ü., 1999. Petrol Formasyon Suyunun Elektrokimya ve Geleneksel Yöntemler ile Arıtılabilirliğinin İncelenmesi. Türkiye’de Çevre Kirlenmesi Öncelikleri Sempozyumu III, İstanbul.
- KUMAR, N. S., GOEL, S., 2010. Factors influencing arsenic and nitrate removal from drinking water in a continuous flow electrocoagulation (EC) process. *Journal of Hazardous Materials*, 173 (1-3), 528-533.
- KUMAR, P.R., CHAUDHARİ, S., KHİLAR, K.C., MAHAJAN, S.P., 2004. Removal of arsenic from water by electrocoagulation. *Chemosphere*, 55 (9), 1245-1252.
- LAKSHMANAN, D., CLİFFORD, D.A., SAMANTA, G., 2010. Comparative study of arsenic removal by iron using electrocoagulation and chemical coagulation, Article in press.
- MOHAN, D., PİTTMAN, C.U., 2007. Arsenic removal from water/wastewater using adsorbents-A critical review. *Journal of Hazardous Materials*. 142, 1–53.
- MOLLAH, M.Y.A., SCHENNACH, R., PARGA, J.R., COCKE, D., 2001. Electrocoagulation – science and application. *Journal of Hazardous Materials*, B84, 29-41.
- MOLLAH, M, Y., MORKOVSKY, P., GOMES, J.A.G., KESMEZ, M., PARGA, J., COCKE, D.L., 2004. Fundamentals, present and future perspectives of electrocoagulation. *Journal of Hazardous Materials*, B114, 199-210.

- NİNG, R.Y., 2002. Arsenic removal by reverse osmosis. *Desalination* 143, 237-241.
- PAREKH, B.K., 1979. Role of Hydrolyzed Metal Ions in Charge Reversal and Coagulation Phenomena, Ph.D. thesis, The Pennsylvania State University, Pennsylvania.
- PARGA, J.R., COCKE, J.L., VALENZUELA, J.G., KESMEZ, M., IRWIN, G., MORENO, H., WEİR, M., 2005a. Arsenic removal via electrocoagulation from heavy metal contaminated groundwater in La Comarca Lagunera Mexico. *Journal of Hazardous Materials*, B124, 247-254.
- PARGA, R., COCKE D. L., VALVERDE, V., GOMES, J. A. G., KESMEZ, M. MORENO, WEİR, H., D. MENCER, M. 2005b. Characterization of electrocoagulation for removal of chromium and arsenic, *Chemical Engineering & Technology*, 28 (5), 605-612.
- POKHREL, D., VİRARAGHAVAN, T., 2006. Arsenic Removal From Aqueous Solution By Iron Oxide-Coated Fungal Biomass: A Factorial Design Analysis. Springer. *Water, Air, and Soil Pollution* 173, 195–208.
- RANJAN, D., TALAT, M., HASAN, S.H., 2009. Biosorption of arsenic from aqueous solution using agricultural residue ‘rice polish’. *Journal of Hazardous Materials* 166, 1050–1059.
- RESMİ GAZETE, 2005. Toprak Kirliliğinin Kontrolü Yönetmeliği. 31.05.2005 tarih ve Sayı 25831.
- ROTT, U., BARDOSSY, A., 2009. Treatment of arsenic containing artificial wastewater in different laboratory-scale constructed wetlands. Institut für Siedlungswasserbau, Wassergüte- und Abfallwirtschaft der Universität Stuttgart, 184s.
- SERPEN, A., 2008. Sularda Arsenik Kirliliğinin Kentsel Ekosistem Sağlığının Bozulmasına Bağlı Yarattığı Halk Sağlığı Sorunu. *Çiftlik Dergisi*. 296, 1-7.
- SHİH, M.C., 2005. An overview of arsenic removal by pressure-driven membrane processes. *Desalination*. 172, 85-97.
- SPELLMAN, F.R., 2003. *Handbook Water and Wastewater Treatment Plant Operations*. Lewis Publishers. 696s.
- UCAR, D., 2011. İçme Sularından Elektrokoagülasyon ve Filtrasyonla Arsenik Giderimi, Dokuz Eylül Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Yüksek Lisans Tezi, İzmir, 51-80.
- ULU, F., 2010. İçme Sularından Alüminyum Elektrotlar Kullanılarak Elektrokoagülasyon ile Arsenik Giderimi, Gebze Yüksek Teknoloji Enstitüsü, Mühendislik ve Fen Bilimleri Enstitüsü, Yüksek Lisans Tezi, Gebze, 87-113.
- USEPA, 2002. Arsenic treatment technologies for soil, waste, and water, U.S. EPA/National Service Center for Environmental Publications, Cincinnati.
- WHO, 2001. Environmental Health Criteria 224 Arsenic and Arsenic Compounds (Second Edition). World Health Organization Library Cataloguing-in-Publication Data. Geneva.
- YAĞMUR, F., HANCI, İ.H., 2002. Arsenik. *Sürekli Tıp Eğitimi Dergisi*. 7, 250-251.
- YILDIZ, Y.Ş., 2003. Humik Maddeler İçeren Atık Suların Elektrokoagülasyon Metodu ile Arıtımı. Doktora Tezi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Atatürk Üniversitesi, Erzurum.

ÖZGEÇMİŞ

KİŞİSEL BİLGİLER

Adı Soyadı : Yakup BAĞCI
Uyruğu : T.C.
Doğum Yeri ve Tarihi : Diyarbakır, 01.07.1990
Telefon : 0531 591 01 61
Fax : ---
e-mail : bagci.yb21@gmail.com

EĞİTİM

Derece	Adı, İlçe, İl	Bitirme Yılı
Lise	: Çermik Lisesi, Çermik, DİYARBAKIR	2009
Üniversite	: Harran Üniversitesi, Mühendislik Fak., Çevre Mühendisliği, ŞANLIURFA	2016
Yüksek Lisans:	Harran Üniversitesi, Fen Bilimleri Enst., Çevre Müh. Anabilim Dalı, ŞANLIURFA	2019

İŞ DENEYİMLERİ

Yıl	Kurum	Görevi
2016-2019	Pak-Çev Arıtma Müh. İnş. San. ve Tic Ltd.Şti.	Çevre Mühendisi

UZMANLIK ALANI

İçme-Kullanma Sularında Elektrokoagülasyon Prosesi ile Arsenik Gideriminin Araştırılması

YABANCI DİL

İngilizce

YAYINLAR

BAĞCI, Y., ATASOY, A.D., ve YENİGÜN, İ., 2019. Arsenik Gideriminde Elektrokoagülasyon Metodu. 1. Uluslararası Harran Multidisipliner Çalışmalar Kongresi, 8-10 Mart, Cilt 1, Şanlıurfa, s.750-752. (Yüksek Lisans Tezinden Yayınlanmıştır)